

ESTUDO DO EFEITO DA IRRADIAÇÃO DE ALVOS CONTENDO Mo EM REATOR NUCLEAR.

Renata C. Nieto, Ana Lúcia V. P. Lima, Nestor C. da Silva e João Alberto Osso Jr.

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN/CNEN-SP
Caixa Postal 11049
05422-970, São Paulo/SP, Brasil.

RESUMO

O radioisótopo mais utilizado na Medicina Nuclear é o ^{99m}Tc , na forma do gerador $^{99}\text{Mo} - ^{99m}\text{Tc}$. O ^{99}Mo pode ser produzido por diversas reações nucleares em reatores e ciclotrons. No reator nuclear a produção pode ser feita de duas maneiras: pela fissão do urânio ou pela reação $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$. No Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares está sendo desenvolvido um projeto para a produção de ^{99}Mo pela ativação de Mo e preparo de geradores tipo gel MoZr. Neste trabalho foram medidas as impurezas radionuclídicas provenientes da ativação do MoO_3 , do Mo metálico e do gel de MoZr, assim como a pureza radionuclídica do ^{99m}Tc eluído dos geradores preparados.

Palavras-chaves: gel MoZr, gerador de ^{99}Mo , ^{99m}Tc , produção de radioisótopos.

I. INTRODUÇÃO

A partir de 1966, o ^{99m}Tc tornou-se comum e uma variedade de compostos marcados foram desenvolvidos para aplicação na Medicina Nuclear e hoje cerca de 90% dos procedimentos de diagnóstico são realizados com o ^{99m}Tc , cujas características físicas de decaimento são favoráveis para as técnicas de diagnóstico: meia-vida curta ($T_{1/2} = 6,02$ h) e decaimento emitindo um único raio- γ de 141 keV, energia favorável para o uso com os detectores utilizados na Medicina Nuclear. [1,2,3,5]

Uma outra vantagem é a sua disponibilidade na forma de um gerador à classe médica, onde o ^{99}Mo decai com a meia-vida física de 66 horas para o ^{99m}Tc . [1,2,3,5]

Por essas características, o ^{99m}Tc pode ser utilizado a distâncias longas do centro produtor.

O Mo-99 pode ser produzido por diversas reações nucleares em reatores e ciclotrons. A produção em ciclotron é possível pela irradiação do Mo altamente enriquecido em ^{100}Mo com prótons ou deutérios.. [9]

No reator nuclear a produção pode ser feita de duas formas, pela fissão do ^{235}U ou pela reação do ^{98}Mo (n, γ) ^{99}Mo . No processo de fissão do ^{235}U , obtêm-se o ^{99}Mo com alta atividade específica, mas gera um número grande de radioisótopos de fissão, levando a uma separação química complexa do ^{99}Mo e altas doses de radiação. [8,9]

O processo da ativação do Mo natural ou enriquecido em ^{98}Mo pela reação (n, γ) produz ^{99}Mo com baixa atividade específica, maiores volumes de eluição de

^{99m}Tc e menor quantidade de impurezas, conseqüentemente gerando uma quantidade menor de rejeitos. [7]

Quando o ^{99}Mo é produzido pela reação (n, γ), a técnica de preparo do gerador mais empregada é a eluição de um gel de Mo. Esta técnica está sendo estudada em alguns países como o Vietnã, Índia, Austrália e China [6]. Desta técnica, dois tipos de gel mostraram bons resultados: o de MoZr e o de MoTi. O gel preparado com Zr mostra um desempenho melhor devido a uma contaminação menor do ^{99m}Tc eluído com ^{99}Mo [4]. Quanto à irradiação, duas técnicas podem ser empregadas: irradiando MoO_3 e posterior preparo do gel ("gel pós-formado") e preparando-se o gel com MoO_3 a frio e posterior irradiação ("gel pré-formado").

Este trabalho estuda as impurezas radionuclídicas provenientes da ativação do MoO_3 e do Mo metálico e do gel de MoZr, assim como a pureza radionuclídica do ^{99m}Tc eluído dos geradores preparados das duas maneiras e comparação dos resultados obtidos com o Mo metálico.

