



DETERMINACIÓN DE Mo EN GELES Ti-Mo Y Zr-Mo MEDIANTE ACTIVACIÓN NEUTRÓNICA.

Issiel Ortega Alvarez^(1,2), Dra. Fabiola Monroy Guzmán⁽²⁾

(1) Instituto Tecnológico de los Mochis, Juan de Dios Batis s/n Los Mochis, Sinaloa.

(2) ININ, Km 36.5 Carretera México-Toluca, 52045 Edo. de México.

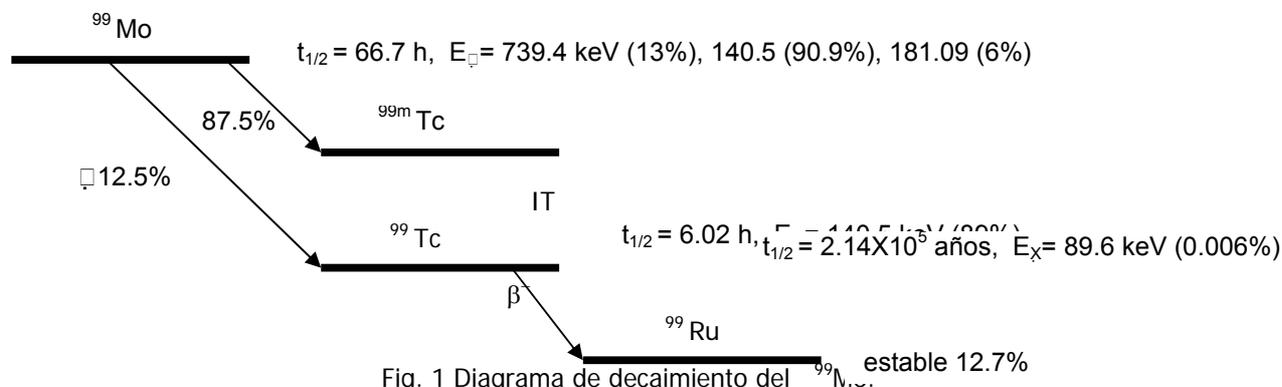
1. RESUMEN

Geles a base de molibdatos de zirconio, titanio etc, se están utilizando como matrices de generadores de $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$. Una de las características fundamentales que deben poseer estos geles, es su alto contenido de Mo, de tal forma que se debe conocer cuantitativamente sus concentraciones en estos molibdatos. Existen diversos métodos de análisis que permiten determinar el Mo, sin embargo, la presencia de Zr y Ti en estos geles Zr-Mo y Ti-Mo, en muchas ocasiones, interfiere en los análisis, imponiendo la separación previa de ambos metales antes de su determinación y aumentando por tanto el tiempo de preparación de la muestra, el costo y la generación de desechos químicos de estos análisis. A fin de eliminar estas dificultades, las concentraciones de Mo de geles de Zr-Mo y Ti-Mo, previamente evaluadas sus cualidades como matrices de los generadores $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, fueron determinadas mediante análisis por activación neutrónica, sin previa preparación de las muestras y solo con el uso de un estándar externo como referencia. Los resultados revela que las condiciones de preparación de los geles influyen de manera directa en su contenido de Mo. Y que, los geles titanio-molibdeno poseen en promedio un mayor contenido de Mo (37 %) que los geles zirconio-molibdeno (30 %).

2. INTRODUCCIÓN

La producción del radioisótopo $^{99\text{m}}\text{Tc}$, se realiza por medio de generadores $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, que se preparan comercialmente con ^{99}Mo de alta actividad específica, adsorbido en una alúmina (2 mg ^{99}Mo / g alúmina). El $^{99\text{m}}\text{Tc}$ es producto del decaimiento radiactivo del ^{99}Mo (Fig. 1) y es el radioisótopo más empleado en Medicina Nuclear. Más del 70% de todos los procedimientos médicos que se realizan con radioisótopos hacen uso de él. Formando parte de un radiofármaco, su empleo en diagnóstico médico permite visualizar estructuras anatómicas y brinda información sobre procesos metabólicos y es usado terapéuticamente para seguimiento de patologías.

