



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO

**DESENVOLVIMENTO DE UM MÉTODO DE PREPARAÇÃO DE
UM TRAÇADOR DE ESTANHO, O ^{117m}Sn , A PARTIR DA
IRRADIAÇÃO DE ESTANHO NATURAL COM FEIXE
DE PRÓTONS DO CÍCLOTRON DO IPEN**

VANESSA MORAES

Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do Grau
de Mestre em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear - Aplicações

Orientador:
Dr. João Alberto Osso jr.

**São Paulo
2000**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

**DESENVOLVIMENTO DE UM MÉTODO DE
PREPARAÇÃO DE UM TRAÇADOR DE ESTANHO,
O ^{117m}Sn , A PARTIR DA IRRADIAÇÃO DE ESTANHO
NATURAL COM FEIXE DE PRÓTONS DO
CÍCLOTRON DO IPEN.**

VANESSA MORAES

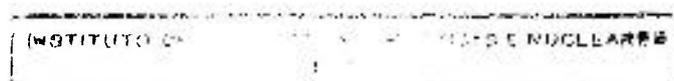


Dissertação apresentada como parte dos requisitos para obtenção do grau de Mestre em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear - Aplicações

Orientador:
Dr. João Alberto Osso Jr.

São Paulo

2000



Aos meus pais, Altair e Aparecida.

AGRADECIMENTOS

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares pela oportunidade concedida para a realização deste trabalho.

À Dra. Constância Pagano Gonçalves da Silva, chefe do Centro de Radiofarmácia, por tornar possível este trabalho.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) pelo apoio financeiro.

Ao Dr. João Alberto Osso Jr. pela orientação deste trabalho, pelos conhecimentos transmitidos, pela sincera amizade, pelo apoio prestado nos momentos mais difíceis e por acreditar que este trabalho poderia ser concluído.

Aos funcionários do Ciclotron e do Reator pelos serviços prestados na irradiação das amostras.

À Profª. Marisa P. Menezes por revisar a parte gramatical do trabalho.

Aos meus pais pela paciência e incentivo constantes.

Às minhas irmãs Ana Paula, Luciana e Érika por incentivarem as minhas atividades acadêmicas.

Às amigas mestras Renata Corrêa Nieto e Tatiana Lavinias pela amizade, pelo apoio e colaboração no desenvolvimento deste trabalho.

Às minhas amigas Patrícia de Andrade Martins e Glaucimara de Freitas e Silva por me ouvirem e me incentivarem nos momentos mais difíceis.

Ao Renato Brito pela paciência de *scanear* todas as figuras deste trabalho.

À Luciana Corrêa pela orientação na utilização dos recursos do Word.

A todos os funcionários do Centro de Radiofarmácia por contribuírem, de alguma maneira, para a realização deste trabalho.

Aos funcionários da biblioteca pelos serviços prestados.

A todos aqueles que, de uma maneira ou de outra, ajudaram e acreditaram na realização deste trabalho.

Desenvolvimento de um método de preparação de um traçador de estanho, o ^{117m}Sn , a partir da irradiação de estanho natural com feixe de prótons do Cíclotron do IPEN.

Vanessa Moraes

RESUMO

Este trabalho tem por objetivo a preparação de um traçador de estanho a partir da análise das propriedades nucleares dos isótopos deste elemento. Foram selecionados três traçadores em potencial: ^{113}Sn , ^{117m}Sn e ^{119m}Sn . Escolheu-se o ^{117m}Sn , porque ele possui características favoráveis de decaimento para utilização como traçador do SnCl_2 na marcação de moléculas orgânicas com ^{99m}Tc e também pelo seu potencial para utilização em radioterapia. Ele é preparado através da irradiação do estanho natural com feixe de prótons do Cíclotron CV-28 do IPEN/CNEN-SP, através das reações nucleares $^{\text{nat}}\text{Sn} (p, xn)^{117}\text{Sb} \rightarrow ^{117m}\text{Sn}$. Os rendimentos de produção do ^{117m}Sn e dos principais radioisótopos produzidos foram determinados e o método de separação de Sn/Sb escolhido foi a troca aniônica, Este método permite a separação química destes elementos e é adequado para utilização com material radioativo. Foram desenvolvidos métodos químico, radioquímico e radionuclídico para o controle de qualidade do produto final, o ^{117m}Sn .

Development of a preparation method of a tin tracer, ^{117m}Sn , through the irradiation of natural tin with a proton beam at IPEN's Cyclotron.

Vanessa Moraes

ABSTRACT

The subject of this paper is the preparation of a tin tracer and after analyzing the nuclear properties of the tin isotopes, three potential tracers were selected: ^{113}Sn , ^{117m}Sn and ^{119m}Sn . ^{117m}Sn was chosen because it has suitable characteristics of decay to be used as a tracer of SnCl_2 in the labeling of organic molecules with ^{99m}Tc and also due to its potential in radiotherapeutical applications. It's prepared by the irradiation of natural tin with a proton beam at the CV-28 Cyclotron of IPEN-CNEN/SP through nuclear reactions $^{\text{nat}}\text{Sn} (p, xn)^{117}\text{Sb} \rightarrow ^{117m}\text{Sn}$. The production yields of ^{117m}Sn and the main radioisotopes produced were measured and the Sn/Sb separation method of choice was the anion exchange. This method allows the chemical separation of these elements and it is suitable for use with radioactive material. It was also developed chemical, radiochemical and radionuclidic methods for the quality control of the final product, ^{117m}Sn .

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO.....	1
1.1. MEDICINA NUCLEAR.....	1
1.2. TÉCNICAS DE DIAGNÓSTICO.....	5
1.2.1. <i>Tomografia Computadorizada por Emissão de Pósitrons (PECT)</i>	5
1.2.2. <i>Tomografia Computadorizada por Emissão de Fóton Único (SPECT)</i>	7
1.3. TERAPIA.....	9
1.3.1. <i>Terapia com feixe externo</i>	10
1.3.2. <i>Braquiterapia</i>	10
1.3.3. <i>Injetáveis</i>	11
1.4. PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS EM REATORES NUCLEARES.....	16
1.5. PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS EM CÍCLOTRON.....	20
1.6. ESTANHO-117M.....	23
1.6.1. <i>Agente terapêutico para tumores ósseos</i>	23
1.6.2. <i>Traçador radioativo na marcação de moléculas com ^{99m}Tc</i>	24
1.7. REAÇÕES NUCLEARES PARA PRODUÇÃO DE ESTANHO-117M.....	26
1.8. HISTÓRICO DO ESTANHO-117M.....	28
1.9. PROPRIEDADES DO ESTANHO.....	29
1.10. PROPRIEDADES DO ANTIMÔNIO.....	33
1.11. CROMATOGRAFIA DE TROCA IÔNICA.....	36
1.11.1. <i>Materiais Trocadores de Íons</i>	38
1.11.2. <i>Resinas de Troca Iônica</i>	38
1.11.3. <i>Equilíbrio de Troca Iônica</i>	39
2. OBJETIVO.....	42
3. MATERIAIS E MÉTODOS.....	44
3.1. EQUIPAMENTOS.....	44
3.2. DETERMINAÇÃO DO RENDIMENTO DE ALVO GROSSO DOS RADIOISÓTOPOS PRODUZIDOS NA ATIVAÇÃO DE ESTANHO NATURAL NO CÍCLOTRON CV-28.....	44
3.3. DETERMINAÇÃO DO ESTANHO.....	48
3.3.1. <i>Preparação da Solução Padrão de Estanho</i>	48
3.4. DETERMINAÇÃO DO ANTIMÔNIO.....	49
3.4.1. <i>Preparação da Solução Padrão de Antimônio e da Solução de KI - NaH₂PO₂</i> 49	
3.4.2. <i>Procedimento</i>	50
3.5. ESTUDO DO COMPORTAMENTO EM RESINA DE TROCA IÔNICA.....	50
3.5.1. <i>Preparação da Resina de Troca Iônica</i>	52
3.5.2. <i>Preparação da Solução Carga</i>	53
3.5.3. <i>Percolação da Solução Carga pela Resina</i>	53
3.5.4. <i>Lavagem</i>	54
3.5.5. <i>Deteção dos Radioisótopos</i>	54

3.6.	ESTUDO DO COMPORTAMENTO DO AGENTE OXIDANTE NA RESINA ANIÔNICA	54
3.7.	ESTUDO DO COMPORTAMENTO QUÍMICO DO ESTANHO NA RESINA DE TROCA ANIÔNICA.....	56
3.8.	ESTUDO DO COMPORTAMENTO QUÍMICO DO ANTIMÔNIO NA RESINA DE TROCA ANIÔNICA.....	56
3.9.	CONTROLE DE QUALIDADE DO $^{117\text{M}}\text{SN}$	57
3.9.1.	<i>Pureza Química</i>	57
3.9.2.	<i>Pureza Radioquímica</i>	57
3.9.3.	<i>Pureza Radiométrica</i>	58
4.	RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	59
4.1.	DETERMINAÇÃO POR ESPECTROMETRIA GAMA DOS RADIOISÓTOPOS PRODUZIDOS NA IRRADIAÇÃO.....	59
4.1.1.	<i>Determinação do Rendimento de Irradiação</i>	59
4.2.	CURVA DE CALIBRAÇÃO DO ESTANHO.....	60
4.3.	CURVA DE CALIBRAÇÃO DO ANTIMÔNIO	62
4.4.	RESULTADOS DOS ESTUDOS DO COMPORTAMENTO EM RESINA DE TROCA IÔNICA..	65
4.4.1.	<i>Resina de Troca Catiônica</i>	65
4.4.2.	<i>Resina de Troca Aniônica</i>	67
4.5.	RESULTADOS DO ESTUDO DO COMPORTAMENTO DO AGENTE OXIDANTE.....	69
4.5.1.	<i>Hidrazina em pó</i>	69
4.5.2.	<i>Solução de Hidrazina quando o alvo não é levado à secura</i>	70
4.5.3.	<i>Solução de Hidrazina quando o alvo é levado à secura</i>	72
4.6.	RESULTADOS DO ESTUDO DO COMPORTAMENTO QUÍMICO DO ESTANHO NA RESINA DE TROCA ANIÔNICA	74
4.7.	COMPORTAMENTO QUÍMICO DO ANTIMÔNIO NA RESINA DE TROCA ANIÔNICA	75
4.8.	CONTROLE DE QUALIDADE DO $^{117\text{M}}\text{SN}$	76
4.8.1.	<i>Pureza Química</i>	76
4.8.2.	<i>Pureza Radioquímica</i>	76
4.8.3.	<i>Pureza Radiométrica</i>	76
5.	CONCLUSÃO.....	81
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	83

1. INTRODUÇÃO

1.1. MEDICINA NUCLEAR

A Medicina Nuclear é a área da Medicina que utiliza materiais radioativos para diagnósticos e terapia de doenças.

O desenvolvimento da Medicina Nuclear está intimamente relacionado com o desenvolvimento da radioatividade, como se vê na Tabela 1.

Tabela 1. Histórico das Aplicações de Traçadores Radioativos.^{1, 2}

Ano	Desenvolvimento	Pesquisador
1913	Utilização de radioelementos como traçadores em Química e Física.	Hevesy
1913	Proposta do nome "isótopos".	Soddy
1924	Utilização de traçadores de chumbo em plantas.	Hevesy
1927	Primeiro estudo médico com radioisótopos naturais: medida da velocidade do fluxo de sangue com ²²² Ra.	Blumgart e Weiss
1930	Descobrimto do ciclotron.	Laurence e Livingston
1932	Descoberta do nêutron.	Chadwick
1934	Produção artificial de radionuclídeos.	Casal Curie
1934	Radioatividade por bombardeamento com nêutrons: reações de captura neutrônica.	Enrico Fermi
1934	Descoberta do processo Szilar-Chalmers para preparação de nuclídeos com alta atividade específica.	Szilar e Chalmer

1934	Identificação do isótopo do ^{15}O .	Livingston e McMillan
1934	Descoberta do ^{18}F .	Snell
1934	Descoberta do ^{13}N .	Lauritsen e Crane
1934	Produção de ^{11}C via reação $^{11}\text{B}(p, n)$.	Lauritsen e Crane
1935	Utilização do contador Geiger Muller em aplicações com traçadores.	Hevesy
1935	Estudos do metabolismo de fósforo em ratos com ^{32}P .	Chievitz e Hevesy
1937	Utilização clínica do sódio radioativo.	Hamilton e Stone
1937	Utilização da radioatividade do fósforo para estudos de leucemia.	Laurence, Scott e Tuttle
1938	Estudos da radioatividade do iodo na fisiologia da tireóide.	Herts, Roberts e Evans
1938	Descoberta da fissão do urânio.	Hahn e Strassmann
1938	Estudos da absorção da radioatividade dos nuclídeos de Na, K, Cl, Br e I em pacientes humanos normais.	Hamilton
1939	Estudos do metabolismo do iodo pela tireóide e a utilização do radioiodo em vários tipos de bócio.	Hamilton e Soley
1940	Descoberta do ^{14}C .	Ruben e Kamem
1940	Utilização do ^{89}Sr no tratamento de metástases ósseas de câncer de próstata.	Pecher
1940	Utilização do ^{18}F em estudos de absorção de flúor em dentina, ossos e hidroxiapatita.	
1941	Aplicação de radiotraçadores em Biologia e Medicina.	Hamilton

1941	Radioatividade do iodo na terapia de doença de Graves.	Hertz e Roberts
1941 - 1942	Desenvolvimento do conceito do estado dinâmico dos constituintes do corpo.	Schoenheimer
1942	Aplicação terapêutica do radiofósforo e do radioiodo.	Hamilton e Lawrence
1942	Construção e operação do primeiro reator nuclear na Universidade de Chicago, Estados Unidos.	Fermi e colaboradores
1945	Marcação do CO com ^{14}C para estudos do metabolismo do CO_2 por inalação em humanos.	Tobias e colaboradores
1945 - 1946	Terapia com colóides radioativos por diversas vias de injeção.	Hahn e Sheppard
1948	Primeira utilização do ^{60}Co no tratamento de câncer na Universidade do Estado de Ohio.	
1948	Medida do funcionamento dos rins com ^{131}I -iodohipurato.	Tubis
1948	Desenvolvimento do gerador de $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ e do $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.	Tucker e colaboradores
1950	Desenvolvimento do radioimunoensaio.	Berson e Yalow
1954	Formação da Sociedade de Medicina Nuclear nos Estados Unidos.	
1960	Primeira utilização do gerador de $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ na Universidade de Chicago.	
1960	Estudos da circulação e medidas de perfusão cerebral com ^{133}Xe .	Larsen
Início da década de 70	Início da utilização dos radioisótopos ^{67}Ga , ^{111}In e ^{123}I para diagnósticos em Medicina Nuclear.	
1973	Utilização do ^{201}Tl como análogo ao potássio para estudos do fluxo de sangue no coração.	

1941	Radioatividade do iodo na terapia de doença de Graves.	Hertz e Roberts
1941 - 1942	Desenvolvimento do conceito do estado dinâmico dos constituintes do corpo.	Schoenheimer
1942	Aplicação terapêutica do radiofósforo e do radioiodo.	Hamilton e Lawrence
1942	Construção e operação do primeiro reator nuclear na Universidade de Chicago, Estados Unidos.	Fermi e colaboradores
1945	Marcação do CO com ^{14}C para estudos do metabolismo do CO_2 por inalação em humanos.	Tobias e colaboradores
1945 - 1946	Terapia com colóides radioativos por diversas vias de injeção.	Hahn e Sheppard
1948	Primeira utilização do ^{60}Co no tratamento de câncer na Universidade do Estado de Ohio.	
1948	Medida do funcionamento dos rins com ^{131}I -iodohipurato.	Tubis
1948	Desenvolvimento do gerador de $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ e do $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$.	Tucker e colaboradores
1950	Desenvolvimento do radioimunoensaio.	Berson e Yalow
1954	Formação da Sociedade de Medicina Nuclear nos Estados Unidos.	
1960	Primeira utilização do gerador de $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ na Universidade de Chicago.	
1960	Estudos da circulação e medidas de perfusão cerebral com ^{133}Xe .	Larsen
Início da década de 70	Início da utilização dos radioisótopos ^{67}Ga , ^{111}In e ^{123}I para diagnósticos em Medicina Nuclear.	
1973	Utilização do ^{201}Tl como análogo ao potássio para estudos do fluxo de sangue no coração.	

1986 Início da utilização dos radioterápicos emissores β^- e elétrons de conversão como ^{153}Sm , ^{186}Re e $^{117\text{m}}\text{Sn}$.

Os requisitos básicos para os radionuclídeos serem utilizados em Medicina Nuclear são:

- ◆ meia-vida física compatível com os estudos a serem realizados;
- ◆ toxicidade baixa;
- ◆ pureza radionuclídica, radioquímica e química adequadas;
- ◆ atividade específica alta;
- ◆ disponibilidade rápida e preço baixo;
- ◆ possibilidade de marcação para preparação de radiofármacos.

Os diagnósticos em Medicina Nuclear podem ser realizados por meio de ensaios radiométricos de duas maneiras: “in vitro” e “in vivo”.

Os ensaios “in vitro” ou radioimunoensaio consistem em testes de laboratório em que uma quantidade do ^{125}I é medida, em amostras biológicas, por competitividade das ligações. Estes testes podem ser utilizados para medir proteínas, hormônios e drogas através do sangue, urina e outros fluidos biológicos.

