

# <sup>57</sup>Co PRODUZIDO EM CÍCLOTRON

Liliane Landini e João Alberto Osso Júnior

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP  
Caixa Postal 11049  
05508-900, São Paulo, Brasil

## RESUMO

O Cíclotron *CV-28* do *IPEN-CNEN/SP* é um acelerador de partículas, utilizado, principalmente, na produção de radioisótopos, aplicados em Diagnóstico “in vivo” na Medicina Nuclear. Alguns deles são empregados na calibração dos equipamentos de Diagnóstico, como detectores de raios-X e gama. O <sup>57</sup>Co é um exemplo desta aplicação. Foi utilizada uma folha de Níquel natural como alvo e feixe de prótons de 24MeV de energia. A análise radioativa do alvo irradiado foi feita por Espectroscopia Gama com um detector de Ge(HP). Uma fonte de 259,74MBq (7,02mCi) de <sup>57</sup>Co foi preparada, após 67dias do último bombardeamento, com níveis de impureza de 1,13% de <sup>56</sup>Co e 1,29% de <sup>58</sup>Co. Os rendimentos de produção de alvo grosso para o <sup>57</sup>Co e as principais impurezas radionuclídicas foram medidos, após a separação química do alvo irradiado, corrigidos para o fim do último bombardeamento: 1,076MBq (29,09μCi)/μA.h, 0,012MBq(0,33μCi)/μA.h e 0,014MBq (0,37μCi)/μA.h, para o <sup>57</sup>Co, <sup>56</sup>Co e <sup>58</sup>Co, respectivamente.

## I. INTRODUÇÃO

Radioisótopos são produzidos artificialmente por reações nucleares que ocorrem em aceleradores e reatores nucleares. Porém, somente cíclotrons ou reatores são capazes de produzi-los com atividades suficientemente altas, de interesse prático. No caso da utilização de Cíclotrons, a produção pode ser muito variada, dependendo, obviamente, da característica de cada um. Alguns radioisótopos possuem propriedades físicas de decaimento adequadas para serem utilizados, tanto em Diagnóstico por imagem “in vivo”, na Medicina Nuclear (com as técnicas de *SPECT* e *PET*, *Single Photon Emission Tomography* – Tomografia por Emissão de Fóton Único e *Positron Emission Tomography* – Tomografia por Emissão de Pósitron, respectivamente), como fontes de calibração de diversos instrumentos na área nuclear e na metrologia em particular, ou então, como traçadores radioativos de elementos investigados em diversas áreas, como: Química, Física e Biologia. No primeiro caso, podem ser citados o <sup>11</sup>C, <sup>13</sup>N, <sup>15</sup>O, <sup>18</sup>F, <sup>57</sup>Co, <sup>58</sup>Co, <sup>67</sup>Ga, <sup>77</sup>Br, <sup>111</sup>In, <sup>123</sup>I, <sup>201</sup>Tl, além de outros; no segundo, <sup>57</sup>Co, <sup>109</sup>Cd, <sup>49</sup>V e <sup>55</sup>Fe; e no terceiro, <sup>111</sup>In, <sup>109</sup>Cd, etc.

O <sup>57</sup>Co é um radioisótopo muito utilizado como fonte de calibração de câmaras gama. Estes detectores convertem fótons emitidos por um determinado radiofármaco (radioisótopo ligado a um composto químico) já administrado no paciente (por via oral, intravenosa ou inalção) e mostra uma imagem da distribuição do elemento no órgão a ser estudado. São obtidas imagens de alta qualidade, estáticas e dinâmicas. Outros instrumentos na

área nuclear, como detectores de raios-X e raios γ: Ge(Li), Ge(HP) e NaI(Tl); e calibradores de radioisótopos (detectores de poço), também podem ser calibrados com <sup>57</sup>Co. Além destas, podem ser citadas outras aplicações, tais como [1]:

- fonte radioativa na técnica de Espectroscopia Mössbauer, que é bem estabelecida em Física e Química;
- marcador e dimensionador, estimando o tamanho e localização de órgãos (neste caso, sendo administrado no paciente);
- marcador “in vitro”, em kits de Diagnóstico, para o estudo de Anemia relacionada à deficiência e má absorção de vitamina B<sub>12</sub> (*Teste de Schilling*);
- marcador da Bleomicina (droga utilizada em Quimioterapia), para detecção de tumores. Seu uso não é mais amplo, em virtude de sua meia-vida longa, apesar da dose absorvida ser relativamente baixa;
- em Dosimetria Interna, no estudo da distribuição e retenção de Cobalto nos tecidos reprodutores de ratos machos, após injeção intravenosa de solução radioativa com <sup>57</sup>Co.