De manera alternativa se propone utilizar geles como matrices de dichos generadores, estos geles permiten incorporar > 25 % de molibdeno en su estructura, pudiendo emplearse molibdeno de baja actividad específica, que puede ser obtenido a partir de la reacción $^{98}\text{Mo} (n,\gamma) ^{99}\text{Mo}$, conservando características similares de calidad y pureza que los generadores comerciales, reduciendo de esta forma el costo de producción del $^{99\text{m}}\text{Tc}$ [Dia-03]. Los geles son preparados con soluciones de molibdatos y titanio ó zirconio cuyas características depende fuertemente de su forma de síntesis. En trabajos realizados en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, en relación a la producción de generadores $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, a base de matrices de geles Ti-Mo y Zr-Mo, se han producido geles bajo diferentes condiciones, que ya han sido utilizados como matrices de generadores [Con-02] [Mon-04] [Bar-03] [Mon-03] [Dia-03]. En este trabajo tiene por objeto cuantificar la concentración de molibdeno en geles titanio – molibdeno (Ti – Mo) y en geles zirconio – molibdeno (Zr – Mo), por medio del Análisis por Activación Neutrónica (AAN), dada la importancia del contenido de molibdeno en las características de los generadores $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$.



3. METODOLOGÍA

Las concentraciones de Mo en geles de zirconio molibdeno (Zr-Mo) y geles de titanio molibdeno (Ti-Mo) fueron realizadas mediante la técnica de análisis por activación neutrónica y el uso de estándares externos. Los estándares utilizados para estos geles fueron 100 mg de óxido de molibdeno (MoO_3) en el caso de los geles Ti-Mo y mientras que en el caso de los geles Zr-Mo, se usó un estándar que contenía una mezcla de 50 mg óxido de molibdeno (MoO_3) y 50 mg óxido de zirconio (ZrO_2). El óxido de zirconio (ZrO_2) se preparó a partir de nitrato de zirconio [$\text{Zr}(\text{NO}_3)_4$], sometido durante 1 hora a 800°C con un aumento constante de la temperatura de $10^\circ\text{C}/\text{min}$.

Los geles y estándares fueron secados a 60°C por 24 Hrs, se pesaron 100 mg de cada uno de ellos y se colocaron en viales de polietileno de alta densidad. Una muestra y un estándar fueron entonces empacados juntos en un contenedor de polietileno.

Las muestras fueron irradiadas en el reactor TRIGA MARK III del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (México), a un flujo de neutrones de 1.6×10^{12} neutrones $\cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ por 15 minutos.

La determinación de actividad de cada gel y su estándar fue realizada en un detector de GeHp marca Canberra Modelo 7229P, acoplado a un analizador multicanal ACUSPECT-A (8k) y a una computadora personal. Los resultados se analizaron utilizando el software Gamma Acquisition & Analysis Genie 2000 marca CANBERRA, a una misma geometría y a un tiempo de conteo de 600 segundos. En este proceso se cuida que el tiempo muerto que esta produciendo nuestra muestra no sea mayor al 5% para evitar el tener datos erróneos. El fotopico utilizado para realizar el análisis correspondiente fue el pico de 181.3 KeV para ^{99}Mo .

Para calcular la concentración de Mo en los geles, se usó la ecuación 1:

$$c_x = \left(\frac{A_x}{A_e e^{\lambda t_{en}}} \right) \left(\frac{m_e c_e}{m_x} \right) \quad \dots (1)$$

donde m_x es la masa total del gel, A_x la actividad del gel irradiado para molibdeno, m_e la masa total del estándar, C_x la concentración de Mo en el gel, C_e la concentración de Mo en el estándar y A_e la actividad de Mo en el estándar, después de su irradiación. λ es la constante de decaimiento del molibdeno y t_{en} es la diferencia en horas, del tiempo de lectura entre la muestra y el estándar



4. RESULTADOS

En la síntesis de los geles Ti-Mo se utilizó Mo natural que al ser irradiado produce las reacciones nucleares mostradas en la tabla 1 [Sek-91]. El ^{99}Mo se cuantificó por ser el radioisótopo que cuenta con una vida media ($t_{1/2}$) adecuada para realizar el análisis.