Os estudos “in vivo” necessitam que um radioisótopo seja injetado no paciente com um fármaco adequado (radiofármaco), que irá se localizar na região de interesse, conforme a especificidade do exame. A administração do radiofármaco pode ser por via oral ou parenteral.³

1.2. TÉCNICAS DE DIAGNÓSTICO

1.2.1. Tomografia Computadorizada por Emissão de Póstrons (PECT)

A técnica está baseada na detecção em coincidência de dois fótons de 511 keV, emitidos em direções opostas, depois da aniquilação de um pósitron de um radionuclídeo emissor de pósitrons (β^+) e um elétron do meio. Os dois fótons são detectados por dois detectores conectados em coincidência no mesmo eixo. Os dados coletados em diversos ângulos, ao longo do eixo do corpo do paciente, são utilizados para reconstruir as imagens da distribuição da atividade da área de interesse.

Os radioisótopos utilizados nesta técnica emitem pósitrons com energia baixa, taxa de emissão alta e possuem meia-vida física curta. Os radioisótopos mais utilizados são mostrados na Tabela 2.^{4, 5, 6}

Tabela 2. Radioisótopos emissores de pósitrons utilizados em PET e suas respectivas meias-vidas.⁷

Radioisótopos	Meia-Vida (min)
^{11}C	20,4
^{13}N	9,96
^{15}O	2,07
^{18}F	109,8
^{30}P	2,50
^{68}Ga	68,1
^{75}Br	98,0
^{77}Kr	75,2

A Figura 1 apresenta um esquema dos detectores de um sistema PET.

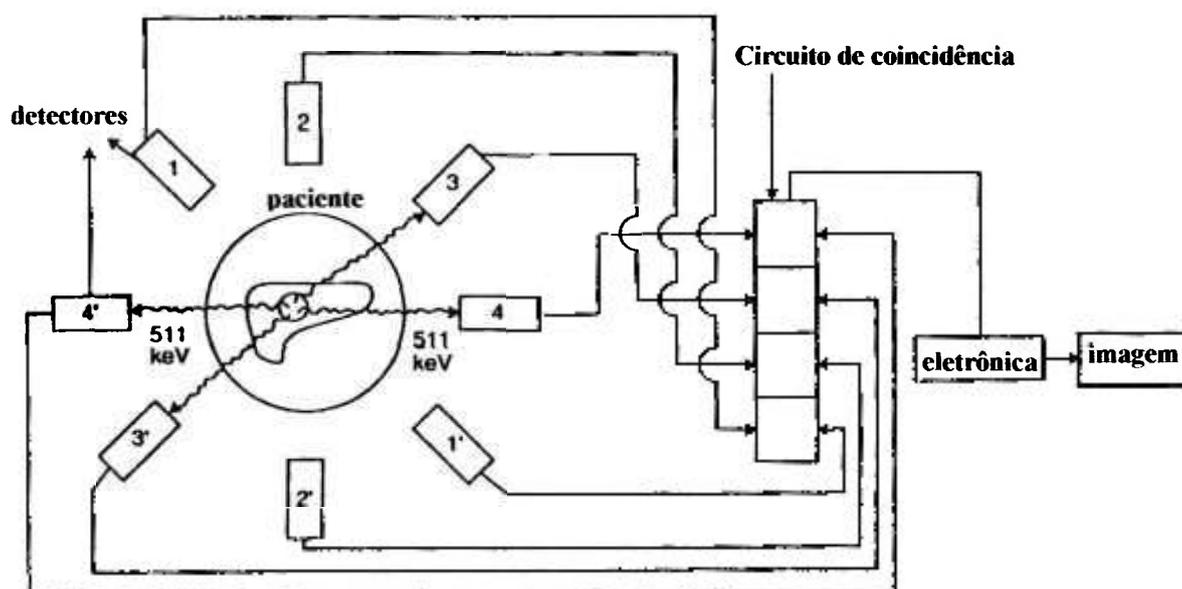


Figura 1. Esquema dos detectores de um sistema PET.⁴

1.2.2. Tomografia Computadorizada por Emissão de Fóton Único (SPECT)

Esta técnica é utilizada para obter imagens tridimensionais e dinâmicas de órgãos ou tecidos de pacientes que se submetem a diagnósticos com traçadores radioativos. Esses radioisótopos devem emitir radiação gama com energia entre 100 a 300 keV, devem decair por captura eletrônica ou transição isomérica e não devem emitir radiação corpuscular para minimizar a dose de radiação para o paciente. Devem, também, possuir meia-vida física adequada ao estudo fisiológico de interesse.

A Tabela 3 apresenta alguns radioisótopos utilizados em SPECT.

Tabela 3. Radioisótopos utilizados em SPECT.⁷

Radioisótopos	Meia-Vida
^{67}Ga	78,3 h
^{77}Br	57,0 h
$^{81\text{m}}\text{Kr}$	13,0 s
$^{99\text{m}}\text{Tc}$	6,00 h
^{111}In	67,9 h
^{123}I	13,0 h
^{131}I	8,00 d
^{201}Tl	73,0 h

A maioria dos sistemas SPECT contém uma gamacâmara com 1 a 3 detectores de NaI (Tl), acoplado a um sistema computadorizado de aquisição e processamento dos dados, os quais são estocados e posteriormente utilizados para reconstrução das imagens dos planos de interesse.

A cabeça do detector gira em torno do eixo longitudinal do paciente em ângulos pequenos até totalizar 180° ou 360° .^{4, 5, 6, 8}

A Figura 2 apresenta o esquema de uma gamacâmara utilizada em tomografia computadorizada por emissão de fóton único e a Figura 3 apresenta o esquema de cortes de uma imagem tomográfica, tanto de PET como de SPECT.

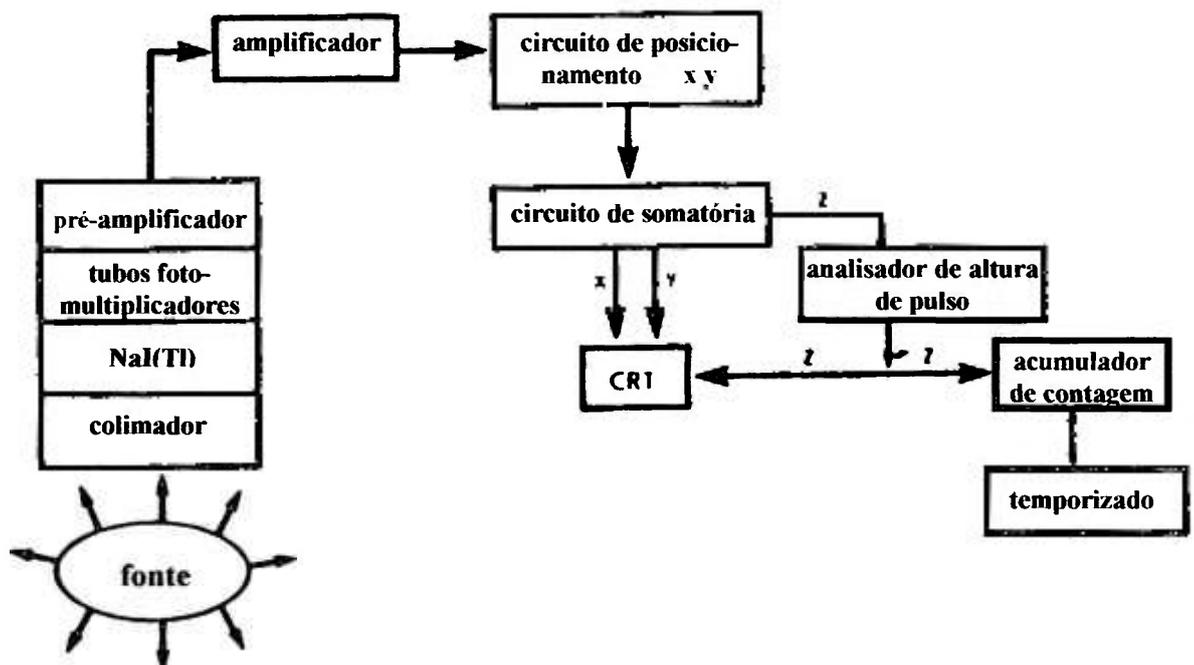


Figura 2. Esquema de uma Gamacâmara.⁴

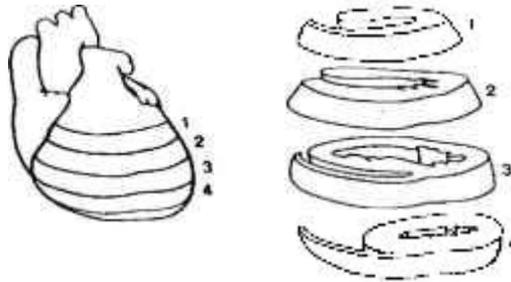


Figura 3. Esquema de uma Imagem Tomográfica.⁴

1.3. TERAPIA

Depois da descoberta dos raios-X e da radioatividade, seguiu-se grande interesse pela investigação dos efeitos das radiações ionizantes em tumores. O progresso da terapia com radiações foi determinado pela produção de fontes adequadas.

Na década de 40, com o desenvolvimento dos reatores e aceleradores de partículas, pôde-se obter um grande número de radionuclídeos como fontes seladas e não seladas.⁹

Existem três técnicas de radioterapia:

- ◆ terapia com feixe externo (teleterapia);
- ◆ terapia com fonte selada (braquiterapia);
- ◆ terapia com fontes não-seladas (injetáveis).

1.3.1. Terapia com feixe externo

Este método pode utilizar dois tipos de feixes. O primeiro tipo de feixes são raios-X de alta energia produzidos por aceleradores lineares e o segundo, são feixes de raios gama de fontes seladas que contêm radioisótopos como o ^{60}Co ou ^{137}Cs .⁹

1.3.2. Braquiterapia

Este método utiliza fontes radioativas seladas de radionuclídeos emissores de fótons, as quais são colocadas dentro do tumor ou imediatamente adjacentes a ele. A vantagem da utilização deste método é que as células tumorais recebem doses altas de radiação, enquanto que os tecidos normais acabam recebendo doses muito pequenas.

As fontes seladas são confeccionadas com materiais radioativos encapsulados com um invólucro de metal, que serve para evitar o escape de material e também para absorver as partículas beta.

A Tabela 4 apresenta alguns radionuclídeos utilizados em fontes seladas.⁹

Tabela 4. Radionuclídeos utilizados em fontes seladas para braquiterapia.⁹

Radionuclídeo	Energia do Fóton (keV)	Meia - Vida
⁶⁰ Co	1171 1332	5,30 a
¹³⁷ Cs	662	30,0 a
¹⁹² Ir	317 468	74,0 d
¹²⁵ I	35	60,0 d
¹⁹⁸ Au	412	2,70 d
²²⁶ Ra/ ²²² Rn	186	1600 a

1.3.3. Injetáveis

No final da década de 30, o radioiodo, o radiofósforo e o radioestrôncio foram os primeiros radioisótopos utilizados na Medicina Nuclear para aplicações terapêuticas e foram chamados de 1ª geração de radioterápicos.

O avanço da Química Farmacêutica, o melhor entendimento da interação da radiação com a matéria em nível celular e molecular e a disponibilidade de radionuclídeos com características físicas apropriadas permitiram o surgimento de novos radionuclídeos para este fim e que podem ser chamados de 2ª geração: cobre-67, holmio-166, rênio-186, rênio-188 e samário-153.

1.3.3.1. Radionuclídeos Emissores de Partículas Alfa

As partículas alfa são núcleos de átomos de hélio de alta energia que produzem alta densidade de ionização ao longo de uma trajetória linear e depositam sua energia num alcance curto. A alta transferência linear de energia limita a habilidade das células em reparar danos no DNA e a efetividade biológica relativa deste tipo de radiação resulta na inativação das células com poucas partículas.

A desvantagem do emissor alfa é que, para ser efetivo, é necessária a ligação do carregador com a maioria das células do câncer ou dos seus vizinhos mais próximos para irradiar todo o tumor.

A Tabela 5 apresenta alguns radionuclídeos emissores alfa com potencial terapêutico.^{10, 11}

Tabela 5. Radionuclídeos Emissores Alfa com Potencial Terapêutico.¹⁰

Radionuclídeo	Meia-Vida	Principal Energia
²¹² Bi	60,5 min	7,80 MeV
²¹¹ At	7,20 h	6,76 MeV
²⁵⁵ Fm	20,10 h	7,00 MeV

1.3.3.2. Radionuclídeos Emissores de Partículas Beta

As partículas beta nada mais são do que elétrons emitidos pelos núcleos dos átomos, porém com grande quantidade de energia e alcance.

O alcance dessas partículas varia de micrometros a alguns centímetros e é

muito maior do que o das partículas alfa e essa propriedade permite ao agente terapêutico depositar, com maior seletividade, a radiação nas células tumorais do que nas células saudáveis.

Sua transferência linear de energia é baixa, devido à densidade de ionização ser espalhada nos tecidos ao longo da sua trajetória.

As Tabelas 6, 7 e 8 apresentam radionuclídeos emissores beta que podem ser produzidos por reatores nucleares, aceleradores de partículas ou obtidos através de geradores.^{10,11}

Tabela 6. Radionuclídeos Emissores Beta com Meia - Vida menor que 15 dias produzidos em Reatores Nucleares por Ativação Direta de Alvos Estáveis com Nêutrons.¹⁰

Radionuclídeo	Meia - -Vida	Energia β média (MeV)	Energia γ (keV) a_γ (%)	Nuclídeo Alvo	Seção de Choque (barns)
¹⁶⁵ Dy	2,30 h	1,34	95 (4,0 %)	¹⁶⁴ Dy	1697
¹⁰⁹ Pd	13,50 h	1,03	88 (3,6 %)	¹⁰⁸ Pd	8,8
¹⁸⁸ Re	17,00 h	2,11	155 (15,0 %)	¹⁸⁷ Re	73,2
¹⁶⁶ Ho	1,10 d	1,60	81 (6,3 %)	¹⁶⁵ Ho	58
¹⁵³ Sm	1,95 d	0,80	103 (29,0 %)	¹⁵² Sm	220
⁹⁰ Y	2,70 d	2,27	-	⁸⁹ Y	1,3
¹⁸⁶ Re	3,70 d	1,07	137 (9,0 %)	¹⁸⁵ Re	106
¹⁷⁷ Lu	6,70 d	0,50	113 (6,4 %) 208 (11,0 %)	¹⁷⁶ Lu	2100
¹⁵⁹ Er	9,60 d	0,34	-	¹⁵⁸ Er	2,0
³² P	14,30 d	1,71	-	³¹ P	0,18
⁸⁹ Sr	53,00 d	1,46	-	⁸⁸ Sr	0,006

Tabela 7. Radionuclídeos Emissores Beta com Meia - Vida menor que 15 dias Produzidos com Atividade Específica Alta. ¹⁰

Radionuclídeo	Meia - -Vida	Energia β (MeV)	Energia γ (keV)	Reação Nuclear	Seção de Choque (barns)
Reatores Nucleares					
¹⁰⁶ Rh	1,4 d	0,57	319 (19 %) 306 (5,0 %)	¹⁰⁴ Ru(n, γ , β^-) fissão	0,50
⁷⁷ As	1,6 d	0,68	239 (1,6 %)	⁷⁶ Ge(n, γ , β^-)	0,15
¹⁴⁹ Pm	2,2 d	1,07	286 (3,0 %)	¹⁴⁸ Nd(n, γ , β^-)	1,50
⁶⁷ Cu	2,4 d	0,57	184 (48 %) 92 (23 %)	⁶⁷ Zn(n, p)	0,0012
¹⁹⁹ Au	3,2 d	0,46	158 (37 %) 208 (8,0 %)	¹⁹⁸ Pt(n, γ , β^-)	3,60
¹⁷⁷ Lu	6,7 d	0,50	208 (11 %) 113 (6,0 %)	¹⁷⁶ Y(n, γ , β^-)	3,10
¹¹¹ Ag	7,5 d	1,05	342 (6,0 %)	¹¹⁰ Pd(n, γ , β^-)	0,36
¹³¹ I	8,0 d	0,81	364 (81 %) 637 (7,0 %)	¹³⁰ Te(n, γ , β^-) fissão	0,30
Aceleradores					
⁷⁷ As	1,6 d	0,68	239 (1,6 %)	⁸⁰ Se(p, α)	
⁶⁷ Cu	2,4 d	0,57	184 (48 %) 92 (23 %)	⁶⁸ Zn(p, 2p)	
⁴⁷ Sc	3,4 d	0,60	160 (73%)	⁴⁸ Ti (p, 2p)	
^{193m} Pt	4,3 d	0,13	-	¹⁹² Os(α , 3n)	
^{117m} Sn	14 d	0,13 e 0,16*	158 (87 %)	¹²¹ Sb(p, 2p, 3n)	

* elétrons de conversão

Tabela 8. Sistema de Geradores de Radionuclídeos Emissores Beta de Meia-Vida Curta. ¹⁰

Radionuclídeo	Meia - -Vida	Energia β (MeV)	Energia γ (keV)	Pai	Meia - Vida do Pai
^{115m} In	4,5 h	0,84 (5,0 %) 0,30 (49 %)	336 (46 %)	¹¹⁵ Cd	2,2 d
¹⁸⁸ Re	17,0 h	2,10	155 (15 %)	¹⁸⁸ W	69,4 d
⁹⁰ Y	64,0 h	2,27	-	⁹⁰ Sr	28,6 a
²¹² Bi	1,00 h	-	727 (12 %)	²²⁴ Ra/ ²¹² Pb	3,70 d

1.3.3.3. Radionuclídeos Emissores de Elétrons Auger

Elétrons Auger são aqueles produzidos em consequência do efeito fotoelétrico interno que gera os raios-X de baixa energia, quando um radionuclídeo decai por captura eletrônica.

A incorporação desses emissores nos núcleos das células produz alta radiotoxicidade que é resultado da deposição de quantidades concentradas de energia num volume pequeno de DNA nuclear.