II. PARTE EXPERIMENTAL

Preparo do gel pré-formado e do gel pós-formado

O gel de MoZr é preparado pela reação do MoO₃ frio (gel pré-formado) ou irradiado (gel pós-formado) com ZrOCl₂.8H₂O em condições ótimas de pH, temperatura e agitação. Após a reação, o gel é filtrado, seco e finalmente quebrado com solução salina.

Irradiações

Todas as irradiações foram realizadas no reator IEA-RI, do IPEN - CNEN/SP, nas potências de 2MW e 5MW, num período de 1h à 8h. Todos os alvos foram colocados em porta alvos de alumínio chamados “coelhos”, cujo diâmetro é aproximadamente 2,1 cm e a altura de 7 cm.

Foram irradiados alvos de MoO₃ e de Mo metálico para a preparação do gel pós-formado. Alvos do gel de MoZr pré-formado foram irradiados nas mesmas condições.

Preparo dos Geradores de ⁹⁹Mo-^{99m}Tc

Os geradores de ⁹⁹Mo-^{99m}Tc foram preparados usando colunas de vidro similares às do gerador de ⁹⁹Mo de fissão, contendo uma placa de vidro porosa. Inicialmente foram colocados 1,0 g de Al₂O₃ (para retenção de Mo e ajuste de pH) e então de 3 a 6 g do gel de MoZr pré-formado ou pós-formado e Mo metálico. Após o crescimento do ^{99m}Tc, a eluição foi feita com frascos contendo solução salina. O eluído, contendo o ^{99m}Tc foi recolhido em frascos previamente evacuados.

Medida da ativação total

Para as medidas das atividades iniciais, foi utilizado um calibrador de dose, modelo CRC - 10BC da Capintec, nas posições de ^{99m}Tc e Mo_{assay}, este último com o uso de uma blindagem de chumbo.

Espectroscopia - g

As amostras foram analisadas no detetor de Germânio (HP), modelo GX1518 da Canberra, acoplado a um sistema de aquisição e tratamento de dados via microcomputador com o programa GENIE - PC, a fim de medir a pureza radionuclídica das amostras, tais como: MoO₃, Mo metálico e gel de MoZr irradiados e os eluídos dos geradores de gel pré e pós - formado.

III. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Preparo do gerador tipo gel “pós-formado” e gel “pré-formado”

As figuras 1, 2 e 3 mostram as curvas de eluição dos géis pós-formado e pré-formado com MoO₃ e do Mo metálico, respectivamente.

Comparando-se a eluição dos três géis observa-se que o gerador preparado com o gel “pós-formado”, (Figura 1) apresenta em 6 mL uma percentagem de ^{99m}Tc em torno de 80%, que cai a 52% com o gel pós-formado - Mo metálico e em comparação com o gerador “pré-formado”(Figura 2) cuja percentagem apresentada é 43%, demonstrando que o gerador formado com MoO₃ irradiado é a opção preferida.

Considerando a quantidade total de ⁹⁹Mo presente no gerador, a eficiência de eluição é maior que 75% para os geradores com o gel pré-formado, e maiores que 85% para o pós-formado - MoO₃, caindo para 63% para o pós-formado - Mo metálico.

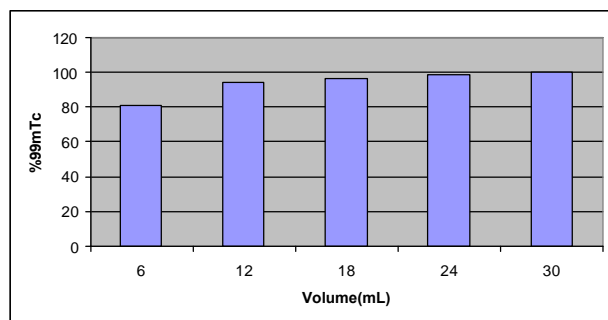


Figura 1. Curva de eluição de % ^{99m}Tc x volume para o gel “pós-formado” a partir do MoO₃.