ISOTOPO NATURAL	REACCION	VIDA MEDIA ISÓTOPO FORMADO	Energía gamma KeV
^{92}Mo 14.84 %	$^{92}\text{Mo} (n, \gamma) ^{93m}\text{Mo}$	^{93}Mo 3500 años	Rayos-X
^{94}Mo 9.3 %	$^{94}\text{Mo} (n, \gamma) ^{95}\text{Mo}$	^{95}Mo estable	
^{95}Mo 15.9 %	$^{95}\text{Mo} (n, \gamma) ^{96}\text{Mo}$	^{96}Mo estable	
^{96}Mo 16.7 %	$^{96}\text{Mo} (n, \gamma) ^{97}\text{Mo}$	^{97}Mo estable	
^{97}Mo 9.6 %	$^{97}\text{Mo} (n, \gamma) ^{98}\text{Mo}$	^{98}Mo estable	
^{98}Mo 24.1 %	$^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99}\text{Mo}$	^{99}Mo 66.7 h	140.51, 151 , 181.060, 739.47
^{100}Mo 9.6 %	$^{100}\text{Mo} (n, \gamma) ^{101}\text{Mo}$	^{101}Mo 14.62 m	191.9, 590.8 , 1012.35

Tabla 1. Radioisótopos formados al irradiar molibdeno.

4.1 Geles Zr-Mo

Los porcentajes de Mo en los geles Zr- Mo se presentan en la tabla 2. A relaciones molares Zr:Mo cercanas a 1:1, el porcentaje para el Mo es aproximadamente 30 %. De acuerdo con las condiciones de preparación de los geles Zr-Mo mostradas en la tabla 2 observamos que no existe una influencia de la concentración de cloruro de zirconilo en el porcentaje de molibdeno final del gel. Sin embargo si existe un efecto del pH de los molibdatos utilizado en la síntesis de estos geles. Por ejemplo a pH ácidos la concentración de Mo es del 23% y a pH neutro del 38%.

Gel Zr-Mo	Zr:Mo teórico	pH [Mo]	[Mo] (M)	[ZrOCl ₂ *8H ₂ O] [M]	pH gel	% Mo
S3P1	1:1	4.5	0.62	0.045	4.5	28.71
S3P2	1:1	4.5	0.62	0.1	4.5	31.24
S3P3	1:1	4.5	0.62	0.5	4.5	30.52
S3P4	1:1	4.5	0.62	0.1	4.5	33.68
S3P5	1:1	4.5	0.62	0.1	4.5	28.22
S4P1	1:1	1.0	0.62	0.1	4.5	28.73
S4P2	1:1	2.8	0.62	0.1	4.5	23.16
S4P3	1:1	3.8	0.62	0.1	4.5	26.85
S4P4	1:1	4.5	0.62	0.1	4.5	29.56
S4P5	1:1	6.0	0.62	0.1	4.5	38.07
S4P6	1:1	7.0	0.62	0.1	4.5	

Tabla 2. Concentración de molibdeno en los geles Zr-Mo

4.2 Geles Ti-Mo

Los porcentajes de Mo en los geles Ti- Mo se presentan en la tabla 3. Los geles Ti-Mo se ven afectados en las concentraciones de Mo por factores como: las relaciones molares Ti:Mo, el orden de adición de las soluciones de



molibdatos y titanio durante su síntesis, el pH final de los geles y el lavado de los geles antes de ser irradiados. Los geles presentan mayor porcentaje de molibdeno cuando el pH del gel es 5.4 (33%) en tanto que cuando los geles presentan pH extremos este porcentaje disminuye entre un 5 y 10%. En los geles lavados hay mayor porcentaje de Mo que en los geles sin lavar, así como se encuentra mayor presencia de Mo en los geles sintetizados adicionando la solución de titanio a la solución de molibdeno.