Os agentes radioterápicos baseados em radionuclídeos emissores Auger exigem a incorporação do radiofármaco na população inteira das células do tumor portanto devem ser desenvolvidos métodos de orientação seletiva das células-alvo e de introdução desses radionuclídeos com boa seletividade no núcleo.

A Tabela 9 apresenta alguns radionuclídeos emissores Auger.^{10,11}

Tabela 9. Radionuclídeos que Decaem por Captura Eletrônica e Emitem Elétrons de Baixa Energia (principalmente Auger e Coster-Kronig).¹⁰

Radionuclídeo	Meia-Vida	Reações Nucleares
^{103m} Rh	58,0 min	¹⁰³ Ru / ^{103m} Ru
¹⁶⁵ Er	10,30 h	¹⁶⁵ Ho(p, n)
¹²³ I	13,30 h	¹²⁷ I(p, 5n, β ⁻) ¹²⁴ Xe(p, pn, EC)
¹¹⁹ Sb	1,60 d	¹²¹ Sb(p, 3n, EC)
¹⁹⁷ Hg	2,70 d	¹⁹⁷ Au(p, n)
⁹⁷ Ru	2,90 d	⁹⁶ Ru(p, γ)
²⁰¹ Tl	3,10 d	²⁰³ Tl(p, 3n, β ⁻)
⁶⁷ Ga	3,20 d	⁶⁸ Zn(p, 2n)
^{193m} Pt	4,30 d	¹⁹² Os(α, 3n) ¹⁹² Pt(n, γ)
¹²⁵ I	60,00 d	¹²⁴ Xe(n, γ, EC)

1.4. PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS EM REATORES NUCLEARES

Em 1942, após a 2ª Guerra Mundial, começou a ser operado o primeiro reator nuclear sem fins bélicos e em 1946 iniciou-se a produção de radionuclídeos em *Oak Ridge National Laboratories*, o que possibilitou estudos muito importantes sobre

radioatividade.

Nesta época, foram construídos muitos outros reatores nucleares nos Estados Unidos, União Soviética e Europa. Também foram desenvolvidos diversos instrumentos de medidas de radiação como cintiladores, câmaras de contilação, contadores de corpo inteiro, o que impulsionou a produção de uma variedade grande de radionuclídeos em diversas formas químicas. ¹

A atividade de um radionuclídeo produzido em reator é diretamente proporcional à massa do alvo, ao fluxo de nêutrons, à seção de choque de ativação, ao tempo de irradiação e à meia-vida do radionuclídeo.

$$A = \frac{m N_a \cdot f \cdot F \cdot \sigma \cdot \phi \cdot (1 - e^{-\lambda t})}{M} \quad (1)$$

Onde: m = massa do alvo (g);

N_a = número de Avogadro ($6,02 \cdot 10^{23}$);

f = fração isotópica do elemento irradiado;

F = fração do elemento que será ativado;

σ = seção de choque de ativação (barns);

ϕ = fluxo de nêutrons ($n \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$);

λ = constante de decaimento para o radioisótopo formado;

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$$

$T_{1/2}$ = tempo de meia-vida;

t = tempo de irradiação;

M = massa atômica do elemento alvo.

As principais reações nucleares que ocorrem nas irradiações de alvos em reatores são (n, γ) , (n, p) , (n, α) , $(n, 2n)$ e fissão (n, f) e os produtos formados são ricos em nêutrons e decaem, geralmente, por β^- .¹²

Os radionuclídeos produzidos pelas reações (n, γ) são isótopos do nuclídeo alvo e, excluindo os casos de enriquecimento por Szilard-Chalmers, o radionuclídeo produzido não é facilmente separado dos seus isótopos estáveis, o que diminui a sua atividade específica em comparação com a de um radionuclídeo livre de carregador.

A Tabela 10 apresenta alguns radionuclídeos produzidos em reator por reações (n, γ) e suas aplicações.

Tabela 10. Alguns Radionuclídeos Produzidos em Reator Nuclear por Reações (n, γ).

Radioisótopo	Meia - Vida	Método de Preparação	Utilização
^{99m}Tc	6,02 h	$^{99}\text{Mo}(n, \gamma) ^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99m}\text{Tc}$	Diagnóstico em Medicina Nuclear
^{111}Ag	7,45 d	$^{110}\text{Pd}(n, \gamma) ^{111}\text{Pd} \rightarrow ^{111}\text{Ag}$	Física Nuclear
^{113m}In	1,66 h	$^{112}\text{Sn}(n, \gamma) ^{113}\text{Sn} \rightarrow ^{113m}\text{In}$	Diagnóstico em Medicina Nuclear
^{125}I	60,14 d	$^{124}\text{Xe}(n, \gamma) ^{125}\text{Xe} \rightarrow ^{125}\text{I}$	Radioimunoensaio
^{131}I	8,06 d	$^{130}\text{Te}(n, \gamma) ^{131}\text{Te} \rightarrow ^{131}\text{I}$	Diagnóstico e Terapia em Medicina Nuclear

Quando em operação, os reatores nucleares produzem grandes quantidades de radioatividade, principalmente a que se refere aos produtos de fissão, os quais geralmente são de difícil tratamento.

Na fissão, os nêutrons são capturados pelo ^{235}U ou ^{239}Pu , os quais formam uma variedade grande de radionuclídeos, chamados de produtos de fissão. Aqueles com meia-vida média ou curta são produzidos pela irradiação do urânio natural ou enriquecido e muitos deles possuem interesse como traçadores biológicos, principalmente aqueles com números atômicos entre 30 e 66. Já aqueles com meia-vida mais longa, como o ^{137}Cs e o ^{90}Sr , devem ser convenientemente recuperados para não haver perdas no reprocessamento do combustível e nem contaminação dos radionuclídeos de interesse.¹

Os principais produtos de fissão e seus rendimentos são mostrados na Tabela 11.

Tabela 11. Produtos de Fissão e seus Rendimentos.¹

Radionuclídeos	Rendimento de Fissão (%)
⁹⁹ Mo	6,14
⁹⁰ Y	5,74
⁹⁰ Sr	5,89
⁹¹ Y	6,01
¹³⁷ Cs	6,18
¹³¹ I	2,84
¹⁴⁰ Ba	6,28

Desses produtos de fissão, o mais importante na área de Medicina Nuclear é o ⁹⁹Mo; pois decai por β^- para ^{99m}Tc, o qual é utilizado juntamente com substâncias orgânicas para diagnósticos de doenças.

1.5. PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS EM CÍCLOTRON

Cíclotron é um acelerador circular de partículas e o primeiro foi desenvolvido por E. O. Lawrence em 1930.

Esses aceleradores funcionam com a injeção de partículas no centro de uma câmara, as quais são aceleradas por um campo elétrico, ao mesmo tempo em que um campo magnético começa a agir nestas partículas. Como resultado da ação dos dois campos, as partículas descrevem um trajetória em espiral pelos eletrodos de cobre, chamados "des".

Depois de muitas revoluções, quando as partículas estão próximas da saída, a tensão de aceleração tem o seu valor máximo. Quanto maior o raio, maior será a energia das partículas aceleradas.^{13, 14}

A Figura 4 apresenta um esquema de um ciclotron.

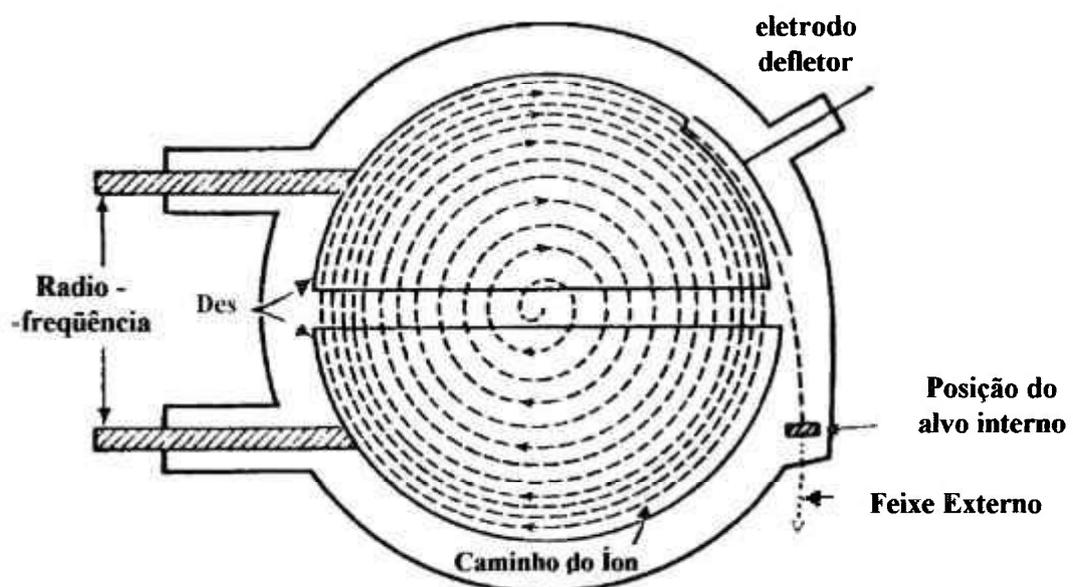


Figura 4. Esquema mostrando os "des" de um Ciclotron.¹⁴

Geralmente, a produção de radioisótopos em ciclotron é mais difícil, mais cara e em menor escala, pois um acelerador não poder ser utilizado para outro fim quando um bombardeamento está ocorrendo, e também não pode funcionar por períodos de tempo muito longos.

Os radionuclídeos produzidos em ciclotrons são geralmente deficientes em nêutrons, decaem por captura eletrônica ou por emissão de pósitrons, são livres de

carregador e têm atividade específica alta. Portanto possuem características adequadas para serem utilizados em diagnósticos.^{1, 7, 12}

A Tabela 12 apresenta alguns radionuclídeos produzidos em ciclotrons.

Tabela 12. Radionuclídeos produzidos em Ciclotrons.⁷

Radionuclídeo	Meia - Vida	Modo de Decaimento	Energia Gama keV (%)	Energia Beta (keV)
¹¹ C	20,4 min	β^+ (99,76) EC (0,24)	511	961
¹³ N	9,96 min	β^+ (100,0)	511	1190
¹⁵ O	112,10 s	β^+ (99,89) EC (0,110)	511	1723
¹⁸ F	110 min	β^+ (96,90) EC (3,10)	511	635
⁶⁷ Ga	78,30 h	EC (100,0)	93 (38,0) 185 (23,6) 300 (19,0)	-
⁷⁵ Br	95,5 min	β^+ (75,50) EC (24,50)	287 (91,6) 141 (6,90)	1740
⁷⁷ Br	57,04 h	β^+ (0,740) EC (99,26)	239 (22,8) 521 (22,1)	336
¹¹¹ In	2,830 d	EC (110,0)	245 (94,2) 171 (87,6)	-
¹²³ I	13,00 h	EC (110,0)	159 (82,9)	-
²⁰¹ Tl	73,50 h	EC (110,0)	167 (9,0) 135 (1,6)	-
²¹¹ At	7,210 h	EC (58,06) α (41,94)	687 (0,24)	5866*

* Energia Alfa

1.6. ESTANHO-117m

O Centro de Radiofarmácia do IPEN - CNEN/SP possui um programa destinado à produção rotineira de radioisótopos para uso em Medicina Nuclear. Os radioisótopos produzidos têm características físicas de decaimento que permitem seu uso em diagnósticos clínicos e/ou terapia.

Dentro deste programa, a produção do radioisótopo ^{117m}Sn torna-se interessante por abrir a possibilidade de duas aplicações:

1.6.1. Agente terapêutico para tumores ósseos

O ^{117m}Sn tem meia-vida de 14,0 dias e decai para ^{117}Sn (estável) por duas transições em cascata. A primeira é altamente convertida internamente e a segunda leva à emissão da radiação gama de 159 keV (abundância: 86,4%)¹⁵, que cai exatamente na faixa ideal de uso da técnica de diagnóstico chamada tomografia computadorizada por emissão de fóton único (SPECT).

As principais emissões de partículas são os elétrons de conversão de 126,8 keV (abundância: 64,8%) e de 151,6 keV (abundância: 26,1 %) ¹⁶.

Os elétrons de conversão de 126,8 keV têm um alcance de aproximadamente 0,3 mm de H₂O e podem fornecer uma dose alta de radiação local. Estudos preliminares em animais^{17, 18} mostraram que existe afinidade entre o complexo [$^{117m}\text{Sn}^{4+}$] ácido dietileno triaminpentacético (DTPA), o osso mineral e o tumor ósseo com

deposição baixa em tecidos macios.

Por causa do alcance pequeno dos elétrons de conversão do ^{117m}Sn , esse radiofármaco expõe menos a medula óssea e o corpo inteiro do que a emissão beta de energia alta do ^{32}P e do ^{89}Sr .¹⁹

Estudos preliminares em seres humanos²⁰ confirmaram os resultados em animais, com absorção exclusiva nos ossos. A relação entre a absorção no tumor e na medula óssea foi de 45:1.

Aplicações recentes do ^{117m}Sn em terapia de câncer ósseo mostram a viabilidade de sua utilização,^{21,22,23,24,25} o qual é comercialmente produzido em laboratório como *Oak Ridge National Laboratory*.²⁶

1.6.2. Traçador radioativo na marcação de moléculas com

^{99m}Tc

O radioisótopo mais utilizado para diagnósticos em Medicina Nuclear é o ^{99m}Tc , inclusive no Brasil.

Além das características ideais de decaimento do ^{99m}Tc , ele é fornecido à classe médica na forma do gerador $^{99}\text{Mo} - ^{99m}\text{Tc}$, que pode ser eluído e utilizado durante uma semana.

O ^{99m}Tc pode ser complexado a uma série de moléculas e produzir diferentes radiofármacos para diagnósticos de diversos órgãos ou tecidos no corpo humano. O ^{99m}Tc é

eluído do gerador na forma de pertecnetato, TcO_4^- , mas deve ser reduzido à TcO_2 para haver a complexação. O agente redutor utilizado é o SnCl_2 , que se encontra na formulação dos *kits* liofilizados de marcação de $^{99\text{m}}\text{Tc}$, juntamente com os agentes complexantes.

Após a reação de complexação, não se sabe a distribuição biológica do estanho, quando injetado junto com o radiofármaco. Para se fazer este tipo de estudo “in vivo”, é necessário adicionar um traçador radioativo de estanho com meia-vida compatível e emissão de radiação gama de fácil detecção.

1.6.2.1. Escolha do Radioisótopo de Estanho

Ao se analisarem as propriedades físicas dos isótopos radioativos de estanho, selecionam-se três traçadores em potencial: ^{113}Sn , $^{117\text{m}}\text{Sn}$ e $^{119\text{m}}\text{Sn}$; como mostra a Tabela 13.

Tabela 13. Propriedades Nucleares dos Traçadores de Estanho.

radionuclídeo	meia-vida	energia gama	decaimento
^{113}Sn	115 dias	255 keV	$^{113}\text{Sn} \longrightarrow ^{113\text{m}}\text{In}$
$^{117\text{m}}\text{Sn}$	14 dias	160 keV	$^{117\text{m}}\text{Sn} \longrightarrow ^{117}\text{Sn}$
$^{119\text{m}}\text{Sn}$	250 dias	25 keV	$^{119\text{m}}\text{Sn} \longrightarrow ^{119}\text{Sn}$

O ^{113}Sn tem meia-vida de 115 dias e emite radiação gama de 255 keV, mas tem a desvantagem de decair para o $^{113\text{m}}\text{In}$, de meia-vida de 99 minutos. Já o $^{119\text{m}}\text{Sn}$ tem meia-vida de 250 dias, decai para o ^{119}Sn estável, mas emite radiação gama de 25 keV, de difícil detecção experimental. Assim, como o $^{117\text{m}}\text{Sn}$ tem meia-vida menor, decai para ^{117}Sn

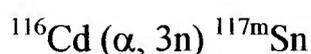
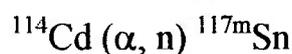
estável e emite radiação gama de fácil detecção, é o radioisótopo mais adequado para o estudo.

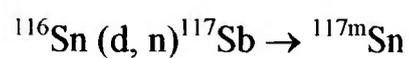
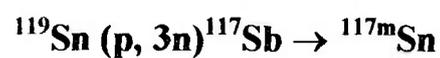
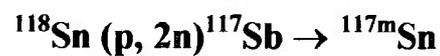
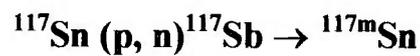
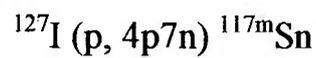
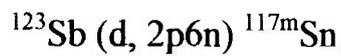
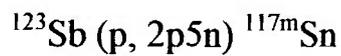
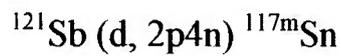
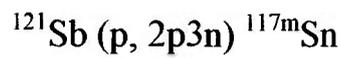
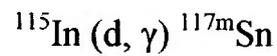
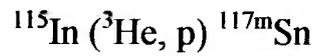
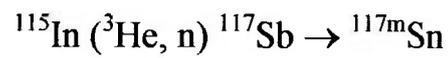
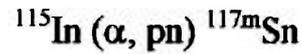
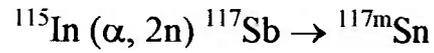
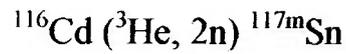
Portanto, o traçador radioativo de estanho mais adequado para esta aplicação é o ^{117m}Sn e, nas aplicações citadas, é importante obter-se o ^{117m}Sn com atividade específica alta.