As características físicas do <sup>57</sup>Co são [2]:

- meia-vida de 271,3dias;
- decaimento por captura eletrônica para o <sup>57</sup>Fe;
- emissão de raios γ de energias de 14,4 keV (abundância de 7,8%), 122,56keV (84,8%), 136keV (11,4%) e 690keV (0,2%), além do raio-X característico da camada K do Fe, com energia de 6,5keV (48%).

O  $^{57}\text{Co}$  é um radioisótopo produzido em Ciclotrons e em Reatores Nucleares. No Ciclotron modelo *CV-28*, compacto, de energia variável (*The Cyclotron Corporation - TCC*), do *IPEN-CNEN/SP*, a operação é feita, atualmente, somente utilizando-se feixes de prótons de 2 a 24MeV de energia (este modelo também é capaz de acelerar dêuterons,  $^3\text{He}^{++}$  e partículas alfa). É possível produzir  $^{57}\text{Co}$  empregando-se estas 4 partículas. Das que utilizam prótons, como  $\text{Co}+p$ ,  $\text{Fe}+p$  e  $\text{Ni}+p$ , o primeiro método gera quantidades menores de impurezas radionuclídicas, porém necessita-se, no melhor caso, de 40MeV de energia. Sendo assim, a irradiação de Ni com prótons, é o método que gera o maior rendimento de produção de  $^{57}\text{Co}$  e é o mais adequado na produção deste radioisótopo, neste Ciclotron. O Instituto adquiriu um novo Ciclotron, o *Cyclone 30*, da empresa belga *IBA (Ion Beam Applications)*, capaz de acelerar prótons de 15 a 30MeV, mas este entrou em operação em 1999, somente para produção rotineira de  $^{18}\text{F}$  e  $^{123}\text{I}$ .

O objetivo deste trabalho foi produzir uma fonte radioativa de  $^{57}\text{Co}$  de alta atividade, do tipo *Flood Source*, através da irradiação de Níquel natural com feixe de prótons, utilizando-se o Ciclotron *CV-28* do *IPEN*.

## II. PARTE EXPERIMENTAL

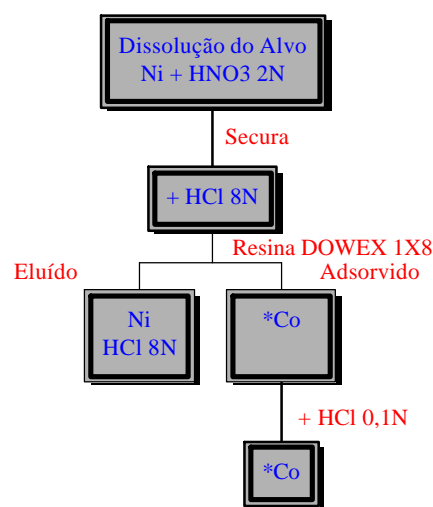
### *Flood Source* de $^{57}\text{Co}$ .

**Irradiações de Ni:** As irradiações foram realizadas na linha de feixe externo 4 do Ciclotron *CV-28* do *IPEN-CNEN/SP*, que possui um sistema de varredura, sendo o feixe desfocalizado em uma região de um colimador de 10mm de diâmetro. Foram feitas cinco irradiações descontínuas irregulares, em um período de um mês, em virtude das características de operação do Ciclotron *CV-28*. Apenas uma folha de Níquel natural, com 1mm de espessura e área de  $(25 \times 25)\text{mm}^2$ , foi usada como alvo de alta pureza - 99,98% (*Goodfellow Metals*). A refrigeração do alvo foi feita com água e diretamente na parte traseira da folha. A carga total acumulada foi de  $242\mu\text{A.h}$  e o tempo total de irradiação foi de 20,45h.