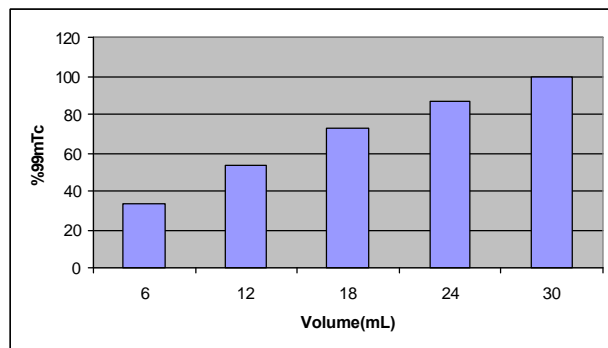


Figura 2. Curva de eluição de % ^{99m}Tc x volume para o gel “pré-formado”

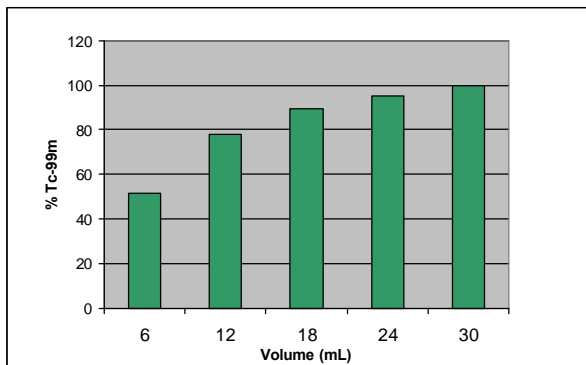


Figura 3 - Curva de eluição de % ^{99m}Tc x volume para o gel pós-formado - Mo metálico.

Irradiação dos Alvos de MoO_3 (diferentes fabricantes)

A Tabela 1 mostra os dados obtidos na espectroscopia- γ de amostras dos alvos de MoO_3 irradiados. As impurezas radionuclídicas detectadas nas amostras do MoO_3 **ALDRICH** irradiado foram: ^{124}Sb , ^{122}Sb , ^{92m}Nb e ^{95}Nb , enquanto que o MoO_3 **FLUKA** irradiado apresentou somente as impurezas de ^{92m}Nb e ^{95}Nb numa proporção menor. Na Tabela 2 o resultado do Mo metálico mostra apenas a impureza do ^{92m}Nb , proveniente da ativação do Mo. Os produtos da ativação das impurezas químicas não estão presentes devido ao tempo curto de irradiação e a predominante presença de ^{99}Mo e ^{99m}Tc .

TABELA 1. Comparação dos alvos de MoO_3 irradiados

<i>MoO₃ - Aldrich</i>				
E_g (keV)	Isótopo	$T_{1/2}$	Reação	mCi/mCi ^{99}Mo
740	^{99}Mo	66 h	$^{98}\text{Mo}(n,g)^{99}\text{Mo}$	---
603	^{124}Sb	60,2 d	$^{123}\text{Sb}(n,g)^{124}\text{Sb}$	0,56
1691	^{122}Sb	2,7 d	$^{121}\text{Sb}(n,g)^{122}\text{Sb}$	2,36
934	^{92m}Nb	10,16 d	$^{92}\text{Mo}(n,p)^{92m}\text{Nb}$	16,13
766	^{95}Nb	34,97 d	$^{94}\text{Zr}(n,g)^{95}\text{Zr}$ $\xrightarrow{\beta^-} ^{95}\text{Nb}$	2,90
<i>MoO₃ - Fluka</i>				
E_g (keV)	Isótopo	$T_{1/2}$	Reação	mCi/mCi ^{99}Mo
740	^{99}Mo	66 h	$^{98}\text{Mo}(n,g)^{99}\text{Mo}$	---
934	^{92m}Nb	10,16 d	$^{92}\text{Mo}(n,p)^{92m}\text{Nb}$	16,26
767	^{95}Nb	34,97 d	$^{94}\text{Zr}(n,g)^{95}\text{Zr}$ $\xrightarrow{\beta^-} ^{95}\text{Nb}$	0,31

Tabela 2 - Alvo de Mo metálico

<i>Mo metálico</i>				
E_g (keV)	Isótopo	$t_{1/2}$	Reação	mCi/mCi ^{99}Mo
740	^{99}Mo	66 h	$^{98}\text{Mo}(n,g)^{99}\text{Mo}$	---
934	^{92m}Nb	10,16 d	$^{92}\text{Mo}(n,p)^{92m}\text{Nb}$	$1,27 \times 10^{-3}$

Irradiação de Alvos do gel de MoZr

Os resultados da análise do gel irradiado estão mostrados na Tabela 3. A impureza de ^{181}Hf é proveniente da ativação do Hf, que é uma impureza presente no ZrOCl_2 comercial.