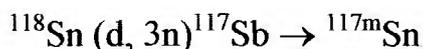
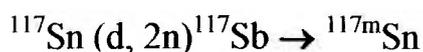
1.7. REAÇÕES NUCLEARES PARA PRODUÇÃO DE ESTANHO- 117m

O ^{117m}Sn é geralmente produzido pela reação $^{116}\text{Sn}(n,\gamma)^{117m}\text{Sn}$ num reator nuclear, isto é, com carregador. Entretanto, devido à seção de choque baixa da reação ($6 \pm 2\text{mb}$)²⁷ e à atividade específica baixa ($< 2\text{mCi/mg}$),^{28, 29} a alternativa é a produção de ^{117m}Sn sem adição de carregador, através de reações nucleares que ocorrem com feixes de partículas carregadas de um ciclotron.

O ^{117m}Sn pode ser obtido irradiando-se alvos de cádmio, índio, antimônio, iodo ou estanho em ciclotron; conforme as reações nucleares a seguir:







1.8. HISTÓRICO DO ESTANHO-117m

Fukushima e colaboradores,³⁰ em 1963 e Yano e colaboradores²⁸, em 1973, fizeram alguns testes de produção de poucos μCi de $^{117\text{m}}\text{Sn}$ pelas reações $^{114}\text{Cd} (\alpha, n)$ e $^{115}\text{In} (\alpha, pn+d)$.

Montgomery e Porile³¹, em 1969, determinaram as funções de excitação das reações $^{116}\text{Cd} (^3\text{He}, 2n)^{117\text{m}}\text{Sn}$ até 33 MeV e $^{116}\text{Cd} (\alpha, 3n)^{117\text{m}}\text{Sn}$ até 45 MeV.

Qaim e Döhler³², em 1984, mediram funções de excitação das reações induzidas por feixes de ^3He e de partículas alfa em cádmio e índio com energias de até 120 MeV (^3He) e 140 MeV (α) para a produção de ^{113}Sn e $^{117\text{m}}\text{Sn}$. A reação mais promissora foi a $^{115}\text{In} (\alpha, pn+d)^{117\text{m}}\text{Sn}$, com rendimento de alvo grosso de 9,2 $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ para a faixa de energia de 45 a 20 MeV, com impureza de ^{113}Sn de 0,22%.

Mausner e colaboradores³³, em 1986, realizaram um estudo de viabilidade de produção de $^{117\text{m}}\text{Sn}$ pela irradiação de antimônio natural com feixe de prótons. As funções de excitação foram medidas com feixes de prótons de energia de até 59,8 MeV. Um rendimento de saturação de 0,61 mCi/ μA de $^{117\text{m}}\text{Sn}$ foi obtido na faixa de energia de prótons de 38 a 55 MeV, com impureza de 0,02% de ^{113}Sn . Além disso, foi estudada a

possibilidade de aumentar a atividade específica de ^{117m}Sn produzido em reator nuclear.

Mausner e colaboradores³⁴, em 1992, aplicaram o método de Szilard-Chalmers para aumentar a atividade específica de ^{117m}Sn produzido em reator nuclear.

Em literatura, não se encontra nenhuma referência ao estudo de produção de ^{117m}Sn por reações nucleares que ocorram com energias correspondentes às de um ciclotron de energia média como o ciclotron CV-28 do IPEN-CNEN/SP.

A reação escolhida para este trabalho é a ativação de estanho natural com prótons pelas reações nucleares: $^{\text{nat}}\text{Sn} (p, xn)^{117}\text{Sb} \rightarrow ^{117m}\text{Sn}$, pois o ciclotron do IPEN acelera apenas feixes de prótons, o que limita a utilização de outras reações nucleares.

1.9. PROPRIEDADES DO ESTANHO

O estanho é o elemento químico que possui número atômico 50, massa atômica 118,710; distribuída segundo a abundância natural dos isótopos estáveis mostrada na Tabela 14.³⁵

O ponto de fusão do estanho metálico é de 232°C e o de ebulição é de 2687°C. Ele possui dois alótropos: estanho alfa ou estanho branco e o estanho beta ou cinza.

Tabela 14. Isótopos naturais do estanho.³⁵

isótopo	abundância natural (%)
¹¹² Sn	0,95
¹¹⁴ Sn	0,65
¹¹⁵ Sn	0,34
¹¹⁶ Sn	14,24
¹¹⁷ Sn	7,57
¹¹⁸ Sn	24,01
¹¹⁹ Sn	8,58
¹²⁰ Sn	32,97
¹²² Sn	4,71
¹²⁴ Sn	5,98

O alótropo alfa é estável abaixo de 18°C e cada átomo faz quatro ligações tetraédricas, o que resulta num cristal tridimensional de ligações covalentes, análogo a estrutura do carbono diamante. O alótropo beta é estável acima de 18°C e possui quatro átomos vizinhos bem próximos, o que proporciona a formação de um tetraedro planar e com os dois vizinhos mais distantes, resulta num octaedro distorcido.

O estanho metálico normalmente utilizado é o beta, embora a transição de temperatura seja próxima de 18°C. A conversão do branco para o cinza não ocorre a baixas temperaturas.

É um metal que não reage com o ar nem com a água à temperatura ambiente, mas, em altas temperaturas, forma um filme de óxido na superfície. Os ácidos diluídos atacam o estanho lentamente, formando sais de estanho II e hidrogênio. O ácido nítrico concentrado produz o óxido de estanho IV hidratado, chamado de ácido metaestânico. Ele

libera hidrogênio com soluções de álcali a quente para formar estanatos de álcalis.³⁵

Os potenciais de oxidação / redução são dados nas reações a seguir:³⁶

Reação	E°/V
$\text{Sn}^{2+} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{Sn}$	- 0,1375
$\text{Sn}^{4+} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{Sn}^{2+}$	+ 0,151
$\text{Sn}(\text{OH})_3^+ + 3\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{Sn}^{2+} + 3\text{H}_2\text{O}$	+ 0,142
$\text{SnO}_2 + 4\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{Sn}^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	- 0,094
$\text{SnO}_2 + 4\text{H}^+ + 4\text{e}^- \rightarrow \text{Sn} + 2\text{H}_2\text{O}$	- 0,117
$\text{SnO}_2 + 3\text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{SnOH}^+ + 2\text{H}_2\text{O}$	- 0,194
$\text{SnO}_2 + 2\text{H}^+ + 4\text{e}^- \rightarrow \text{Sn} + 4\text{OH}^-$	- 0,945
$\text{HSnO}_2^- + \text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{Sn} + 3\text{OH}^-$	- 0,909
$\text{Sn}(\text{OH})_6^{2-} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{HSnO}_2^- + 3\text{OH}^- + \text{H}_2\text{O}$	- 0,930

Os isótopos radioativos do estanho são mostrados na Tabela 15.

Tabela 15. Radioisótopos de Estanho.³⁷

radionuclídeo	meia-vida	tipo de decaimento	energia gama (keV)	abundância (%)
¹⁰⁸ Sn	10 min	β^+ e ϵ	24,21	40
			168	29
			271,3	50
			399,8	79
¹⁰⁹ Sn	18,1 min	ϵ	649,5	26,2
			1098	38,6
			1321	14,4
			1465	13
¹¹⁰ Sn	4 h	ϵ	283	95
¹¹¹ Sn	35 min	β^+ e ϵ	511	54
			1152,5	2,3
			1913,8	1,6
¹¹³ Sn	115 d	ϵ	255,08	2,07
			391,71	64,17
^{113m} Sn	20 min	TI	79,3	0,6
^{117m} Sn	14 d	TI	158,4	65
^{119m} Sn	250 d	TI	25,27	15,4
¹²¹ Sn	27 h	β^-	-	-
^{121m} Sn	50 a	TI	37,15	8
¹²³ Sn	129 d	β^-	1089	0,6
^{123m} Sn	39,5 min	β^-	159,7	84
¹²⁵ Sn	9,62 d	β^-	915,5	4,25
			1088,9	4,2
			2001,7	2,1
^{125m} Sn	9,7 min	β^-	332	99
¹²⁶ Sn	10 ⁶ a	β^-	87,7	47,5

^{127}Sn	2,1 h	β^-	1095,6	15,2
			1114,3	29,7
^{127m}Sn	4,4 min	β^-	490,9	100
			1348	5,3
			1564	4,4
^{128}Sn	59 min	β^-	500	61
			570	22

Onde: TI significa transição isomérica
 ϵ significa captura eletrônica

1.10. PROPRIEDADES DO ANTIMÔNIO

O antimônio é o elemento químico que possui número atômico 51, massa atômica 121,75; valor obtido da abundância de 57,25% do isótopo 121 e 42,75% do isótopo 123.

O ponto de fusão do antimônio metálico é de 630,74°C e o de ebulição é de 1587°C.

A forma estável do antimônio, a 25°C, é romboédrica; porém, em pressões altas, este cristal se transforma num cubo cujos átomos estão rodeados por outros seis átomos e estas mudanças representam a transição da estrutura metalóide.³⁵

Os potenciais de oxidação / redução são dados nas reações a seguir.³⁶

Reação	E°/V
$\text{Sb} + 3\text{H}^+ + 3\text{e}^- \rightarrow \text{SbH}_3$	- 0,510 V
$\text{Sb}_2\text{O}_3 + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^- \rightarrow 2\text{Sb} + 3 \text{H}_2\text{O}$	- 0,152 V
$\text{Sb}_2\text{O}_5 + 6\text{H}^+ + 4\text{e}^- \rightarrow 2\text{SbO}^- + 3 \text{H}_2\text{O}$	+ 0,581 V
$2\text{SbO}^- + 4\text{H}^+ + 3\text{e}^- \rightarrow 2\text{Sb} + 2 \text{H}_2\text{O}$	+ 0,212 V
$\text{SbO}_2^- + 2\text{H}_2\text{O} + 3\text{e}^- \rightarrow \text{Sb} + 4\text{OH}^-$	- 0,660V
$\text{SbO}_3^- + \text{H}_2\text{O} + 2\text{e}^- \rightarrow \text{SbO}_2^- + 2\text{OH}^-$	- 0,590 V

Os isótopos radioativos do antimônio estão na Tabela 16.

Tabela 16. Radioisótopos de Antimônio.³⁷

radionuclídeo	meia-vida	tipo de decaimento	energia gama (keV)	abundância (%)
¹¹⁰ Sb	23,0 s	β^-	984,0	35,0
			1213	100
			1245	17,0
¹¹¹ Sb	75,0 s	β^-	155,0	100
			489,0	31,0
¹¹² Sb	53,0 s	β^-	993,0	8,00
			1258	100
¹¹³ Sb	6,9 min	β^-	330,3	8,80
			496,5	83,0
¹¹⁴ Sb	3,6 min	β^-	891,0	15,0
			1300	100
¹¹⁵ Sb	31 min	$\beta^- \text{ e } \epsilon$	499,0	100
^{116m} Sb	60 min	$\beta^- \text{ e } \epsilon$	932,0	17,3
			973,5	16,8

¹¹⁶ Sb	15 min	$\beta^+ e \epsilon$	933,00	56,00
			1293,7	88,00
¹¹⁷ Sb	2,80 h	$\beta^+ e \epsilon$	158,50	88,00
^{118m} Sb	5,10 h	$\beta^- e \epsilon$	253,90	8,00
			1050,8	9,00
			1229,5	10,00
¹¹⁸ Sb	3,5 min	β^+	1230,0	4,00
¹¹⁹ Sb	38,00 h	$\beta^+ e \epsilon$	25,270	4,00
^{120m} Sb	5,800 d	e^-	197,20	89,00
			1023,06	99,00
			1171,28	100,0
¹²⁰ Sb	15,9 min	$\beta^+ e \epsilon$	707,00	0,180
			1171,2	2,100
^{122m} Sb	4,2 min	$\beta^+ e \epsilon$	61,600	50,00
¹²² Sb	2,700 d	$\beta^+, \beta^- e \epsilon$	564,08	63,00
			692,76	3,270
^{124m} Sb	93,00 s	$\beta^- e e^-$	498,40	19,70
			602,70	20,00
			645,70	20,00
¹²⁴ Sb	60,20d	β^-	602,71	98,10
			645,84	7,20
			722,78	10,80
			1691,04	50,00
¹²⁵ Sb	2,77 a	β^-	427,95	29,60
			600,77	18,40
^{126m} Sb	19,0 min	β^-	415,00	83,25
			665,00	86,00
			694,00	86,00

¹²⁶ Sb	12,5 d	β^-	414,7	81,00
			662,2	100,0
			695,1	100,0
¹²⁷ Sb	3,85 d	β^-	473	25,00
			685,5	35,70
			783,8	15,00
^{128m} Sb	10,8 min	β^-	743,24	100,0
			753,9	100,0
¹²⁹ Sb	4,320 h	β^-	543,8	16,20
			812,6	48,00
			914,7	20,80
¹³¹ Sb	23 min	β^-	642,1	18,63
			932,8	25,6
			943,6	46,6
¹³² Sb	3,13 min	β^-	783,3	8,30
			1021,1	100,0
¹³³ Sb	2,70 min	β^-	700,2	43,50
			978,9	58,50
			1096,7	26,50

1.11. CROMATOGRAFIA DE TROCA IÔNICA

O termo cromatografia é utilizado para demonstrar um número de técnicas de separação baseadas na distribuição do soluto entre a fase móvel e a fase estacionária, por diferenças de afinidades em processos de adsorção ou partição.

Os processos de adsorção envolvem a ligação de um composto à superfície

da fase estacionária sólida e o de partição, a solubilidade relativa de um composto em duas fases.^{38, 39}

A cromatografia de troca iônica inclui todas as separações químicas com materiais que possuem a propriedade de trocar íons e é utilizada para separar íons pequenos. É um fenômeno de difusão e nele se distinguem cinco estágios:³⁸

1. difusão do íon do meio da solução até a superfície da resina;
2. difusão do íon através da resina até os pontos de troca (grupos funcionais);
3. reação de troca (processo químico);
4. difusão do íon com a carga trocada da resina até a superfície;
5. difusão do íon da superfície da resina até o interior da solução.

As reações químicas que ocorrem nos processos de troca iônica possuem características importantes:

- a) as reações são reversíveis;
- b) são equivalentes;
- c) o potencial de troca aumenta com a carga do íon trocável;
- d) o potencial de troca aumenta com o número atômico para os íons do mesmo grupo periódico;

e) para vários íons, a afinidade de troca se torna cada vez mais parecida, à medida que a capacidade de troca e o cruzamento diminuem.³⁸

1.11.1. Materiais Trocadores de Íons

Muitas substâncias naturais e artificiais apresentam propriedades trocadoras de íons.

Um trocador iônico pode ser definido como um material que contém uma matriz, na qual os íons de carga positiva ou negativa são fortemente fixados. Para preservar a neutralidade elétrica, este sólido deve conter íons móveis ou deslocáveis de carga oposta.

Quando os íons fixos na matriz são positivos, os íons deslocáveis ou trocáveis são negativos e o trocador é chamado aniônico. No caso contrário, é chamado catiônico.^{38, 40}

1.11.2. Resinas de Troca Iônica

As modernas resinas sintéticas são hidrocarbonetos altamente polimerizados com ligações cruzadas contendo grupos ionizados. A estrutura fundamental da resina pode ser vista como um íon que não se difunde pela solução, e é composta por íons grandes, permeáveis e insolúveis. Esta estrutura está associada a um íon oposto (grupo ionogênico), de carga oposta menor, com livre ação para migrar para dentro e para fora da resina.^{38, 40, 41, 42, 43}

A porcentagem de divinilbenzeno introduzida no polímero durante a síntese da resina é importante, pois aquela controla a ligação cruzada (cross-linkage) da resina. Aumentando-se a porcentagem de DVB, a solubilidade, porosidade e inchamento da resina diminuem, mas sua rigidez aumenta. Assim nota-se que as resinas comerciais possuem de 8 a 12% de DVB.³²

Os principais requisitos para a utilização de uma resina de troca iônica são:^{32, 34, 35, 36}

- ◆ insolubilidade;
- ◆ estabilidade química;
- ◆ capacidade de troca iônica;
- ◆ difusão.

1.11.3. Equilíbrio de Troca Iônica

O processo de troca iônica envolve a substituição dos íons deslocáveis da resina A, pelos íons de mesma carga da solução B, o qual pode ser escrito da seguinte maneira:⁴²



O processo é reversível e com íons de mesma carga pode-se definir um coeficiente de seletividade K.

Os valores dos coeficientes de seletividade são obtidos experimentalmente e proporcionam um guia a respeito das afinidades relativas dos íons por uma determinada resina. Assim, se o coeficiente de solubilidade for menor que 1, a resina evidencia a preferência pelos íons B; enquanto que se o coeficiente de solubilidade for maior que 1, a preferência recai sobre os íons A.

O grau em que o íon é absorvido preferencialmente em relação a um outro íon na resina tem uma importância fundamental, pois determina a facilidade com que duas ou mais substâncias podem ser separadas por troca iônica. Isso determina também, a facilidade com que os íons podem ser removidos da resina.

Os fatores que determinam a distribuição dos íons inorgânicos entre uma resina de troca iônica e uma solução são:⁴²

1. Natureza dos íons permutantes:

a) Em concentrações aquosas baixas à temperatura ambiente, o grau de troca aumenta conforme aumenta a carga do íon trocável;

b) Em condições semelhantes e com carga constante, o grau de troca dos íons com carga unitária cresce com a diminuição do cátion hidratado. No caso de íons com carga dupla, o tamanho iônico é um fator importante, mas há influência da dissociação incompleta dos sais desses cátions;

c) O grau de troca dos ânions com carga unitária em resinas trocadoras aniônicas fortemente básicas varia com o tamanho do íon hidratado de maneira semelhante aos cátions;

d) Quando um cátion em solução estiver sendo trocado por um íon de carga diferente, a afinidade relativa do íon de maior carga cresce em proporção direta com a diluição. Para trocar um íon de carga alta na resina, por um íon de carga baixa na solução, o aumento da concentração favorece a troca. No entanto, se o íon de carga baixa estiver na resina e o íon de carga alta na solução, a troca é favorecida pelas diluições mais altas.

