

Estudo e otimização das condições de preparo do gel de molibdato de zircônio usado nos Geradores de ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$

9253
9250
Nestor C. da Silva, Adriana C. de Velosa, Ana Lúcia V. P. Lima, Renata C. Nieto, e João A. Osso Jr.

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

RESUMO

Neste trabalho busca-se estabelecer as condições de preparo do gel de Mo-Zr, que proporcione o melhor desempenho de um gerador de ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$, a partir dos estudos das variáveis do processo, e uma vez definidas, inserí-las no procedimento experimental do projeto em andamento no IPEN-CNEN/SP. Este projeto é uma das metas visando a nacionalização da produção de radioisótopos para uso em Medicina Nuclear. Atualmente o ^{99}Mo usado nos geradores é importado pelo IPEN e produzido pela fissão do ^{235}U . No método descrito neste trabalho o ^{99}Mo será produzido pela reação $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ no Reator IEA-R1 do IPEN, e posteriormente submetido a uma reação química com o Zr, sob condições adequadas para formar o gel de molibdato de zircônio. São relatados os resultados dos estudos de algumas variáveis do processo, tais como: pH final da solução que contém o gel, concentração inicial das soluções de Mo e Zr, temperatura de reação e ordem de adição dos reagentes. Avaliando-se os resultados experimentais, observa-se que é possível melhorar as condições de preparo do gel Mo-Zr, obtendo-se um produto com as características necessárias para uso como gerador ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Palavras-chaves: gel MoZr, gerador de ^{99}Mo , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, produção de radioisótopos Medicina Nuclear

1 INTRODUÇÃO

A Medicina Nuclear vem promovendo uma crescente demanda pelo suprimento de radiofármacos com $^{99\text{m}}\text{Tc}$ para uso em diagnósticos de pacientes, em virtude de suas características favoráveis. Ele tem uma meia vida física de 6,02 horas, e decai 100% por transição isomérica para o ^{99}Tc , emitindo um único raio - γ de 141 keV, o que reduz a dose de radiação administrada aos pacientes [2]. Além disso o $^{99\text{m}}\text{Tc}$ é obtido pela simples eluição de um gerador, onde o ^{99}Mo que é o pai radioativo, decai com uma meia vida de 66 horas para o filho radioativo $^{99\text{m}}\text{Tc}$. O ^{99}Mo pode ser produzido em ciclotron, mas geralmente é obtido em Reatores Nucleares pela fissão do ^{235}U ou irradiando-se alvos de ^{98}Mo natural ou enriquecido. Na escolha de um sistema de geradores, razões técnicas e econômicas devem ser levadas em consideração [2-4].

O IPEN desenvolve um projeto para produção de geradores pela técnica de irradiação do ^{98}Mo e preparo de um gel que tem propriedades de troca iônica. Neste trabalho busca-se definir as melhores condições de preparo

do gel que proporcione o melhor desempenho de um gerador ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Foram preparados nove lotes do gel, e em cada um deles substituiu-se uma variável do processo: O pH final da solução que contém o gel, a concentração das soluções de Mo e Zr, a temperatura de reação e a ordem de adição dos reagentes foram estudados. Para efeito de comparação, foi feita a caracterização do gel em cada experimento realizado: Os teores de molibdênio e zircônio foram medidos: no gel, no fluido de cada gerador e no filtrado do processo. Foi verificado também a distribuição dos tamanhos de partículas, e, determinado o balanço de massa dos processos [1,3,5].

7792

102

ver dependência com CD-ROM

Renata
7-10-07

TC
C

II. PARTE EXPERIMENTAL

Preparo do Gel de MoZr - Formulação Básica

O método padrão estabelecido para a preparação do gel de MoZr é o citado a seguir. Foi preparado um lote do gel (gel I), e a partir desta formulação, uma das variáveis foi modificada em cada experimento.

- Dissolver o MoO_3 em NaOH 2M (1g/10mL) e ajustar o pH para 4,00 com HNO_3 2M.
- Dissolver o $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ com H_2O (1g/14mL).
- Adicionar a solução de Mo à de Zr, já aquecida a 50°C , lentamente.
- Agitar por 10 minutos.
- Ajustar o pH para 4,50 com NaOH 2M.
- Agitar por 15 minutos.
- Filtrar.
- Secar a 105°C .
- Quebrar o gel com solução salina e H_2O_2 .

Preparo do Gel Variando o pH Final da Solução que contém o Gel

Foram preparados dois lotes do gel (gel II e gel III) para estudar o comportamento final, ao variar o pH final. O gel I teve o pH ajustado para 3,50, enquanto que o gel II o pH final foi ajustado para 5,50.