**Separação Química de Ni-Ni\*-Co\*.** Após um intervalo de 46dias do último *EOB*, foi dado início ao processo de separação química do  $^{57}\text{Co}$  (que pode ser produzido diretamente ou pelo decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ , isto é, por via direta e indireta, respectivamente). O método baseia-se na retenção de  $^{57}\text{Co}$  em Resina de Troca Aniônica e sua eluição, através da adição de HCl (Ácido Clorídrico), de acordo com Osso Jr. [3]. A resina adotada para a realização da separação química do  $^{57}\text{Co}$  foi a *Analytical Grade Anion Exchange Resin DOWEX 1X8*, 50-100 mesh, *Chloride Form (Bio-Rad Laboratories)*. A ativação da resina foi feita de acordo com Santos [4] e posteriormente transferida para a coluna de vidro da separação química, com 2cm de diâmetro, até o preenchimento com 6cm de altura de resina. Em seguida, foram adicionados à coluna cerca de 200mL de HCl 8N, para condicionamento da resina. A placa sólida de  $^{nat}\text{Ni}$  irradiada foi dissolvida com 40mL de  $\text{HNO}_3$  (Ácido

Nítrico) 2N, à quente, sem chegar à ebulição. Para acelerar o processo de dissolução da placa, foi adicionado  $\text{HNO}_3$  concentrado ( $\pm 20\text{mL}$ ). A solução foi, a seguir, levada à secura e retomada com 20mL de HCl 8N. Esta solução (carga) foi adicionada à coluna e, em seguida, 50mL de HCl 8N foram percolados. Nestas condições, o Ni é eluído e somente o Co radioativo retido na resina. Após terminada esta eluição, 20mL de HCl 0,1N foram adicionados, para retirar, agora, todo o Co. Amostras do alvo irradiado dissolvido, do eluído de Ni e do eluído de Co foram coletadas para análise no detector de *Ge(HP)*. A Figura 1 mostra o diagrama de separação química do  $^{57}\text{Co}$ .

Figura 1: Diagrama de separação química do  $^{57}\text{Co}$ .



**Pureza Radionuclídica.** A atividade de cada radionuclídeo identificado no alvo irradiado, após a separação química, foi obtida a partir de suas respectivas transições gama principais, utilizando-se um detector de *Ge(HP)* acoplado a um sistema de aquisição e tratamento de dados, que foram processados, posteriormente, via microcomputador, através do programa *Maestro II MCA (EG&G Ortec)*.

## III. RESULTADOS E DISCUSSÕES

### *Flood Source* de $^{57}\text{Co}$ .

**Irradiações de Ni.** Reações nucleares do tipo  $(p,x)$  ocorreram, produzindo os seguintes radioisótopos:  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ , em virtude da composição natural do Ni ( $^{58}\text{Ni}$ -68,27% de abundância;  $^{60}\text{Ni}$ -26,10%;  $^{61}\text{Ni}$ -1,13%;  $^{62}\text{Ni}$ -3,59% e  $^{64}\text{Ni}$ -0,91%) [5]. O  $^{56}\text{Co}$  e o  $^{57}\text{Co}$  podem ser produzidos diretamente ou indiretamente, neste último caso, pelo decaimento do  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ , respectivamente. O  $^{58}\text{Co}$  é produzido somente por via direta. As características principais de decaimento de cada radionuclídeo são mostradas na Tabela 1.

Tabela 1: Características físicas de decaimento dos radionuclídeos identificados nas amostras de  $^{nat}\text{Ni}$  irradiadas com feixe de prótons.

Radionuclídeo	Meia-vida	$E_g$ (keV)	$I_g$ (%)
$^{55}\text{Co}$	17,54h	931,10	75
$^{56}\text{Co}$	78,76d	846,77	99,9
$^{57}\text{Co}$	271,3d	122,56	84,8
$^{58}\text{Co}$	70,78d	810,77	99,4
$^{56}\text{Ni}$	6,1d	158,38	98,8
$^{57}\text{Ni}$	36h	1377,63	81,7

**Separação Química de Ni-Ni\*-Co\*.** O método de separação química apresentou resultados muito bons. A presença de Níquel foi facilmente acompanhada pela coloração esverdeada da solução, que desapareceu após a percolação com HCl 8N. O rendimento de separação de  $^{57}\text{Co}$  foi maior que 93%. A concentração de Ni foi menor que 2ppm.

Das amostras coletadas para análise, a do eluído do Co é a mais importante. Assim, na data da remessa do pedido havia, no total, 266,4MBq (7,2mCi) de Co, sendo enviados 6mCi com:  $^{57}\text{Co}$  - 97,58%;  $^{56}\text{Co}$  - 1,13% e  $^{58}\text{Co}$  - 1,29%.

Como a primeira medida no detector de Ge(HP) foi feita 60dias após o último EOB, só havia 0,11% da atividade de  $^{56}\text{Ni}$  e este não foi identificado na amostra de eluído do Co. O rendimento de produção de  $^{57}\text{Co}$ , após a separação química, na data da remessa, era de 1,073MBq/ $\mu\text{A.h}$  (29,09 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ), 67dias após o último EOB, mostrando ser um valor muito bom de acordo com Osso Jr. [3].

