



**AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE  
DE SÃO PAULO**

# **ESTUDO DA PRODUÇÃO DE $^{57}\text{Co}$ E $^{109}\text{Cd}$ EM CÍCLOTRON**

**LILIANE LANDINI**

**Tese apresentada como parte dos  
requisitos para obtenção do Grau de  
Doutor em Ciências na Área de  
Tecnologia Nuclear - Aplicações.**

**Orientador:  
Dr. João Alberto Osso Júnior**

**São Paulo  
2000**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES  
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

ESTUDO DA PRODUÇÃO DE  $^{57}\text{Co}$  E  $^{109}\text{Cd}$  EM CÍCLOTRON

LILIANE LANDINI



Tese apresentada como parte dos requisitos para obtenção do grau de "Doutor em Ciências" na Área de Tecnologia Nuclear.

Orientador: Dr. João Alberto Osso Júnior

SÃO PAULO

2000



Aos meus pais, Romeu e Rivalda  
Aos meus irmãos, Romeu e Magda  
Ao meu amor, Marcelo

## AGRADECIMENTOS

- A Deus, sobre todas as coisas.
- Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, pela oportunidade da realização deste trabalho.
- Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq), pelo apoio financeiro.
- Ao Centro de Radiofarmácia, pela oportunidade e apoio para a realização deste trabalho.
- Ao Laboratório de Ciclotrons, pela realização das irradiações.
- Ao Dr. João Alberto Osso Júnior, meu orientador, pelo incentivo, pelos conselhos, pela dedicação, pela paciência e pelo profissionalismo, em todos os momentos. Tudo o que eu disser, ainda será pouco. Eu devo muito a você. Muito obrigada.
- À M.Sc. Sumair Gouveia de Araújo, que sempre esteve presente, prestando apoio e amizade, acima de tudo, pela colaboração profissional e pela boa vontade. Eu também devo muito a você. Muito obrigada.
- Aos meus pais, pela demonstração de incentivo, carinho, apoio e paciência, durante toda minha vida, e sem os quais eu não teria chegado até aqui. Eu devo tudo a vocês. Muito obrigada.
- Ao meu amor, Marcelo, pela admiração, pelo carinho e pelo apoio. Você é muito especial. Muito obrigada.
- A todas as outras pessoas, que direta ou indiretamente, contribuíram para a realização deste trabalho.

# ESTUDO DA PRODUÇÃO DE $^{57}\text{Co}$ E $^{109}\text{Cd}$ EM CÍCLOTRON

LILIANE LANDINI

## RESUMO

O objetivo principal deste trabalho foi o estudo completo de todos os parâmetros envolvidos na produção de  $^{57}\text{Co}$ , através da irradiação de Ni natural ( $^{\text{nat}}\text{Ni}$ ) com feixe de prótons do Cíclotron *CV-28* do *IPEN-CNEN/SP*. As funções de excitação destas reações foram medidas pela técnica de empilhamento de folhas e comparadas com valores de literatura e com os gerados pelo código *ALICE*. Os resultados mostraram uma boa concordância com os valores experimentais encontrados para os radioisótopos:  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ . Rendimentos de alvo grosso dos mesmos foram medidos, encontrando-se valores médios de  $(346,69 \pm 203,50)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$ , para a produção direta de  $^{57}\text{Co}$  e de  $(150,59 \pm 29,60)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$ , pelo decaimento de  $^{57}\text{Ni}$  (11,31 dias após o *EOB* – *End of Bombardment* = fim do bombardeamento). Foi preparada uma solução de  $^{57}\text{CoCl}_2$ , para preencher uma fonte plana homogênea para calibração de câmara gama, com atividade de 222 MBq (6 mCi) de  $^{57}\text{Co}$  e impurezas de  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$ , com níveis de 1,13 e 1,29%, respectivamente, na data da entrega. Para tanto, foi desenvolvido um método de separação química com rendimento de 93% para o  $^{57}\text{Co}$  e perda desprezível de Ni. Um alvo composto de Ni e Ag foi preparado e um método de separação química proposto para isolar os alvos e os produtos de interesse,  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$ . Os rendimentos obtidos nas irradiações de alvo composto foram:  $(947,94 \pm 239,39)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$  de  $^{57}\text{Co}$  - via direta;  $(259,00 \pm 35,15)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$  de  $^{57}\text{Co}$  - via indireta (11,31 dias após o *EOB*) e  $(71,41 \pm 5,55)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$  de  $^{109}\text{Cd}$ , os quais mostraram a eficiência de seu uso, assim como a separação química com rendimento de 80% para  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$ . A melhor condição para a produção de  $^{57}\text{Co}$ , com menor nível de impureza radionuclídica, foi o uso da reação indireta, realizando-se a separação química 2 horas após o *EOB* e a espera de 11,31 dias para a separação do  $^{57}\text{Co}$ .