TABELA 3. Impurezas detectadas no gel pré-formado

MoZr				
E _g (keV)	Isótopo	t _{1/2}	Reação	mCi/mCi ⁹⁹ Mo
740	⁹⁹ Mo	66 h	⁹⁸ Mo(n,g) ⁹⁹ Mo	---
757	⁹⁵ Zr	64 h	⁹⁴ Zr(n,g) ⁹⁵ Zr	0,27
482	¹⁸¹ Hf	42,5 h	¹⁸⁰ Hf(n,g) ¹⁸¹ Hf	1,58
141	^{99m} Tc	6 h	⁹⁹ Mo $\xrightarrow{b^-}$ ^{99m} Tc	---

Medida - g dos eluídos dos geradores preparados com gel pré-formado e pós-formado

As Tabelas 4 , 5 e 6 mostram o resultado da análise da pureza radionuclídica do ^{99m}Tc eluído de geradores preparados com o gel pós-formado e pré-formado com MoO₃ e pós-formado com Mo metálico, respectivamente. Comparando os resultados pode-se notar que o eluído do gel pós - formado tem como impurezas radionuclídicas o ⁹⁹Mo e o ^{92m}Nb, proveniente da ativação do ⁹²Mo pela reação (n, p) (TABELA 1).

O eluído do gel pós-formado - Mo metálico apresentou apenas a impureza de ⁹⁹Mo, mas acima do nível permissível (10⁻¹% = 10⁻³ mCi⁹⁹Mo/mCi^{99m}Tc).

O gel pré-formado apresentou uma série de impurezas radionuclídicas, como o ¹⁷⁵Hf, ⁹⁵Zr, ⁹²Nb e o ¹⁸¹Hf. Essas impurezas são provenientes da ativação do MoO₃ e também do ZrOCl₂.

Assim pode-se observar que, o gel pós-formado com MoO₃ apresenta um nível menor de impurezas radionuclídicas.

TABELA 4. Eluídos do gel pós-formado - MoO₃ irradiado.

ELUÍDO - GEL PÓS-FORMADO				
E _g (keV)	Isótopo	T _{1/2}	Reação	mCi/mCi ^{99m} Tc
141	^{99m} Tc	6 h	⁹⁹ Mo $\xrightarrow{b^-}$ ^{99m} Tc	---
740	⁹⁹ Mo	66 h	⁹⁸ Mo(n,g) ⁹⁹ Mo	4,52x10 ⁻⁴
935	^{92m} Nb	10,16 d	⁹² Mo(n,p) ^{92m} Nb	7,37x10 ⁻⁷

TABELA 5. Eluídos do gel pré-formado - MoO₃ não irradiado.

ELUÍDO - GEL PRÉ-FORMADO				
E _g (keV)	Isótopo	T _{1/2}	Reação	mCi/mCi ^{99m} Tc
141	^{99m} Tc	6 h	⁹⁹ Mo $\xrightarrow{b^-}$ ^{99m} Tc	---
740	⁹⁹ Mo	66 h	⁹⁸ Mo(n,g) ⁹⁹ Mo	2,12x10 ⁻³
344	¹⁷⁵ Hf	70 d	¹⁷⁴ Hf(n,g) ¹⁷⁵ Hf	5,19x10 ⁻⁵
757	⁹⁵ Zr	64 d	⁹⁴ Zr(n,g) ⁹⁵ Zr	7,80x10 ⁻⁵
767	⁹⁵ Nb	34,97 d	⁹⁴ Zr(n,g) ⁹⁵ Zr $\xrightarrow{b^-}$ ⁹⁵ Nb	7,43x10 ⁻⁵
482	¹⁸¹ Hf	42,5 d	¹⁸⁰ Hf (n,g) ¹⁸¹ Hf	5,95x10 ⁻⁴

Tabela 6 - Impurezas radionuclídicas encontradas no eluído do Mo metálico.