2. Natureza da resina trocadora de íons

A absorção dos íons na resina depende:

- ◆ da natureza dos grupos funcionais da resina;
- ◆ da densidade das ligações cruzadas (à medida que a densidade das ligações cruzadas aumenta, as resinas se tornam mais seletivas diante dos íons de diferentes tamanhos);
- ◆ do íon que possuir menor volume hidratado.

2. OBJETIVO

O objetivo desse trabalho é o estudo da produção de ^{117m}Sn pelas reações nucleares: $^{nat}\text{Sn} (p, xn) ^{117}\text{Sb} \rightarrow ^{117m}\text{Sn}$, com ênfase na separação química estanho-antimônio e purificação do ^{117m}Sn . Este tipo de reação ocorre com feixe de prótons de energia menor que 24 MeV, como é a característica do Ciclotron CV-28 do IPEN-CNEN/SP.

Pela diferença de meia-vida dos precursores de Sb radioativos de interesse produzidos na irradiação (^{113}Sb : 6.67 min; ^{117}Sb : 2.8h e ^{119}Sb : 38.5h) será possível diminuir a presença dos contaminantes radioativos de Sn: ^{113}Sn e ^{119m}Sn . Para isso, a separação química envolverá duas etapas:

- 1) separação do Sn irradiado, que contém os radioisótopos de Sn formados diretamente na irradiação dos radioisótopos de Sb e

- 2) após o tempo adequado de decaimento do ^{117}Sb , em comparação com os contaminantes ^{113}Sb e ^{119}Sb , obter a separação o ^{117m}Sn . Fica claro que deve ser obtido um sistema de gerador de radioisótopos, onde o Sb fique retido e o Sn seja facilmente eluído.

A separação química entre o estanho e o antimônio é complexa, porque, além do comportamento químico semelhante, os dois elementos possuem, dois estados de valência estáveis, Sn^{2+} - Sn^{4+} e Sb^{3+} - Sb^{5+} . Um outro fator que dificulta a separação é que

radioisótopos de índio também são produzidos na irradiação de estanho com prótons. Esses radioisótopos são o ^{111}In e o $^{113\text{m}}\text{In}$, provenientes do decaimento de ^{111}Sn e ^{113}Sn , respectivamente.

3. MATERIAIS E MÉTODOS

3.1. EQUIPAMENTOS

- ◆ Cíclotron CV 28 do IPEN-CNEN/SP de energia máxima de prótons de 24 MeV;
- ◆ Reator Nuclear IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP;
- ◆ Detector de Germânio Hiperpuro da marca Canberra, acoplado a um microcomputador com programa Genie PC;
- ◆ Espectrofotômetro de Absorção Atômica modelo Z-5000 da marca Hitachi;
- ◆ Espectrofotômetro de Ultra-Violeta/Visível modelo DM 80 da marca Intralab.

3.2. DETERMINAÇÃO DO RENDIMENTO DE ALVO GROSSO DOS RADIOISÓTOPOS PRODUZIDOS NA ATIVAÇÃO DE ESTANHO NATURAL NO CÍCLOTRON CV-28

Os alvos de estanho natural com espessura de 1mm foram irradiados com prótons de 24 MeV no Cíclotron CV-28 com corrente de feixe de 1 μ A durante 10 minutos.

Após a irradiação, foi realizada a determinação qualitativa e quantitativa dos radioisótopos produzidos na irradiação e foi utilizado um detector de germânio hiperpuro.

Para calibrar o detector de Ge(HP), foram utilizadas como fontes de calibração o ^{152}Eu ($t_{1/2} = 13,33$ anos) e ^{133}Ba ($t_{1/2} = 10,52$ anos) e as contagens foram realizadas à seis distâncias do detector. Assim, foram obtidas as curvas de eficiência na faixa de energia entre 81 e 1408 keV para cada distância (prateleira).

A atividade obtida nas análises de espectrometria gama foram calculadas pela Equação 2.

$$dps = \frac{cps}{a_{\gamma} \cdot \epsilon_{\gamma}} \quad (2)$$

Onde: dps = desintegrações por segundo;

cps = contagens por segundo;

a_{γ} = abundância da radiação gama;

ϵ_{γ} = eficiência gama.

Os cálculos do rendimento de irradiação foram obtidos pela Equação 3.

$$\eta = \frac{A_0}{i \cdot t} \quad (3)$$

Onde: η = rendimento de irradiação (MBq/ μ A.h) ou (μ Ci/ μ A.h);

A_0 = atividade no final da irradiação (MBq) ou (μ Ci);

i = corrente do feixe (μ A);

t = tempo de irradiação (h).

Os radioisótopos possíveis de serem produzidos nas irradiações de estanho com prótons são mostrados na Tabela 17.

Tabela 17. Possíveis Radioisótopos de Estanho Produzidos por Irradiação com Prótons.

Abundância	Reações Nucleares	Radioisótopo	Meia - Vida
1,0 %	$^{112}\text{Sn} (p, n) ^{112}\text{Sb}$	^{112}Sb	53,50s
	$^{112}\text{Sn} (p, 2n) ^{111}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} ^{111}\text{Sn}$	^{111}Sn	35,3min
	$^{112}\text{Sn} (p, 3n) ^{110}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} ^{110}\text{Sn}$	^{110}Sn	4,00h
	$^{112}\text{Sn} (p, pn) ^{111}\text{Sn}$	^{111}Sn	35,3min
0,7 %	$^{114}\text{Sn} (p, n) ^{114}\text{Sb}$	^{114}Sb	3,5min
	$^{114}\text{Sn} (p, 2n) ^{113}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} ^{113}\text{Sn}$	^{113}Sn	115 d
	$^{114}\text{Sn} (p, 3n) ^{112}\text{Sb}$	^{112}Sb	53,50s
	$^{114}\text{Sn} (p, pn) ^{113}\text{Sn}$	^{113}Sn	115 d
0,4 %	$^{115}\text{Sn} (p, n) ^{115}\text{Sb}$	^{115}Sb	32,1 min
	$^{115}\text{Sn} (p, 2n) ^{114}\text{Sb}$	^{114}Sb	3,50 min
	$^{115}\text{Sn} (p, 3n) ^{113}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} ^{113}\text{Sn}$	^{113}Sn	115 d
	$^{115}\text{Sn} (p, pn) ^{114}\text{Sn}$	^{114}Sn	estável
14,7 %	$^{116}\text{Sn} (p, n) ^{116m}\text{Sb}$	^{116m}Sb	60,0 min
	$^{116}\text{Sn} (p, 2n) ^{115}\text{Sb}$	^{115}Sb	32,1 min
	$^{116}\text{Sn} (p, 3n) ^{114}\text{Sb}$	^{114}Sb	3,50 min
	$^{116}\text{Sn} (p, pn) ^{115}\text{Sn}$	^{115}Sn	estável
7,7 %	$^{117}\text{Sn} (p, n) ^{117}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} ^{117m}\text{Sn}$	^{117m}Sn	14,0 d
	$^{117}\text{Sn} (p, 2n) ^{116m}\text{Sb}$	^{116m}Sb	60,0 min
	$^{117}\text{Sn} (p, 3n) ^{115}\text{Sb}$	^{115}Sb	32,1 min
	$^{117}\text{Sn} (p, pn) ^{116}\text{Sn}$	^{116}Sn	estável
24,3 %	$^{118}\text{Sn} (p, n) ^{118m}\text{Sb}$	^{118m}Sb	5,00 h
	$^{118}\text{Sn} (p, 2n) ^{117}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} ^{117m}\text{Sn}$	^{117m}Sn	14,0 d
	$^{118}\text{Sn} (p, 3n) ^{116m}\text{Sb}$	^{116m}Sb	60 min
	$^{118}\text{Sn} (p, pn) ^{117m}\text{Sn}$	^{117m}Sn	14,0 d
8,6 %	$^{119}\text{Sn} (p, n) ^{119}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} ^{119m}\text{Sn}$	^{119m}Sn	250 d
	$^{119}\text{Sn} (p, 2n) ^{118m}\text{Sb}$	^{118m}Sb	5,00 h
	$^{119}\text{Sn} (p, 3n) ^{117}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} ^{117m}\text{Sn}$	^{117m}Sn	14,0 d
	$^{119}\text{Sn} (p, pn) ^{118}\text{Sn}$	^{118}Sn	estável
24,3 %	$^{120}\text{Sn} (p, n) ^{120m}\text{Sb}$	^{120m}Sb	5,76 d
	$^{120}\text{Sn} (p, 2n) ^{119}\text{Sb} \xrightarrow{\beta^+} ^{119m}\text{Sn}$	^{119}Sn	250 d
	$^{120}\text{Sn} (p, 3n) ^{118m}\text{Sb}$	^{118m}Sb	5,00 h
	$^{120}\text{Sn} (p, pn) ^{119m}\text{Sn}$	^{119m}Sn	250 d
4,6 %	$^{122}\text{Sn} (p, n) ^{122}\text{Sb}$	^{122}Sb	2,70 d
	$^{122}\text{Sn} (p, 2n) ^{121}\text{Sb}$	^{121}Sb	estável
	$^{122}\text{Sn} (p, 3n) ^{120m}\text{Sb}$	^{120m}Sb	5,76 d
	$^{122}\text{Sn} (p, pn) ^{121m}\text{Sn}$	^{121m}Sn	50,0 a

5,6 %	$^{124}\text{Sn} (p, n) ^{124}\text{Sb}$	^{124}Sb	60,3 d
	$^{124}\text{Sn} (p, 2n) ^{123}\text{Sb}$	^{123}Sb	estável
	$^{124}\text{Sn} (p, 3n) ^{122}\text{Sb}$	^{122}Sb	2,7 d
	$^{124}\text{Sn} (p, pn) ^{123}\text{Sn}$	^{123}Sn	129,2 d

3.3. DETERMINAÇÃO DO ESTANHO

A determinação do estanho foi realizada por espectrofotometria de absorção atômica, em 224,6 nm de comprimento de onda. Foi utilizado um queimador padrão, em chama de gás - acetileno com fluxo de gás de 4 L/min e corrente da lâmpada de estanho de 7 mA.

3.3.1. Preparação da Solução Padrão de Estanho

Dissolveram-se dois gramas de estanho metálico em 100 mL de ácido clorídrico concentrado e adicionaram-se 100 mL de água destilada. Depois, completou-se o balão volumétrico de 2 litros com água destilada. A equação de dissolução é mostrada na Equação 4.



Da solução preparada acima, retiraram-se alíquotas de 0,25; 0,50; 0,75; 1,0; 1,25; 2,5; 5,0; 7,5 e 10,0 mL. Cada uma das alíquotas foi colocada em balões volumétricos

de 250 mL os quais foram completados com água destilada.

As soluções preparadas continham, respectivamente, 1, 2, 3, 4, 5, 10, 20, 30 e 40 ppm.

3.4. DETERMINAÇÃO DO ANTIMÔNIO

O antimônio foi determinado através de uma reação de complexação com iodeto de potássio, a qual resultou em um complexo amarelo. A equação de formação do complexo é mostrada pela Equação 5.



A determinação da concentração do complexo foi realizada por espectrofotometria de UV - VIS, em 425 nm de comprimento de onda.

3.4.1. Preparação da Solução Padrão de Antimônio e da Solução de KI - NaH₂PO₂

Dissolveu-se 0,125 g de antimônio metálico em 25 mL de ácido sulfúrico concentrado a quente e o balão volumétrico de 250 mL foi completado com água destilada.

Da solução preparada acima, retiraram-se alíquotas de 1, 2, 3, 4, 5, 10, 15,

20, 25, 30, 35, 40, 45 e 50 mL. Cada alíquota foi colocada em um balão volumétrico de 250 mL, aos quais foram adicionados 10 mL de ácido sulfúrico concentrado e, em seguida, água destilada até completar 100 mL. A seguir, foram adicionados 10 mL de ácido clorídrico concentrado. Esperou-se que a solução esfriasse e colocou-se água destilada até que se atingissem 250 mL.

As soluções padrões preparadas continham respectivamente, 2, 4, 6, 8, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90 e 100 ppm de antimônio.

A solução de KI - NaH₂PO₂ foi preparada, dissolvendo-se 100 g de iodeto de potássio e 20 g de hipofosfito de sódio em 100 mL de água destilada.

3.4.2. Procedimento

Em balões de 50 mL, colocaram-se 25 mL de cada uma das alíquotas, adicionaram-se 10 mL de KI - NaH₂PO₂ e completou-se com água destilada.

A leitura da absorbância foi realizada em cubetas de quartzo de caminho ótico de 1,0 cm.

3.5. ESTUDO DO COMPORTAMENTO EM RESINA DE TROCA IÔNICA

O método de separação utilizado foi a troca iônica, devido à facilidade de

utilização com material radioativo. Foram utilizadas resinas de troca catiônicas e aniônicas com solução eluente de ácido clorídrico concentrado, devido as diferenças de coeficiente de distribuição para os íons de estanho e antimônio.

As Figuras 5 e 6 apresentam os coeficientes de distribuição de estanho e antimônio em resinas aniônicas e catiônicas, respectivamente.

Pela Figura 5, nas resinas aniônicas, nota-se que em ácido clorídrico concentrado, retira-se o Sb^{3+} e fixa-se o Sn^{4+} ; já no ácido clorídrico diluído, retira-se o Sn^{2+} .

Pela Figura 6, nas resinas catiônicas, nota-se que o Sn^{4+} não é adsorvido em qualquer concentração de ácido clorídrico e o Sb^{5+} é fortemente retido em ácido clorídrico concentrado e é eluído com ácido clorídrico diluído.

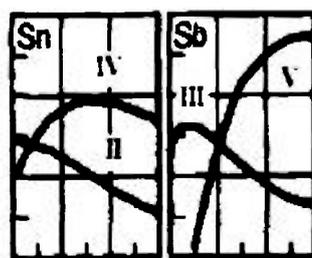


Figura 5. Coeficientes de Distribuição do Estanho e Antimônio na Resina Aniônica em HCl de concentração entre 0 e 12 mol/L.⁴⁴

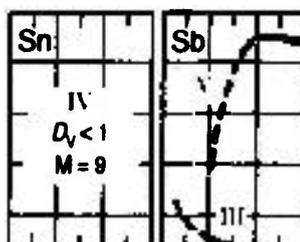


Figura 6. Coeficientes de Distribuição do Estanho e Antimônio na Resina Catiônica em HCl de concentração entre 0 e 12 mol/L.⁴⁴

As resinas utilizadas neste estudo foram a aniônica Dowex AG1-X8 (50-100 mesh) e a catiônica Dowex 50W-X4 (100 -200 mesh).

3.5.1. Preparação da Resina de Troca Iônica

Para ativação das resinas, adicionou-se primeiro água destilada; depois solução 0,1 mol/L de hidróxido de sódio; novamente água destilada e ,por último, solução 0,1 mol/L de ácido clorídrico. Este processo foi realizado no mínimo três vezes, antes de colocar as resinas na coluna.

Colocaram-se, então, resina até uma altura de 14 cm numa coluna de vidro com 1,2 cm de diâmetro interno x 20 cm de altura e adicionaram-se 50 mL de ácido clorídrico concentrado para o seu condicionamento.

Após esse procedimento a resina se encontrava na forma adequada para utilização.

3.5.2. Preparação da Solução Carga

No Cíclotron CV-28

O alvo de estanho metálico natural irradiado no Cíclotron CV-28 (1 grama) é dissolvido em ácido clorídrico concentrado. Depois, seca-se a solução que é retomada novamente em ácido clorídrico concentrado.

No Reator Nuclear IEA-R1

O alvo de estanho metálico natural irradiado no Reator Nuclear IEA-R1 (1 grama) é dissolvido em ácido clorídrico concentrado. Depois, seca-se a solução que é retomada novamente em ácido clorídrico concentrado.

3.5.3. Percolação da Solução Carga pela Resina

Retira-se uma alíquota de 10 mL da solução carga para referência e percola-se os 90 mL restantes pelas resinas. Recolhem-se, então, as alíquotas do efluente da carga de 10 em 10 mL para contagem.

3.5.4. Lavagem

A solução de lavagem foi preparada com ácido clorídrico concentrado e foram retiradas alíquotas 10 em 10 mL para contagem.

3.5.5. Detecção dos Radioisótopos

As alíquotas foram analisadas por espectrometria de radiação gama num detector de germânio hiperpuro nos fotopicos de energia do ^{117m}Sn (151 keV) e ^{124}Sb (603 keV).

3.6. ESTUDO DO COMPORTAMENTO DO AGENTE OXIDANTE NA RESINA ANIÔNICA

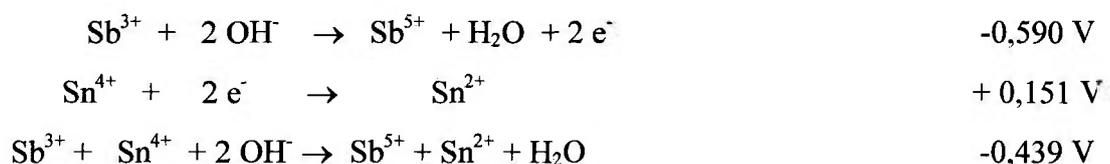
Utilizando-se resinas de troca aniônica, foram realizadas experiências para determinação do agente oxidante mais adequado, já que para ocorrer a separação química entre os íons é necessário que um esteja oxidado e o outro reduzido.