Preparo do Gel Variando a Concentração Inicial das Soluções de Mo e Zr

Foram feitos dois lotes de gel (IV e V) para estudar o efeito da variação de concentração das soluções de Mo e Zr. As concentrações das soluções de Mo e Zr para a formulação básica(*), assim como para os géis IV e V são as seguintes:

TABELA I: Valores de concentração das soluções

Lote do gel	Conc. Mo (mg/mL)	Conc. Zr (mg/mL)
Gel (*)	66,65	20,23
Gel IV	73,59	14,94
Gel V	80,54	10,07

Preparo do Gel Variando a Ordem de Adição dos Reagentes

Neste experimento (gel VI e VII) a ordem de adição dos reagentes foi invertida: adicionou-se a solução de Zr à solução de Mo, que foi previamente aquecida à 50°C .

Preparo do Gel Variando a Temperatura de Reação

Foram feitos 2 lotes do gel, (gel VIII e IX), e a variável estudada foi a temperatura de reação, que foi de 25°C para o gel VIII e 70°C para o gel IX

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

Os geradores de ^{99}Mo - ^{99m}Tc foram preparados usando colunas de vidro similares às do gerador de ^{99}Mo de fissão, contendo uma placa de vidro porosa. Inicialmente foram colocados 1,0 g de Al_2O_3 (para retenção de Mo livre, e ajuste de pH) e então de 3 a 6 g do gel de MoZr úmido ou seco [1].

Caracterização do Gel

Todas as análises foram realizadas nos laboratórios do CRP, IPEN-CNEN/SP, e a identificação da Estrutura do gel foi determinada através de difração de raios-X no IPEN

- Determinação da quantidade de Mo e Zr

A quantificação de Zr foi feita por espectroscopia UV - visível, pela complexação com alaranjado de xilenol, que absorve no comprimento de onda de 535 nm, utilizando o equipamento DMS-80 da Intralab. O Mo foi quantificado inicialmente pela complexação com tiocianato, que absorve no comprimento de onda de 460 nm, em UV - visível, e posteriormente por espectrometria de Absorção Atômica.

- Determinação do tamanho de partículas

A distribuição granulométrica foi determinada utilizando um sistema de peneiras, com aberturas variando de 0,053mm a 0,3mm, pesando-as antes e depois do processo.

- Medida do balanço de massa do processo

A medida do balanço de massa foi feita por determinação gravimétrica da massa inicial e final do processo.

III RESULTADOS E DISCUSSÃO

Preparo do Gel, Formulação Básica

Os resultados das análises para este experimento (Tabela II) mostram as características básicas para um gel Mo-Zr. É interessante que o teor de Mo incorporado ao gel seja bem superior ao encontrado, pois assim tem-se uma maior concentração radioativa de ^{99}Mo quando o gel for preparado com o Mo irradiado: proporcionando um melhor perfil de eluição de um gerador feito com esse gel. A quantidade de Mo e Zr no eluído do gerador e no filtrado do processo são compatíveis com os valores estabelecidos.

TABELA II: Análises do gel preparado na formulação básica

Lote do gel	Gel I
Balanco de massa (%)	+24,0
Teor de Mo e Zr no gel (%)	25,43 - 24,30
Teor de Mo e Zr no filtrado (%)	0,25 - 0,15
Teor de Mo e Zr no eluido (ppm)	abaixo do limite
Estrutura	Amorfa (A)

Preparo do Gel do gel variando o pH final da solução que contém o gel Mo e Zr

De acordo com os dados mostrados na Tabela III referente a este experimento, verifica-se que houve um aumento significativo do teor de Mo incorporado no gel para os 2 lotes nas mesmas condições de preparo. Fica claro que o teor de Mo no gel aumenta com a diminuição do pH. A perda de Mo no filtrado e o tamanho de partículas diminuem em pH baixo, sugerindo assim que o gel II esteja mais próximo da formulação ideal, entretanto o teor de Mo e Zr nos eluidos são altos.

TABELA III: Efeito do pH final na solução que contém o gel

Lote do gel	II	III
pH final	3,50	5,50
Balanco de massa (%)	+34,29	+37,57
Teor de Mo e Zr no gel (%)	35,29 - 32,88	27,11 - 30,43
Teor de Mo e Zr no filtrado (ppm)	0,04 - 0,02	3,62 - 0,10
Teor de Mo e Zr no eluido (ppm)	4,82 - 3,88	4,44 - 3,60
Estrutura	A	A

Varição da Concentração das Soluções de Mo e Zr

Observando os valores referente aos teores de Mo e Zr nas várias etapas do gel, (Tabela IV), tem-se uma boa indicação de melhor resultado para o gel V, principalmente por apresentar um maior teor de Mo. Quando os valores referente à distribuição granulométrica são também levados em consideração, tem-se ainda os melhores resultados para o gel V, que apresenta uma maior proporção de tamanho de partículas dentro de uma faixa de interesse, isto é, entre 0,106 mm e 0,149 mm.