A fonte de calibração de  $^{57}\text{Co}$  de 222MBq (6mCi) fornecida mostrou a capacidade do Cíclotron CV-28 para esta produção. O uso da fonte no Centro de Medicina Nuclear, em São Paulo, foi apresentado por Dias Neto et al [6]. Neste estudo, foi avaliada a uniformidade do sistema de uma câmara de cintilação gama, com a flood source e comparada com uma fonte comercial sólida de  $^{57}\text{Co}$  e uma fonte líquida de  $^{99m}\text{Tc}$  ( $t_{1/2}=6\text{h}$ ;  $E_\gamma=140,51\text{keV} - 85\%$ ). Os resultados mostraram a vantagem do uso desta fonte de  $^{57}\text{Co}$ , inclusive o custo que é mais baixo.

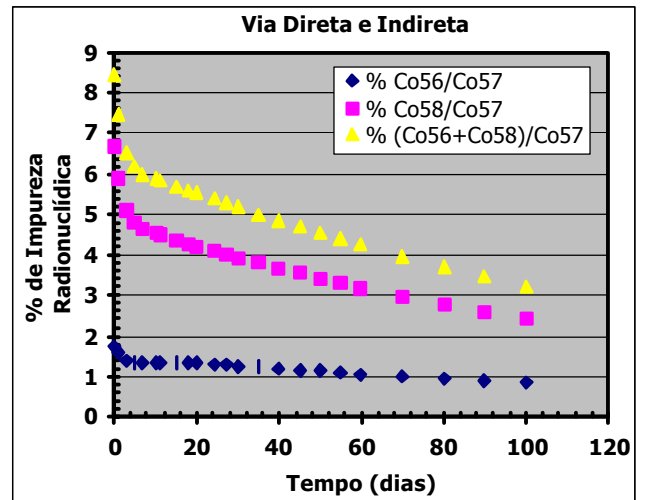
**Pureza Radionuclídica.** Somente as atividades dos radionuclídeos  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$  foram medidas, pois o  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$  já haviam decaído, quando as primeiras análises foram realizadas (60 dias após o último EOB).

Visando a produção de  $^{57}\text{Co}$  com o mínimo nível de impureza radionuclídica e maximizando o seu rendimento, foi feita uma análise com os dados obtidos para rendimento de alvo grosso.

As impurezas radionuclídicas que podem ser encontradas neste tipo de produção de  $^{57}\text{Co}$  são:  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$ . Em virtude da meia-vida curta do  $^{55}\text{Co}$  (17,54h), este contaminante pode ser eliminado após 10dias de decaimento.

Se forem consideradas as reações direta e indireta para a produção de  $^{57}\text{Co}$ , o nível de impurezas de  $^{56}\text{Co}$  (também, via direta e indireta) e  $^{58}\text{Co}$  é elevado, como é mostrado na Figura 2. No tempo máximo de crescimento do  $^{57}\text{Co}$ , o nível destas impurezas é de cerca de 6%, caindo para cerca de 4% após 60dias de decaimento.

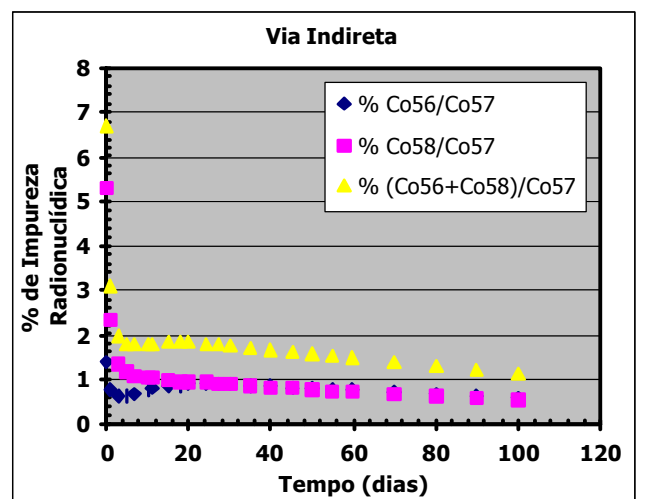
Figura 2: Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$



produzido direta e indiretamente, utilizando os valores experimentais obtidos para alvo grosso.

Caso a opção seja a produção via decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ , o nível destas impurezas é reduzido, como mostra a Figura 3.

Figura 3: Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$  produzido indiretamente, utilizando os valores



experimentais obtidos para alvo grosso.