Dessa maneira, foi utilizada três procedimentos.

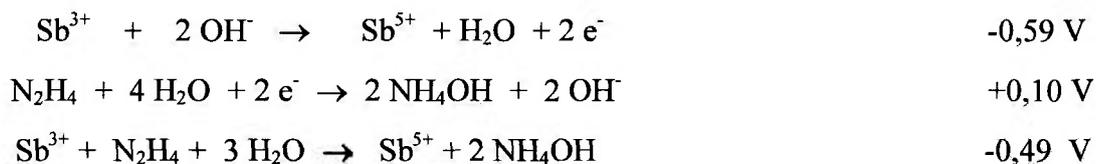
O primeiro foi com a hidrazina em pó, segundo foi com solução saturada de hidrazina quando o alvo dissolvido não é levado à secura e o terceiro foi com solução saturada de hidrazina quando o alvo é levado à secura.

A hidrazina oxida o Sn^{2+} a Sn^{4+} e mantém o Sb em Sb^{3+} , situação adequada para a separação química.

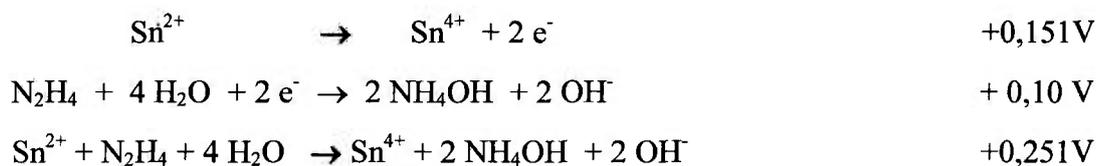
Reação de Oxidação do Antimônio com Estanho



Reação de Oxidação do Antimônio com Hidrazina



Reação de Oxidação do Estanho com Hidrazina



A solução carga é preparada seguindo o procedimento experimental do item 3.5.2 e no final adiciona-se o agente oxidante.

3.7. ESTUDO DO COMPORTAMENTO QUÍMICO DO ESTANHO NA RESINA DE TROCA ANIÔNICA

Foi estudado o comportamento químico do estanho nas resinas com traçadores radioativos preparados a partir da irradiação de 1g de estanho metálico natural no reator, durante 8 horas e num fluxo de aproximadamente 3×10^{13} n/cm².s. O traçador utilizado foi o ^{117m}Sn.

3.8. ESTUDO DO COMPORTAMENTO QUÍMICO DO ANTIMÔNIO NA RESINA DE TROCA ANIÔNICA

Foi estudado o comportamento químico do antimônio nas resinas com traçadores radioativos preparados a partir da irradiação de 100 miligramas de antimônio metálico natural no reator durante 1 hora e num fluxo de aproximadamente 3×10^{13} n/cm².s. O traçador utilizado foi o ¹²⁴Sb.

O alvo de Sb metálico foi dissolvido em água-régia, pois esse metal não se dissolve em ácido clorídrico.

3.9. CONTROLE DE QUALIDADE DO ^{117m}Sn

3.9.1. Pureza Química

Os possíveis contaminantes químicos no produto final foram o próprio estanho e o antimônio. A determinação quantitativa destes contaminantes foi realizada por absorção atômica e UV-VIS, conforme os itens 3.3 e 3.4, respectivamente.

A atividade específica do ^{117m}Sn foi determinada através dos valores de pureza química encontrados para o estanho.

3.9.2. Pureza Radioquímica

A determinação da pureza radioquímica do estanho foi realizada por cromatografia em papel, com papel Whatmann nº 1 (1,0 x 20,0 cm) e um sistema de solvente butanol / HNO_3 2 mol/L.

Neste sistema, os valores do fator de retenção (R_f) para Sn^{2+} e Sn^{4+} foram de 0,93 e 0,81, respectivamente, os quais foram determinados com estanho não radioativo. A revelação das manchas foi realizada com amônia, hidroxiquinolina e luz ultravioleta.

Já para estanho radioativo, o papel foi cortado e a sua atividade medida no detector de germânio hiperpuro.

3.9.3. Pureza Radionuclídica

Os principais contaminantes radionuclídicos do ^{117m}Sn foram o ^{113}Sn e ^{119m}Sn .

A determinação da pureza radionuclídica foi realizada por espectrometria gama conforme item 3.2.

4. RESULTADOS E DISCUSSÕES

4.1. DETERMINAÇÃO POR ESPECTROMETRIA GAMA DOS RADIOISÓTOPOS PRODUZIDOS NA IRRADIAÇÃO

4.1.1. Determinação do Rendimento de Irradiação

O rendimento de irradiação de alvo grosso dos radioisótopos produzidos na irradiação do estanho natural com prótons é apresentado na Tabela 18.

Nestes experimentos não foram identificados o ^{113}Sb (meia-vida: 6,0 minutos) e o ^{117}Sb (meia-vida: 2,8 horas), devido ao tempo decorrido entre o fim da irradiação e as contagens. Já o ^{119}Sb (meia-vida: 38 horas) e o $^{119\text{m}}\text{Sn}$ (meia-vida: 250 dias) não foram encontrados por serem somente emissores de raios-X.

Com este valor de rendimento de produção obtido para o $^{117\text{m}}\text{Sn}$, estima-se uma produção de cerca de 400 μCi por hora de irradiação, numa corrente de feixe de 20 μA no Cíclotron CV-28. No Cíclotron Cyclone 30, numa corrente de feixe de 100 μA , pode-se obter 2 mCi por hora de irradiação.

Tabela 18. Rendimento de Irradiação de Alvo Grosso.

Radioisótopo	Meia-vida	Energia (keV)	Rendimento ($\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$)	Rendimento (MBq/ μAh)
$^{117\text{m}}\text{Sn}$	14,0 d	158,5	21,20	0,784
^{113}Sn	115,0 d	391,1	0,12	0,004
^{123}Sn	129,0 d	1089,9	129,1	4,777
^{113}Sb	6,9 min	496,5	2950	109,15
^{117}Sb	2,80 h	158,5	2549	94,313
$^{118\text{m}}\text{Sb}$	5,10 h	1049,1	16823	622,47
$^{120\text{m}}\text{Sb}$	5,80 d	1169,5	29,12	1,0077
^{122}Sb	2,70 d	563,09	100,7	3,7281
^{124}Sb	60,2 d	601,69	1,540	0,0569
^{111}In	2,83 d	244,84	22,94	0,8488
$^{115\text{m}}\text{In}$	4,50 h	335,37	33,12	1,2254

4.2. CURVA DE CALIBRAÇÃO DO ESTANHO

A Tabela 19 mostra os valores médios de absorvância com seus respectivos desvios para cada concentração em partes por milhão de estanho e a Figura 7 mostra a curva de calibração do estanho, obtida pelo método descrito no item 3.3.

Tabela 19. Medidas de Absorbância do estanho em diversas concentrações por Absorção Atômica.

Concentração (ppm)	Absorbância	Desvio Padrão Relativo (%)
0	-0,0006	-66,67
1	0,0006	66,67
2	0,0032	6,25
3	0,0055	7,27
4	0,0066	4,55
5	0,0082	1,22
10	0,0187	2,67
20	0,0442	1,81
30	0,0645	0,16
40	0,0859	3,38

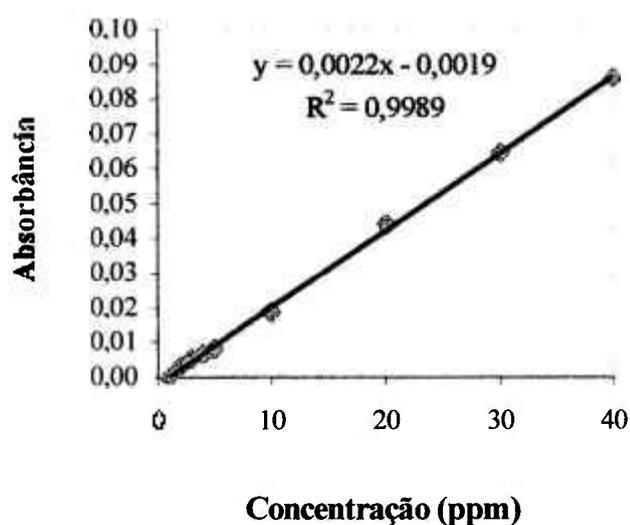


Figura 7. Curva de Calibração do Estanho por Absorção Atômica.

Observa-se que a curva de calibração, na faixa de 0 a 40 ppm para o estanho, possui dados adequados à Lei de Beer, a qual relaciona, linearmente, a concentração com a absorvância e o coeficiente de correlação desta reta é 0,9989. Esse valor, estatisticamente, é considerado muito bom, pois está bem próximo de 1.

4.3. CURVA DE CALIBRAÇÃO DO ANTIMÔNIO

A Tabela 20 mostra os valores médios de absorvância com seus respectivos desvios para cada concentração em partes por milhão de antimônio. A Figura 8 mostra a curva de calibração do antimônio, obtida pelo método descrito no item 3.4. A Figura 9 mostra o gráfico do comprimento de onda x absorvância para este elemento.

Tabela 20. Medidas da Absorbância do Antimônio em diversas concentrações por Espectrofotometria de UV-VIS.

Concentração (ppm)	Absorbância
2	0,039 ± 0,002
10	0,191 ± 0,005
20	0,372 ± 0,005
30	0,553 ± 0,005
40	0,742 ± 0,010
50	0,919 ± 0,006
60	1,080 ± 0,006
70	1,249 ± 0,014
80	1,451 ± 0,0053
90	1,593 ± 0,007
100	1,824 ± 0,009

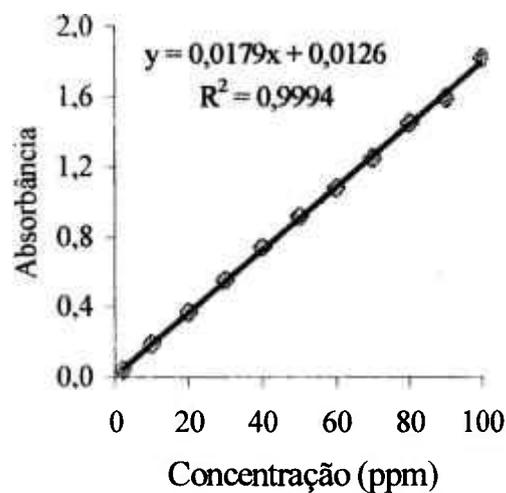


Figura 8. Curva de Calibração do Antimônio por Espectrofotometria de UV-VIS.

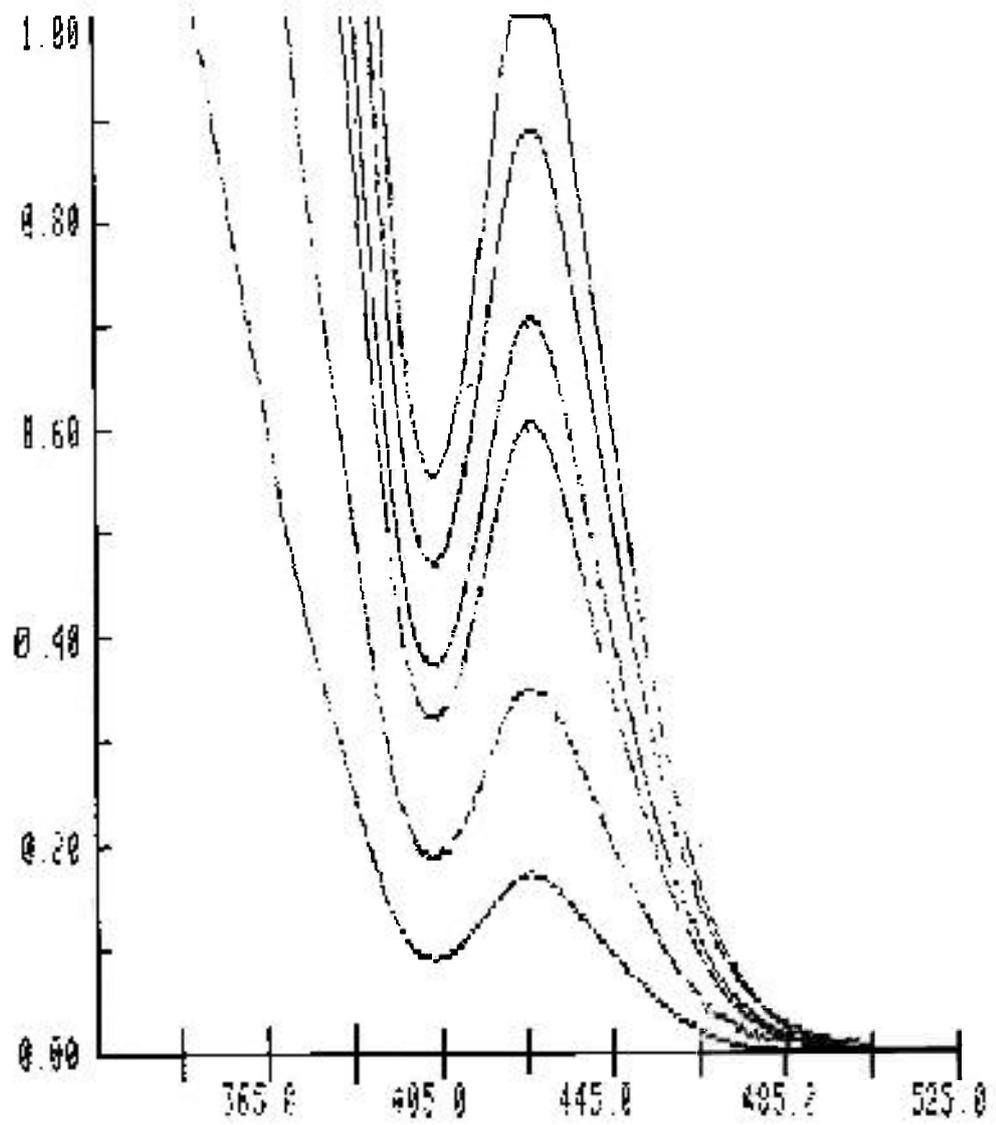


Figura 9. Gráfico do Comprimento de Onda x Absorbância do Antimônio por Espectrofotometria de UV-VIS.

Observa-se que a curva de calibração, na faixa de concentração de 0 a 100 ppm para o Sb, possui dados adequados à Lei de Beer, a qual relaciona, linearmente, a concentração com a absorvância e o coeficiente de correlação desta reta é 0,9994. Esse valor, estatisticamente, é considerado muito bom, pois está bem próximo de 1.

4.4. RESULTADOS DOS ESTUDOS DO COMPORTAMENTO EM RESINA DE TROCA IÔNICA

4.4.1. Resina de Troca Catiônica

As Figuras 10 e 11 mostram a porcentagem de eluição do estanho-117m e do antimônio-124 numa resina catiônica e a respectiva curva de eluição desses isótopos.

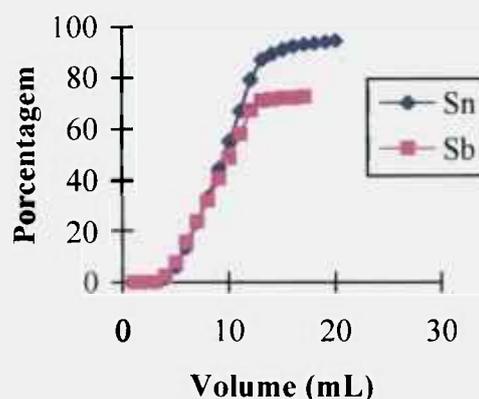


Figura 10. Porcentagem de Eluição de Sn-Sb em resina catiônica com HCl concentrado como eluente.

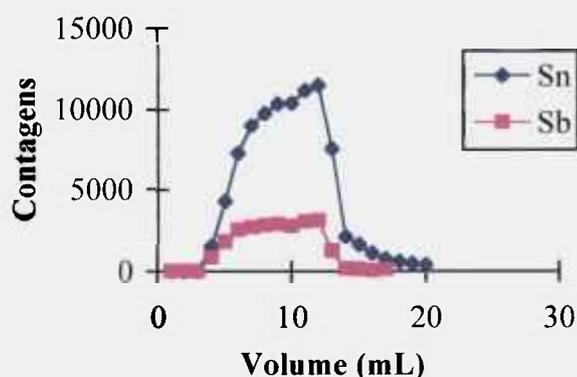


Figura 11. Curva de Eluição de Sn-Sb em Resina Catiônica com HCl concentrado como eluente.

Nota-se que praticamente todo o estanho é retirado com 20 mL de ácido clorídrico concentrado. Mas, aproximadamente 70% do antimônio também é eluído com esse mesmo volume, o que não proporciona a separação química.

Numa resina catiônica, tanto o Sn^{2+} como o Sn^{4+} não são adsorvidos em meio de ácido clorídrico, pois o valor do coeficiente de distribuição é menor que 0,5 para HCl 3 mol/L e diminui com o aumento da concentração do ácido.

Já o Sb^{5+} possui coeficiente de distribuição igual a 2×10^3 para concentrações de HCl entre 9 e 12 mol/L. Na mesma faixa de concentração, o coeficiente de distribuição para o Sb^{3+} é menor que 100.

Pelos resultados obtidos, conclui-se que o estado de oxidação do antimônio era de 3+, o que não permite a separação desejada.

4.4.2. Resina de Troca Aniônica

As Figuras 12 e 13 mostram a porcentagem de eluição do estanho-117m e do antimônio-124 numa resina aniônica e a respectiva curva de eluição desses isótopos.