O teor, (perda), de Mo e Zr no filtrado para os 2 lotes são relativamente baixos, porém no eluido, o teor de Zr e principalmente Mo, estão acima dos valores especificados.

TABELA IV: Variação da concentração das soluções

Lote do gel	IV	V
Conc. Sol. Mo (mg/ml)	73,59	80,54
Conc. Sol. Zr (mg/ml)	14,94	10,07
Balanco de massa (%)	+30,92	+20,09
Teor de Mo e Zr no gel (%)	25,00 - 22,16	28,97 - 27,30
Teor de Mo e Zr no filtrado (%)	0,40 - 0,02	0,94 - 0,03
Teor de Mo e Zr no eluido (ppm)	30,27 - 3,85	17,54 - 2,75
Estrutura	A	A

Varição da ordem de adição dos reagentes

Verifica-se que não houve aumento do teor de Mo no gel, tabela IV. No filtrado esses valores são aceitáveis, e no eluido dos geradores estes valores são muito próximo dos especificados. No item distribuição granulométrica temos os melhores valores para o gel VII.

TABELA V: Efeito da inversão da ordem de adição dos reagentes

Lote do gel	V	VII
Ordem de adição	Mo => Zr	Zr => Mo
Balanco de massa (%)	+39,98	+23,65
Teor de Mo e Zr no gel (%)	25,78 - 31,98	25,63 - 29,18
Teor de Mo e Zr no filtrado (%)	0,41 - 0,03	0,3 - 0,03
Teor de Mo e Zr no eluido (ppm)	1,44 - 1,98	2,67 - 1,36
Estrutura	A	A

Varição da temperatura de reação

Os resultados dos estudos da variação da temperatura de reação no preparo do gel de MoZr estão na Tabela VI. Observa-se que o teor de Mo no gel é maior quando a reação se dá a uma temperatura elevada, porém no eluido do gerador e no filtrado do processo esse valor está acima do permitido, e apresenta também a pior distribuição granulométrica.

TABELA VI: Efeito da variação da temperatura de reação

Lote do gel	VIII	XIX
Temp. de reação (°C)	25 °C	70 °C
Balanço de massa (%)	+24,00	+46,90
Teor de Mo no gel (%)	25,43	30,32
Teor de Mo no filtrado (%)	0,25	2,23
Teor de Mo no eluido (ppm)	0,01	10,25
Estrutura	A	A

IV CONCLUSÃO

Verifica-se, a partir dos resultados obtidos que é possível melhorar as condições de preparo do gel alterando algumas variáveis do processo. Porém, para a obtenção de uma formulação ideal, é necessário que se realize mais experimentos substituindo-se na formulação básica as variáveis estudadas que conferiram melhor desempenho ao gel preparado.

AGRADECIMENTOS

Este trabalho está sendo financiado pela FINEP, através de seu programa PRONEX. Agradecemos também à FAPESP, pela concessão de uma bolsa de iniciação científica.

REFERÊNCIAS

[1] João Alberto O. Jr, Ana Lúcia V. P. Lima, Nestor C. Silva, Renata C. Nieto e Adriana C. de Velosa "Preparação do gel de molibdato de zircônio para uso nos geradores de ^{99m}Tc : Definição do método de preparação a nível de laboratório"

[2] R. E. Body, "Molybdenum-99: Technetium-99m Generator" *Radiochimica Acta* 30, 123-145 (1982)

[3] "Development of Alternative Technologies For Gel-type Chromatographic ^{99m}Tc generator"; IAIAs Research Co-ordination Meeting, 3-6 May, Vienna, Austria 1994.

[4] Sameh A. Ali and Hans J. Ache, "Production techniques of Fission Molybdenum-99"

[5] Li Maoliang, "Production of gel-type Tc-99m generator for Nuclear Medicine"; Lecture of IAEA Expert Mission for Brazil, 8-22 March, 1996.

ABSTRACT

This work aims to define the best preparation conditions of a gel containing Mo that will give the best performance of a gel-type ^{99}Mo - ^{99m}Tc generator, from the study of process variables that once defined will be used in the experimental procedure used at IPEN-CNEN/SP. This project is one step towards the nationalization of the radioisotope production for use in Nuclear Medicine.

Nowadays the ^{99}Mo used in the generators prepared at IPEN'S is produced by the fission of ^{235}U . In the method here described, ^{99}Mo will be produced by the $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ reaction at IPEN'S IEA-R1 reactor, and after the irradiation Mo will react with Zr under adequate conditions, to prepare the zirconium molybdate gel.

The results of the studies concerning some variables of the process will be shown, such as: pH of solution containing the gel, initial concentration of the solutions of Mo and Zr, reaction temperature and order of addition of the reagents. Analysing the results, it can be seen that some improvement can be made in the conditions of gel containing ^{99}Mo preparation, that has the necessary characteristics for use as ^{99}Mo - ^{99m}Tc generator.