Eluído - Mo metálico				
Eg (keV)	Isótopo	t _{1/2}	Reação	mCi/mCi ^{99m} Tc
740	⁹⁹ Mo	66 h	⁹⁸ Mo(n,g) ⁹⁹ Mo	5,44 x 10 ⁻³

IV. CONCLUSÕES

O presente estudo, que é parte do projeto de produção de ⁹⁹Mo pela ativação de Mo e preparo dos geradores de ^{99m}Tc com o gel de MoZr, mostrou que das duas técnicas de preparo do gel, a preferida é a do gel pós-formado com MoO₃. Isto porque além de produzir mais ⁹⁹Mo, produz também menos impurezas radionuclídicas no processo de ativação e principalmente pelo menor número de contaminantes no produto final.

Outra vantagem do gel pré-formado com MoO₃ e com Mo metálico é o pior perfil de eluição de ^{99m}Tc, devido ao aquecimento e possíveis danos radiolíticos na estrutura do gel durante a irradiação.

A próxima etapa deste trabalho é o estudo dos efeitos da irradiação no gel pré-formado para explicar os resultados aqui apresentados.

AGRADECIMENTOS

Este trabalho está sendo financiado pela FINEP, através de seu programa PRONEX. Os autores gostariam de agradecer a FAPESP pela bolsa de doutorado fornecida.

REFERÊNCIAS

- [1] Boyd R. E (1986), IAEA - SR - 131/11.
- [2] Sepp Seifert, Gerhard Wagner, Armin Eckardt, “**Highly Concentrated [^{99m}Tc] Pertechnetate Solutions from (n,g) ⁹⁹Mo/^{99m}Tc Generators for Nuclear Medical use**”; Appl. Radiat. Isot. Vol. 45, n° 5, pp. 577 - 579, 1994.
- [3] Robin D. Rogers, Andrew H. Bond, Jianhua Zhang, Cary B. Bauer; “**Polyethylene Glycol Based-aqueous Biphasic Systems as Technetium - 99m Generators**”, Appl. Radiat. Isot. Vol. 47, No 5/6, pp. 497 - 499, 1996.
- [4] .Y. F. Shafiq, Z. M. Yousif, “**Characteristics and Behavior of a ⁹⁹Mo/^{99m}Tc Generator using irradiated Titanium Molybdate as column matrix**”; J. Radioanal. Nucl. Chem., letters 199 (3) 173-181 (1995).

[5] E. Taskaev, M. Taskaeva, P. Nikolov; “**Extraction Generator for [^{99m}Tc]Sodium Pertechnetate Production**”; Appl. Radiat. Isot. Vol. 46, n° 1, pp. 13-16, 1995.

[6] “**Development of Alternative technologies for Gel-Type Chromatographic tc-99m Generator**”; IAEA's Research Co-ordination Meeting, 3-6 May, Vienna, Austria, 1994.

[7] Craig C. Williams, M.S., James G. Kereiakes, Ph.D, and Laurence W. Grossman, Ph.D.. “**The Accuracy of ⁹⁹Molybdenum Assays in ^{99m}technetium Solutions**”, Nuclear Medicine, Radiology 138: 445-448, February, 1981.

[8] Victor J. Molinski. “**A Review of ^{99m}Tc Generator Technology**”, Journal Appl.Radiat.Isto.,Vol.33, pp.811 to 819, 1982.

[9] R.E. Boyd, “**Technetium - 99m Generators - The Available Options**”, Int.J.Appl.Radiat.Isto., vol 33..pp. 801 to 809, 1982.

ABSTRACT

The most used radioisotope in Nuclear Medicine is ^{99m}Tc, in the ⁹⁹Mo-^{99m}Tc generator form. ⁹⁹Mo can be produced by several nuclear reactions in Reactors and Cyclotrons. The cyclotron production is not technically and economically viable. The production in the Reactor can be done in two different ways: by the fission of ²³⁵U and by the ⁹⁸Mo(n,γ)⁹⁹Mo reaction. A project for the production of ⁹⁹Mo by the activation of Mo and the preparation of gel type generators is under development at the “Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares”. In the present work, the radionuclidic impurities produced in the activation of MoO₃, metallic Mo and MoZr gel were evaluated, as well as the radionuclidic purity of ^{99m}Tc eluted from generators prepared.