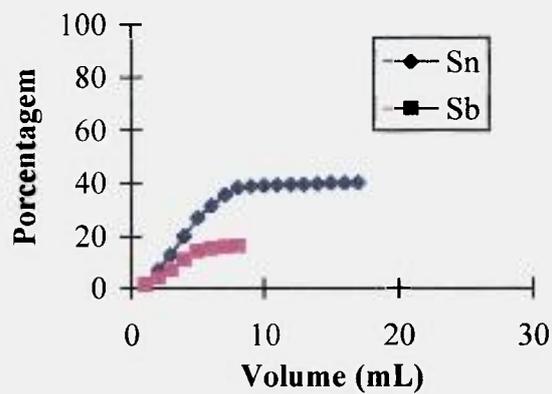


Figura 12. Porcentagem de Eluição de Sn-Sb em Resina Aniônica com HCl concentrado como eluente.

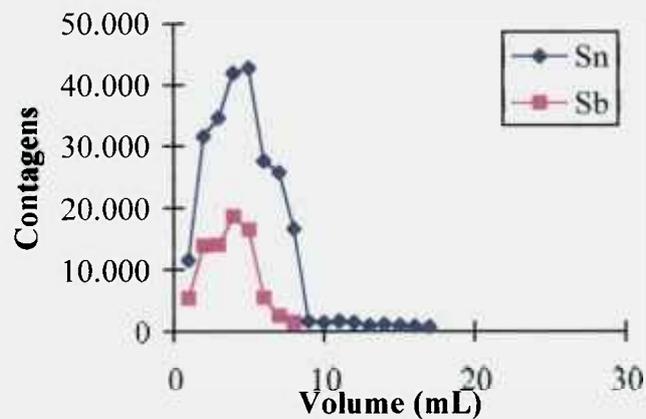


Figura 13. Curva de Eluição de Sn-Sb em Resina Aniônica com HCl concentrado como eluente.

Nota-se que praticamente 40% do estanho é retirado com 17 mL de ácido clorídrico concentrado. No mesmo volume, 20% do antimônio também é eluído, o que não permite a separação química.

Numa resina aniônica, quando o Sn^{4+} está na forma de $[\text{SnCl}_6]^{-2}$, na faixa de concentração de 6 a 12 mol/L de HCl, possui o coeficiente de distribuição igual a 2×10^3 para HCl 12 mol/L. Para concentração de HCl 0,25 mol/L, o coeficiente diminui para 20. Já o Sn^{2+} possui coeficiente de distribuição igual a 10 em HCl 12 mol/L.

Quando o Sb^{5+} encontra-se na forma $[\text{SbCl}_6]^{-}$, na faixa de concentração de 9 a 12 mol/L de HCl, possui coeficiente de distribuição maior que 10^5 em HCl 10 mol/L. Já o Sb^{3+} está na forma de $[\text{SbCl}_4]^{-}$, na concentração de HCl 12 mol/L com coeficiente de distribuição igual a 20.

Pelos resultados obtidos, observa-se que os estados de oxidação tanto do estanho quanto do antimônio não estão adequados para ocorrer a separação. A melhor condição para a separação é quando o estanho está na forma de Sn^{4+} e o antimônio na forma de Sb^{3+} . Desta maneira, o estanho fica retido e o antimônio é eluído com ácido clorídrico 12 mol/L. Posteriormente a solução que contém antimônio é percolada por uma outra resina aniônica, onde o $^{117\text{m}}\text{Sn}$ será adsorvido e finalmente eluído com HCl 0,25 mol/L.

A partir destes experimentos optou-se pela resina aniônica e passou-se a utilizá-la para realizar os testes com o agente oxidante apropriado.

4.5. RESULTADOS DO ESTUDO DO COMPORTAMENTO DO AGENTE OXIDANTE

4.5.1. Hidrazina em pó

As Figuras 14 e 15 mostram a porcentagem de eluição e a curva de eluição do estanho-117m e do antimônio-124 numa resina aniônica, quando foi adicionado como agente oxidante a hidrazina em pó (sólido) e o alvo foi irradiado no Cíclotron CV-28.

Nota-se que praticamente 20% de ambos radionuclídeos são eluídos conjuntamente em 9 mL de ácido clorídrico, o que não permite a separação química nessas condições.

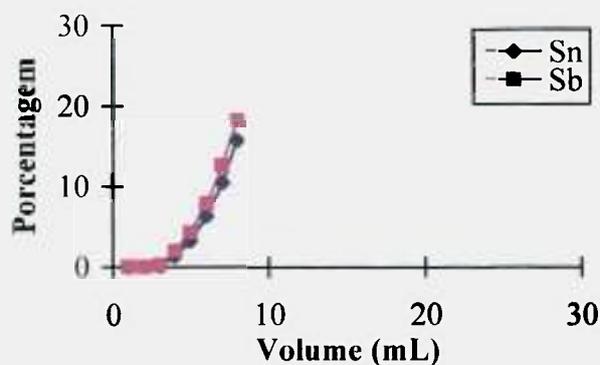


Figura 14. Porcentagem de eluição de Sn-Sb com adição de hidrazina sólida com HCl concentrado como eluente.

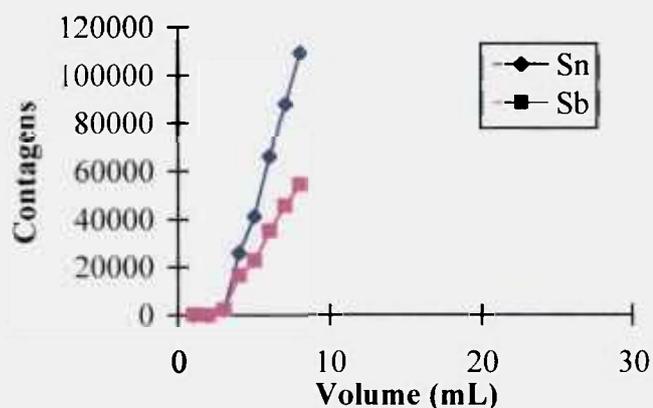


Figura 15. Curva de Eluição de Sn-Sb com adição de hidrazina sólida com HCl concentrado como eluente.

4.5.2. Solução de Hidrazina quando o alvo não é levado à secura

As Figuras 16 e 17 mostram a porcentagem de eluição e a curva de eluição do estanho-117m e do antimônio-124 numa resina aniônica, quando foi adicionado como agente oxidante uma solução de hidrazina 30 mg/mL. Neste procedimento, o alvo foi irradiado no Cíclotron CV-28 e após ser dissolvido, ele não foi levado à secura.

Nota-se que praticamente 100% do antimônio-124 foi eluído com 17 mL de ácido clorídrico concentrado e com o mesmo volume, 60% do estanho-117m também foi retirado. Dessa maneira, não ocorreu separação química nessas condições.

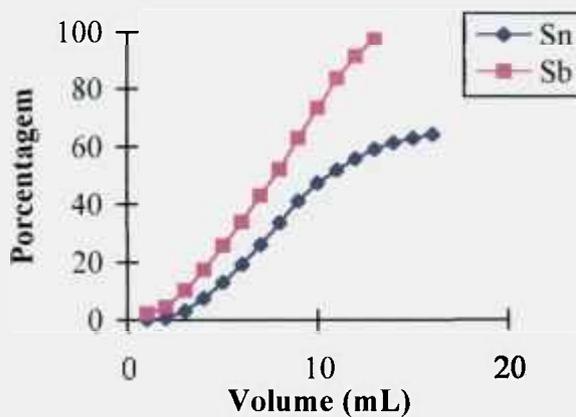


Figura 16. Porcentagem de eluição de Sn-Sb com adição de solução de hidrazina sem a secagem do alvo com HCl concentrado como eluente.

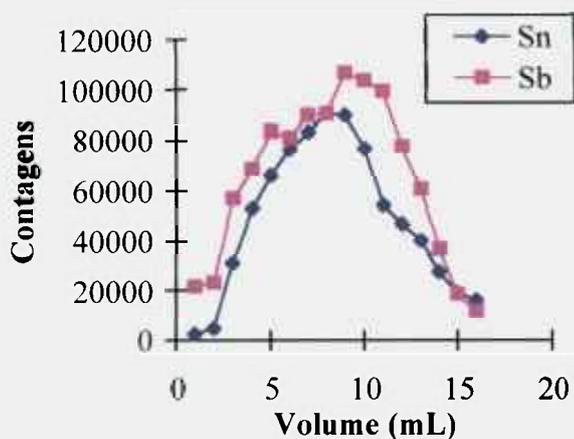


Figura 17. Curva de Eluição de Sn-Sb com adição de solução de hidrazina sem a secagem do alvo com HCl concentrado como eluente.

4.5.3. Solução de Hidrazina quando o alvo é levado à secura

As Figuras 18 e 19 mostram a porcentagem de eluição e a curva de eluição do estanho-117m e do antimônio-124 numa resina aniônica, quando foi adicionado como agente oxidante uma solução de hidrazina 30 mg/mL. Neste procedimento, o alvo foi irradiado no Cíclotron CV-28 e após ser dissolvido, ele foi levado à secura.

Nota-se que praticamente 100% do antimônio-124 foi eluído com 20 mL de ácido clorídrico concentrado e com o mesmo volume, praticamente não foi retirado o estanho-117m. Portanto ocorreu a separação química nas condições do procedimento.

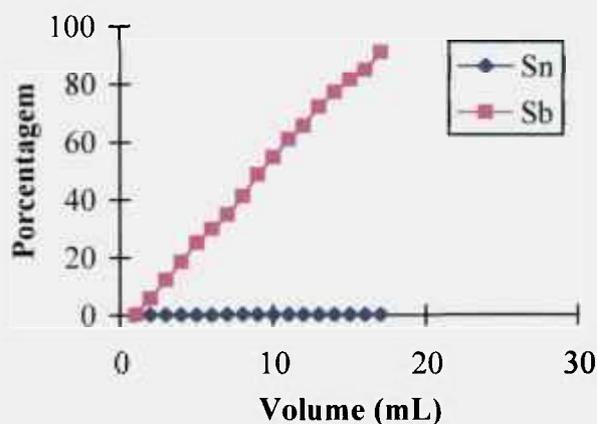


Figura 18. Porcentagem de eluição de Sn-Sb com adição de solução de hidrazina com secagem do alvo com HCl concentrado como eluente.

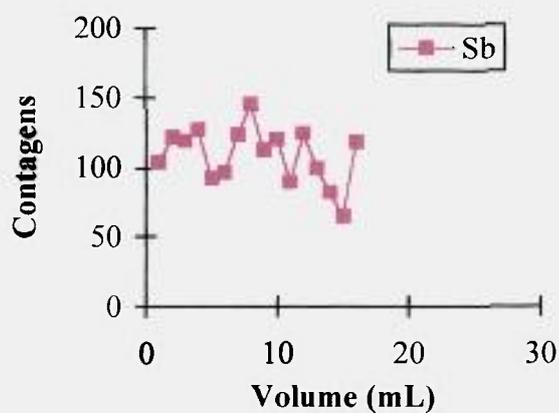


Figura 19. Curva de Eluição de Sn-Sb com adição de solução de hidrazina com secagem do alvo com HCl concentrado como eluente.

A Tabela 21 apresenta a porcentagem do traçador de estanho e de antimônio detectado no efluente da carga e nas lavagens no fotopico de 158,5 keV e 603 keV, respectivamente, em seis experimentos. O efluente da carga e a lavagem correspondem à passagem de ácido clorídrico concentrado pela resina.

Tabela 21. Porcentagem dos Radioisótopos no Efluente de Carga e nas Lavagens

Radioisótopo	Efluente	Lavagem
^{117m}Sn	$3,04 \pm 0,12$	$0,0 \pm 0,0$
^{124}Sb	$61,14 \pm 2,23$	$34,88 \pm 1,39$

4.6. RESULTADOS DO ESTUDO DO COMPORTAMENTO QUÍMICO DO ESTANHO NA RESINA DE TROCA ANIÔNICA

A Tabela 22 apresenta a porcentagem do traçador de estanho detectado no efluente da carga (10 mL) e nas lavagens (10 mL cada) no fotopico de 158,5 keV que corresponde ao estanho-117m, em seis experimentos. O efluente da carga e as lavagens de 1 a 4 correspondem à passagem de ácido clorídrico concentrado pela resina. A lavagem 5 corresponde à passagem de ácido clorídrico diluído (0,1 mol/L).

Tabela 22. Distribuição no Efluente da Carga e Lavagens.

efluente (10 mL)	lavagem 1 (10 mL)	lavagem 2 (10 mL)	lavagem 3 (10 mL)	lavagem 4 (10 mL)	lavagem 5 (10 mL)
0,30 ± 0,21	3,58 ± 0,33	9,06 ± 0,70	8,12 ± 0,17	7,66 ± 0,96	7,64 ± 0,26

Pelos resultados obtidos, observa-se que cerca de 12% do estanho é eluído em 20 mL de HCl 12 mol/L, diferente dos resultados obtidos na Figura 18. Isso significa que parte do estanho está na forma reduzida, devido a mudanças na adição do agente oxidante.

4.7. COMPORTAMENTO QUÍMICO DO ANTIMÔNIO NA RESINA DE TROCA ANIÔNICA

A Tabela 23 apresenta a porcentagem do traçador de antimônio detectado no efluente da carga e nas lavagens no fotopico de 603 keV que corresponde ao Sb-124, em seis experimentos. O efluente da carga e as lavagens de 1 a 4 correspondem à passagem de ácido clorídrico concentrado pela resina e a lavagem 5 corresponde à passagem de ácido clorídrico diluído (0,1 mol/L).

Tabela 23. Distribuição no Efluente da Carga e Lavagens.

efluente (10 mL)	lavagem 1 (10 mL)	lavagem 2 (10 mL)	lavagem 3 (10 mL)	lavagem 4 (10 mL)	lavagem 5 (10 mL)
0,31 ± 0,23	0,43 ± 0,11	0,51 ± 0,23	1,56 ± 0,21	1,64 ± 0,93	4,11 ± 0,89

Os resultados da Tabela 23 são diferentes daqueles encontrados na Figura 19, porque o alvo de antimônio metálico foi dissolvido em água-régia e não em ácido clorídrico. Obteve-se, então, o Sb⁵⁺ em vez do Sb³⁺ que ficou retido na resina.

Porém o comportamento químico do Sb⁵⁺ está adequado à Figura 5, que apresenta os coeficientes de distribuição para Sb⁵⁺ e Sb³⁺.

4.8. CONTROLE DE QUALIDADE DO ^{117m}Sn

4.8.1. Pureza Química

A concentração de estanho no produto final é de $3,0 \pm 0,2$ ppm, quando o alvo de estanho metálico natural é irradiado no Ciclotron CV-28.

A concentração de antimônio no produto final foi sempre menor que o limite de detecção de 2 ppm, porque não houve necessidade de adicionar carregador de antimônio para separação química.

A atividade específica encontrada para o ^{117m}Sn é de 1,48 Ci/g no Ciclotron CV-28 e de 7,41 Ci/g no Cyclone 30, quando é considerada a atividade máxima possível em cada Ciclotron.

4.8.2. Pureza Radioquímica

Os resultados da pureza radioquímica do ^{117m}Sn foram obtidos por cromatografia em papel e o R_f para o Sn^{4+} é de 0,81 e o produto final analisado obteve pureza maior que 97% para este estado de oxidação.

4.8.3. Pureza Radionuclídica

As principais impurezas radionuclídicas na separação do ^{117m}Sn são: o ^{113}Sn

(meia-vida de 115 dias) e o ^{119m}Sn (meia-vida de 250 dias), ambos provenientes do decaimento dos isótopos de antimônio, ^{113}Sb (meia-vida de 6,74 minutos) e ^{119}Sb (meia-vida de 38 horas), respectivamente.

A Figura 21 apresenta o tempo de crescimento máximo do ^{113}Sn (meia-vida de 115 dias).

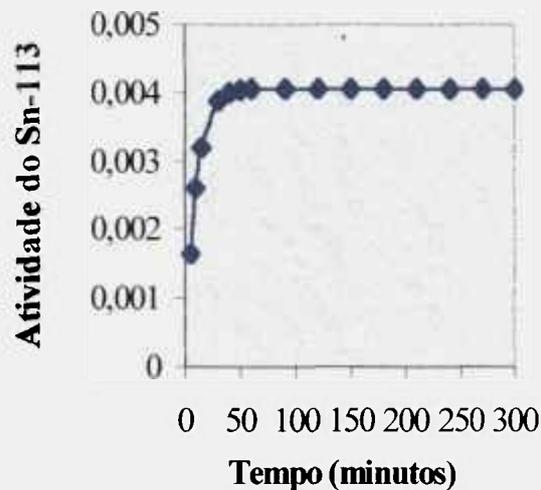


Figura 21. Tempo de Crescimento Máximo para o ^{113}Sn .

Pelo gráfico da Figura 21, nota-se que, após aproximadamente 100 minutos, ocorre o crescimento máximo do ^{113}Sn , a partir do ^{113}Sb . Dessa maneira, o tempo mínimo necessário para que as impurezas de ^{113}Sn sejam eliminadas corresponde a este tempo.

Se for considerado um tempo de 2 horas entre o fim da irradiação e o começo da separação química, todo o ^{113}Sb terá decaído para ^{113}Sn que será separado junto com os isótopos de estanho que são produzidos diretamente na reações que ocorrem

durante a irradiação.

As Figuras 22 e 23 apresentam o tempo de crescimento máximo do ^{117m}Sn (meia-vida de 14 dias) e ^{119m}Sn (meia-vida de 250 dias).