Para estes cálculos, assumiu-se que:

- é necessário realizar a separação química para isolar o  $^{57}\text{Ni}$  dos isótopos de Co produzidos diretamente, principalmente do  $^{58}\text{Co}$ ;
- a separação química se inicia 2 horas após o EOB e dura cerca de 1 hora;
- o rendimento de separação de Co é de 93% e a perda de Ni no processo é desprezível.

Neste caso, 11,31dias após a separação química, o nível de  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$  é cerca de 1,8%, caindo para 1% após 60dias.

Uma proposta é aproveitar o  $^{57}\text{Co}$  presente na fase de separação química junto com os isótopos de Co produzidos diretamente, após um tempo adequado de decaimento.

Uma outra forma de minimizar o nível de impurezas, é utilizar um intervalo de energia de 20-14MeV, porque acima do valor maior, há uma contribuição significativa de  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Ni}$ . Isto porém acarretaria uma perda de pelo menos 30% no rendimento de  $^{57}\text{Ni}$ .

#### IV. CONCLUSÕES

Para diminuição do nível de impurezas radionuclídicas, foi proposto um método, utilizando, a princípio, a produção de  $^{57}\text{Co}$  pelo decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ , empregando-se uma separação química adequada. Os níveis de  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$  podem, ainda, ser diminuídos se o rendimento de separação química for melhorado.

Os rendimentos de produção de  $^{57}\text{Co}$  obtidos nas irradiações de alvo grosso de Ni, demonstraram a viabilidade de seu uso. O desempenho da separação química mostra ser viável a preparação de uma fonte mista de  $^{57}\text{Co}$  com atividades elevadas.

#### REFERÊNCIAS

- [1] LANDINI, L. **Estudo e otimização de uma nova técnica de produção de  $^{57}\text{Co}$  em Cíclotron, através da irradiação de Ni com prótons e desenvolvimento de um alvo composto de Ni e Ag, para produção simultânea de  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$ .** São Paulo, 2000. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- [2] REUS, U.; WESTMEIER, W. **Catalog of Gamma Rays from Radioactive Decay**, Atomic Data and Nuclear Data Tables, vol.29, No.2, p. 193-406, 1983.
- [3] OSSO Jr., J.A. **Produção de Fontes de Calibração e/ou Traçadores Radioativos com o Cíclotron CV-28.** Proceedings in ... III ENAN, vol.II, 1995. Águas de Lindóia, SP, Brasil. p. 1034-1036.
- [4] SANTOS, L.L.M. **Desenvolvimento de Sistema de Irradiação de Água Natural para a produção de  $^{18}\text{F}$  no Cíclotron do IPEN.** São Paulo, 1994. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
- [5] SEELMANN-EGGEBERT, W.; PFENNIG, G.; MUNZEL, H. and KLEWE-NEBENIUS, H. **Karsruher Nuklidkarte**, Auflage, 1981.
- [6] DIAS-NETO, A; SILVA, C.P.G.; OSSO Jr., J.A. **A new refillable Cobalt-57 flood phantom to measure camera uniformity.** Proceedings in ... XV Congresso da Associação Latino Americana de Sociedades de Biologia e Medicina Nuclear, Lima, Peru, 1997.

The Cyclotron CV-28 of IPEN-CNEN/SP is a particle accelerator, used mainly in the radioisotope production, applied in “in vivo” Diagnosis in Nuclear Medicine. Some of them are employed in the calibration of Diagnosis equipments, such as gamma and X-rays detectors.  $^{57}\text{Co}$  is an example of this application. A natural nickel foil was used as target and irradiated with proton beams of 24MeV energy. The radioactivity analysis of the irradiated target was performed by Gamma Spectroscopy with a HPGe detector. A 259,74MBq (7,02mCi)  $^{57}\text{Co}$  source was prepared, 67days after the last bombardment, with impurity levels of 1.13% for  $^{56}\text{Co}$  and 1.29% for  $^{58}\text{Co}$ . The thick target yields for  $^{57}\text{Co}$  and for the main radionuclidic impurities were measured, after the chemical separation of the irradiated target, extrapolated to the last EOB: 1.076MBq (29.09 $\mu\text{Ci}$ )/ $\mu\text{A.h}$ , 0.012MBq (0.33 $\mu\text{Ci}$ )/ $\mu\text{A.h}$  and 0.014MBq (0.37 $\mu\text{Ci}$ )/ $\mu\text{A.h}$ , for  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$  and  $^{58}\text{Co}$ , respectively.

#### ABSTRACT