Gel	Orden * adición	Ti:Mo	pH [Mo]	[Mo] (M)	TiCl ₄ [M]	pH gel	Lavado	% Mo
MoTi-1	Ti a Mo	1:1	4.5	0.67	0.802	0.30	No	28.48
MoTi-4	Ti a Mo	1:1	4.5	0.67	0.828	9.6	Si	23.24
MoTi-5	Ti a Mo	1:1	4.5	0.67	0.828	5.4	Si	33.86
TiMo-6	Mo a Ti	1:1	4.5	0.67	0.828	5.4	Si	37.83
TiMo-7	Mo a Ti	1:2	4.5	0.67	0.828	5.4	Si	35.42
TiMo-8	Mo a Ti	2:1	4.5	0.67	0.828	5.4	No	24.99
MoTi-9	Ti a Mo	2:1	4.5	0.67	0.828	5.4	Si	28.80
MoTi-10	Ti a Mo	1:2	4.5	0.67	0.828	5.4	Si	43.23
TiMo-11	Mo a Ti	1:1	7	0.67	0.115	5.4	No	35.52
TiMo-12	Mo a Ti	1:1	7	0.67	0.115	5.4	No	36.86
TiMo-13	Mo a Ti	1.5:1	4.5	0.67	0.563	5.4	Si	30.82
TiMo-14	Mo a Ti	1.5:1	4.5	0.67	0.299	5.4	Si	13.60
TiMo-15	Mo a Ti	1:1	4.5	0.67	0.563	5.4	Si	38.12
TiMo-16	Mo a Ti	1:1	4.5	0.67	0.563	5.4	No	13.76
TiMo-18	Mo a Ti	1:1	4.5	0.67	0.563	5.4	Si	34.20
TiMo-19	Mo a Ti	1:1	4.5	0.67	0.299	5.4	Si	36.56
TiMo-20	Mo a Ti	1:1	4.5	0.67	0.100	5.4	Si	38.35
TiMo-21	Mo a Ti	2:1	4.5	0.67	0.563	5.4	Si	8.38

Tabla 3. Concentración de molibdeno en los geles Ti-Mo.

5. CONCLUSIONES

En el caso de los geles Zr-Mo, el pH de las soluciones de molibdatos utilizadas durante la síntesis de estos geles influye en el contenido de Mo. En general el porcentaje de Mo en los geles es aproximadamente del 30%. En tanto que en los geles Ti-Mo se obtiene mayor porcentaje de Mo, 35% aproximadamente. En este caso los factores que más afectan la presencia del molibdeno en los geles son: orden de adición de las soluciones y las relaciones molares Ti: Mo.

6. BIBLIOGRAFÍAS

[Con-02] A. Contreras Ramírez. SÍNTESIS Y CARACTERIZACIÓN DE MOLIBDATOS DE ZIRCONIO. Tesis de Licenciatura, ITT – ININ, 2002.

[Bar-03] Monroy-Guzman, Edna Selene Barron Santos and Sabino Hernandez. SYNTHESIS INSTALLATION OF ZIRCONIUM-⁹⁹MOLYBDATE GELS TO ⁹⁹Mo/^{99m}Tc GENERATOR F. En prensa, Synthesis and Applications of Isotopically Labelled Compounds. Vol 8.

[Dia-03] L. Díaz Archundia. EVALUACIÓN DE LA INFLUENCIA DE PH EN LA EFICIENCIA DEL GENERADOR ⁹⁹MO/^{99m}Tc A BASE DE MOLIBDATO DE ZIRCONIO. Tesis de Licenciatura, ITT-ININ, 2003.



[Itur-03] J. Iturbe García. Proceeding of the “XXXVIII Congreso Mexicano de Química” in Cd. Ixtapa Zihuatanejo, Mexico, Septiembre 21 al 25, 2003.

[Mon-03] F. Monroy-Guzmán, L. V. Díaz Archundia and A. Contreras Ramírez. EFFECT OF Zr:Mo RATIO ON ^{99m}Tc GENERATOR PERFORMANCE BASED ON ZIRCONIUM MOLYBDATE GELS. . Applied Radiation and Isotopes. 59(1), 27-34, 2003

[Mon-04] F. Monroy-Guzmán, O. Cortés Romero, L. Longoria, T. Martínez Castillo. TITANIUM MOLYBDATE GEL AS $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ GENERATOR MATRIX. En prensa, Synthesis and Applications of Isotopically Labelled Compounds. Vol 8.

[Sek-91] Y. Seki, H. Kawasaki, N. Yamamuro and S. Lijima. REVISED GRAPHS OF ACTIVATION DATA FOR FUSION REACTOR APPLICATIONS. JAERI-M 91-109. Japan Atomic Energy Research Institute, 1991.