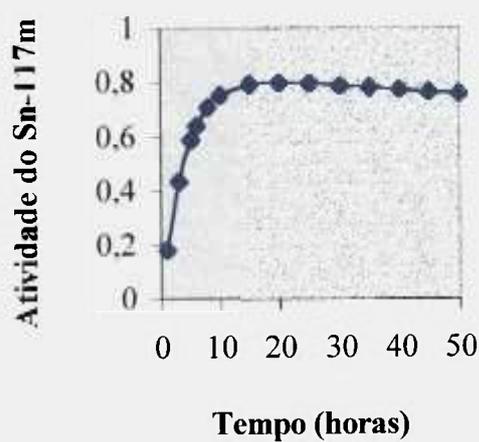


Figura 22. Tempo de Crescimento Máximo para o ^{117m}Sn .

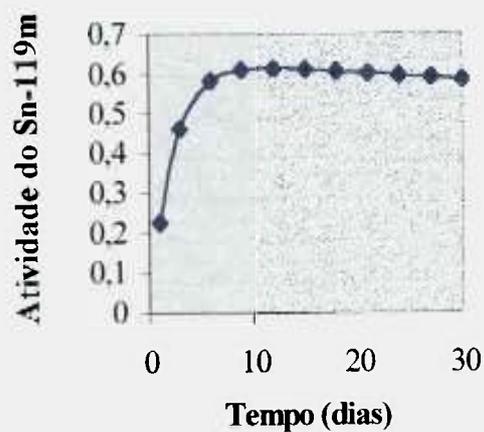


Figura 23. Tempo de Crescimento Máximo para ^{119m}Sn .

Pelo gráfico da Figura 22, nota-se que o crescimento máximo do ^{117m}Sn , a partir do decaimento do ^{117}Sb , é de aproximadamente 19 horas.

Então, para se obter o rendimento máximo de ^{117}Sb é necessário iniciar a segunda fase de separação química, aproximadamente 20 horas após o término da primeira fase de separação.

É importante, porém, estimar se este tempo de espera implicará num crescimento considerável do ^{119m}Sn , o qual é proveniente do decaimento do ^{119}Sb , que é um dos contaminantes do ^{117}Sb .

Pelo gráfico da Figura 23, nota-se que o crescimento máximo do ^{119m}Sn , a partir do decaimento do ^{119}Sb , é de aproximadamente 12 dias.

A Figura 24 apresenta a porcentagem do crescimento de ^{119m}Sn até 20 horas.

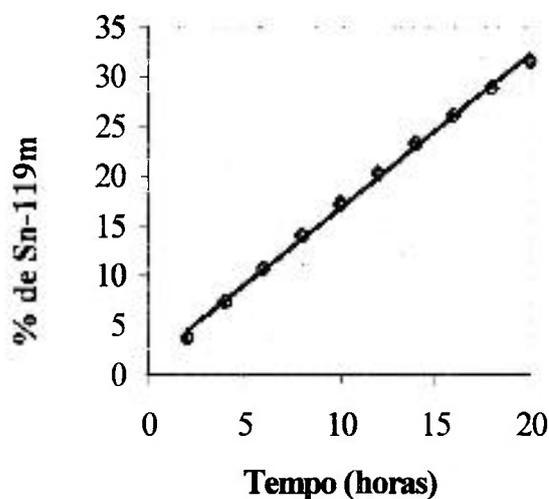


Figura 24. Porcentagem de ^{119m}Sn por unidade de tempo.

Pelo gráfico da Figura 24, observa-se que em 20 horas obtém-se cerca de 30% de atividade máxima de ^{119m}Sn e num tempo de espera de 10 horas, a atividade máxima diminui para 17%.

O rendimento máximo esperado de ^{119m}Sn é menor que $2\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$, devido à abundância dos isótopos responsáveis pela reação nuclear, à sua meia-vida e à meia-vida do pai, enquanto que 30% deste valor corresponde a $0,6\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$, o que implicaria num nível de 3 % de impureza de ^{119m}Sn no ^{117m}Sn , o que é um valor perfeitamente aceitável.

5. CONCLUSÃO

Foi desenvolvido um método de preparação de ^{117m}Sn , radioisótopo de interesse como traçador de estanho e em radioterapia, com rendimentos de produção em torno de 400 $\mu\text{Ci/h}$ de irradiação no Ciclotron CV-28 e 2mCi/h de irradiação no Ciclotron Cyclone 30 do IPEN..

Como o ^{117m}Sn é obtido a partir de reações nucleares $^{nat}\text{Sn} (p, xn) ^{117}\text{Sb} \rightarrow ^{117m}\text{Sn}$, há necessidade de separar Sn de Sb, porém a separação química entre eles é muito complexa, devido às semelhanças de comportamento químico e também porque ambos apresentam dois estados de valência estáveis.

Para separá-los, utilizou-se o método de troca aniônica, o qual permitiu obterem-se os melhores resultados em comparação com a troca catiônica. Além disso, utilizou-se uma solução saturada de hidrazina como agente oxidante do estanho.

Foram também desenvolvidos métodos de controle de qualidade, em especial, os controles químicos e radioquímicos. Os resultados obtidos mostram que é possível preparar o ^{117m}Sn com altas purezas química, radioquímica e radionuclídica.

A Figura 25 apresenta um esquema para o processo de preparação do ^{117m}Sn , desde a irradiação até a separação química e purificação do ^{117m}Sn . Os tempos decorridos em cada processo são importantes, porque definem a presença dos contaminantes de ^{113}Sn e ^{119m}Sn .

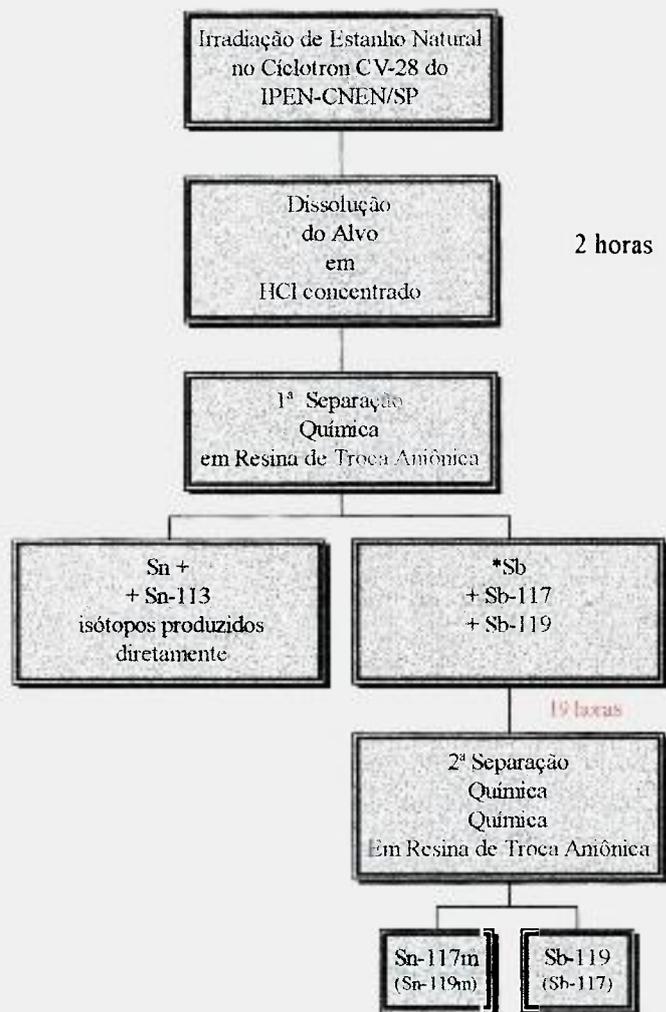


Figura 25. Esquema do Processo de Separação do ^{117m}Sn .

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ¹ HELLUS, F. *Radionuclides Production*. Boca Raton, U.S.A.: CRC Press, 1983.
- ² STOCKLIN, G. QAIM, S. M. E ROSCH, F. The Impact of Radioactivity on Medicine, *Rad. Acta*; v. 70/71, p. 249-272, 1995.
- ³ ROCHA, A. F. G. *Medicina Nuclear*. Rio de Janeiro, RJ.: Guanabara Koogan, 1976.
- ⁴ Saha, G. B. *Fundamentals of Nuclear Pharmacy*. Cleveland, U.S.A.: Springer, 1998.
- ⁵ LENTLE, B. C. AND HOOPER, R. The Second Insight: Radionuclide Diagnosis. *Radiat. Phys. Chem.*, v. 24, n. 3/4, p. 373 - 383, 1984.
- ⁶ BOSNJAKOVIC, V. The Design of a Universal Nuclear Medicine Imager; p. 887.
- ⁷ OSSO, JR. J. A. *⁷⁷Br Isotope Production for Medical Use*. Manchester: 1986. Tese (Doutorado) - University of Manchester.
- ⁸ WEINER, R. E. E THAKUR, M. L. Metallic Radionuclides: Applications in Diagnostic and Therapeutic Nuclear Medicine; *Rad. Acta*, v. 70/71, p. 273-287, 1995.
- ⁹ WILLIAMS, J. R. AND THWAITES, D. I.; *Radiotherapy Physics*; New York, USA.: Oxford University Press, 1993.
- ¹⁰ VOLKERT, W. A.; GOECKLER, W. F.; EHERHARDT G. J. AND KETRING, A. R. Therapeutic Radionuclides: Production and Decay Property Considerations. *J. Nuclear Medicine*, v. 32, n. 1, p. 174-185, 1991.
- ¹¹ RUIZ, H. V. *Radionucleidos para la Terapia Paliativa del Dolor em Caso de Metastasis Oseas*. In: XII CONGRESSO DE LA SOCIEDAD LATINOAMERICANA DE SOCIEDADES DE BIOLOGÍA Y MEDICINA NUCLEAR; 18-22 de octubre, 1993, Cartagena das Indias, Colombia;.
- ¹² MCKAY, H. A.C. *Principles of Radiochemistry*. London, U. K.: Butterworth & Co, 1971.
- ¹³ SCHARF, W. *Particle Accelerators and Theirs Uses*. London, U. K.: Harwood Academic Publishers, 1986.

- ¹⁴ CHOPPIN G. R. AND RYDBERG J. *Nuclear Chemistry: Theory and Applications*. Oxford, U.K.: Pergamon Press, 1980.
- ¹⁵ LEDERER, C. M.; SHIRLEY, V. S. *Table of Isotopes*; 7 ed. New York, U.S.A.: John Wiley, 1978.
- ¹⁶ KOCHER, D. C.; *Radioactive decay data tables, a handbook of decay for application to radiation dosimetry and radiological assessments*; Oak Ridge National Laboratory: USA, 1981 (DOE/TIC-11026).
- ¹⁷ SRIVASTAVA S. C.; MEINKEN, G. E.; RICHARDS, P.; SOM, P.; OSTER, Z. H.; ATKINS, H. L.; BRILL, A. B.; KNAPP, F. F. JR; BUTLER, T. A. The Development and In-Vivo Behavior of Tin Containing Radiopharmaceuticals - I. Chemistry, Preparation and Biodistribution in Small Animals. *Int. Nucl. Med. Biol.*, v. 12, n. 3, p. 167-74, 1985.
- ¹⁸ OSTER, Z. H.; SOM, P.; SRIVASTAVA, S. C.; FAIRCHILD, R. G.; MEINKEN, G. E.; TILLMAN, D. V.; SACKER, D. F.; RICHARDS, P.; ATKINS, H. L.; BRILL, A. B.; KNAPP, F. F. Jr; BUTLER, T. A. The Development and In-Vivo Behavior of Tin Containing Radiopharmaceutical - II. Autoradiographic and Scintigraphic Studies in Normal Animals and in Animal Models of Bone Disease. *Int. J. Nucl. Med. Biol.*, v. 12, n. 3, p.175-184, 1985.
- ¹⁹ MAUSNER, L. F.; MEINKEN, G. E.; SRIVASTAVA, S. C.; BURLINGTON, H. S.; CRONKITE, E. P. The Effect on Marrow and Tumor of Bone Cancer Agent Sn-117mDTPA vs P-32. *J. Nucl. Med.*, v.30, p.1754, 1989 (abstract).
- ²⁰ ATKINS, H. L.; MAUSNER, L. F.; CABAUG, C. J.; MEINKEN, G. E.; STRAUB, R. F.; WEBER, D. A.; SRIVASTAVA, S. C. Tin-117m(4+)DTPA: A Potencial Agent for Pain Palliation from Osseous Metastases. *J. Nucl. Med.*, v. 9, p. 1840, 1991 (abstract).
- ²¹ SRIVASTAVA, S. C.; ATKINS H. L. AND SCHIMA, F. J. Treatment of Metastatic Bone Pain with Tin-117m Stannic Diethylenetriaminepentaacetic Acid: A Phase I/II Clinical Study. *Clin. Cancer Res.* v. 4, p. 61-68, 1998.

- ²² MAUSNER, L. F.; KOLSKY, K. L., JOSHI, V. ET ALL. Radionuclide Development at BNL for Nuclear Medicine Therapy. *Appl. Radiat. Isotopes.*, v. 49, p. 285-294, 1998.
- ²³ ZIMMERMAN, B. E.; CESSNA, J. T. AND SCHIMA, F. J. The Standardization of the Potential Bone Palliation Radiopharmaceutical Sn-117m(+4)DTPA. *Appl. Radiat. Isotopes.*, v. 49, p. 317-328, 1998.
- ²⁴ SRIVASTAVA, S. C. , ATIKINS H. L., KRISHANAMURTHY, G. T., ET ALL. Long-Term Analysis of Clinical Data from Patients Treat with Sn-117mDTPA for Metastatic Bone Pain. *J. Nucl. Med.* v. 40 (Suppl), p. 65, 1999. (abstract)
- ²⁵ BISHAYEE, A.; HOWELL, R. W.; SRIVASTAVA, S. C., ET ALL. Marrow Sparing Effects of Sn-117m-DTPA for Palliation of Bone Pain. *J. Nucl. Med.* v. 40 (Suppl), p. 219, 1999. (abstract)
- ²⁶ www.ornl.gov/isotopes/r_sn117m.htm - data: 15/07/1999 - horário: 13:52h.
- ²⁷ Neutron Cross Sections; v. 1, BNL-325, 1973.
- ²⁸ YANO, Y.; CHU, P.; ANGER, H. O. Tin-117m: Production, Chemistry and Evaluation as a Bone-Scanning Agent. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, v. 24, p. 319-325, 1973.
- ²⁹ SRIVASTAVA, S. C.; RICHARDS, P.; MEINKEN, G. E.; SOM, P.; KAPP, F. F. Jr.; BUTLER, T. A. In-vivo behavior of tin-117m(2+ and 4+)-labeled DTPA and MDP. Preparation, tissue distribution in mice and imaging in dogs. In: THIRD WORLD CONGR. NUCL. MED. AND BIOL.. Aug 29 - Sep 2, 1982, Paris. *Proceedings ...* Paris: 1982. v. 2, p.1635-1638.
- ³⁰ FUKUSHIMA, S.; HAYASHI, S.; KUME, S.; OKAMURA, H.; OTOZAI, K.; SAKAMOTO, K.; TSUJINO, R.; YOSHIZAWA, Y. The Production of High Specific Activities of Tin *Bull. Chem. Soc. Japan*, v. 36, p.1225-1228, 1963.
- ³¹ MONTGOMERY, D. M.; PORILE, N. T. Reactions of ¹¹⁶Cd with Intermediate energy ³He and ⁴He Ions. *Nucl. Phys.*, A 130, p. 65-76, 1969.
- ³² QAIM, S. M.; DÖHLER, H. Production of Carrier-Free ^{117m}Sn. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, v. 35, n. 7, p. 645-650, 1984.

- ³³ MAUSNER, L. F.; MIRZADEH, S.; WARD, T.E. Nuclear Data For Production of ^{117m}Sn For Biomedical Application. *Radiat. Effects*, v. 94, n. 1-4, p. 59-64, 1986.
- ³⁴ MAUSNER, L. F.; MIRZADEH, S.; SRIVASTAVA, S. C. Improved Specific Activity of Reactor Produced ^{117m}Sn with the Sizalard-Chalmers Process. *Appl. Radiat. Isot.* v. 43, n. 9, p. 1117-1122, 1992.
- ³⁵ BAILAR, J. *Comprehensive Inorganic Chemistry*. London, U.K.: Pergamon Press, 1973.
- ³⁶ LIDE, D. R.; *Handbook of Chemistry and Physics*. 75 ed. Boca Raton, U.S.A.: CRC Press, 1994-1995.
- ³⁷ ERDTAMANN, G. AND SOYKA, W. *J. Radioanal. Chem.*, v. 26, p. 461-9, 1975.
- ³⁸ ABRÃO, A. *Operações de Troca Iônica*. São Paulo, SP.: Apostila (Curso de Pós-Graduação em Química) - Instituto de Química da Universidade de São Paulo.
- ³⁹ WEISS, J. *Handbook of Ion Chromatography*. Califórnia, U.S.A.: Dionex corporation, 1986.
- ⁴⁰ KITCHERMER, J. A. *Ion-Exchange Resins*. New York, U.S.A: John Wiley & Sons, 1958.
- ⁴¹ KUNIN, R. *Ion Exchange Resin*. New York, USA.: John Wiley & Sons, 1958.
- ⁴² VOGEL, A. I. *Análise Química Quantitativa*. São Paulo, SP.: Guanabara Koogan, 1981.
- ⁴³ PIRES, M. A. F. *Aplicação da Cromatografia de Íons no Controle de Materiais de Interesse Nuclear*. São Paulo: 1990. Tese (Doutoramento) - Instituto de Química da Universidade de São Paulo.
- ⁴⁴ LEDERER, M. *Chromatography for Inorganic Chemistry*. Baffins Lane, Chinchester .: John Wiley & Sons, 1994.