# $^{57}\text{Co}$ AND $^{109}\text{Cd}$ PRODUCTION STUDY IN CYCLOTRON

LILIANE LANDINI

## ABSTRACT

The main objective of this work was the detailed study of all parameters involved in the production of  $^{57}\text{Co}$  through the irradiation of natural Ni ( $^{\text{nat}}\text{Ni}$ ) with a proton beam of the *CV-28* Cyclotron at *IPEN-CNEN/SP*. The excitation functions of these reactions were measured by the stacked foil technique and were compared with literature values and those generated by the *ALICE* code. The results showed a good agreement with the experimental values measured for the radioisotopes:  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  and  $^{57}\text{Ni}$ . Thick target yields for these radioisotopes were measured, and the mean values were  $(346.69 \pm 203.50)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$ , for the direct production of  $^{57}\text{Co}$  and  $(150.59 \pm 29.60)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$ , through the decay of  $^{57}\text{Ni}$  (11,31days after *EOB* - *End of Bombardment*). A solution of  $^{57}\text{CoCl}_2$  was prepared, to fill a *flood source* for calibration of gamma camera, with activity of 222MBq (6mCi) of  $^{57}\text{Co}$  and impurity levels of 1.13 and 1.29% for  $^{56}\text{Co}$  and  $^{58}\text{Co}$ , respectively, at delivery time. In order to achieve these results, a chemical separation method was developed with a separation yield of 93% for  $^{57}\text{Co}$  and a negligible loss of Ni. A composite target of Ni and Ag was prepared and a chemical separation method proposed to allow the separation between the targets and the products of interest,  $^{57}\text{Co}$  and  $^{109}\text{Cd}$ . The yields obtained in the irradiation of the composite target were:  $(947.94 \pm 239.39)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$  of  $^{57}\text{Co}$  - direct reaction,  $(259.00 \pm 35.15)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$  of  $^{57}\text{Co}$  - indirect reaction (11,31days after *EOB*) and  $(71.41 \pm 5.55)\text{kBq}/\mu\text{A.h}$  of  $^{109}\text{Cd}$ , which showed the efficiency of its use, as well as the chemical separation, with a yield of 80% for  $^{57}\text{Co}$  and  $^{109}\text{Cd}$ . The best conditions for the production of  $^{57}\text{Co}$ , with the least level of radionuclidic impurities was the use of the indirect reaction, and performing the chemical separation 2hours after *EOB* and a decay time of 11.31days for the separation of  $^{57}\text{Co}$ .

## ÍNDICE

	<b>Página</b>
<b>CAPÍTULO 1: INTRODUÇÃO</b>	<b>01</b>
1.1 <i>Introdução Geral</i>	<i>01</i>
1.2 <i>Produção de Radioisótopos</i>	<i>03</i>
1.2.1 <i>Reatores Nucleares</i>	<i>03</i>
1.2.2 <i>Ciclotrons</i>	<i>05</i>
1.2.2.1 <i>Descrição Geral de um Ciclotron</i>	<i>06</i>
1.2.2.2 <i>Tipos de Alvos Utilizados em Ciclotrons</i>	<i>10</i>
1.2.2.2.1 <i>Sólidos</i>	<i>10</i>
1.2.2.2.2 <i>Líquidos/Fundidos</i>	<i>11</i>
1.2.2.2.3 <i>Gasosos</i>	<i>11</i>
1.2.2.3 <i>Sistemas de Alvos utilizados em Ciclotrons</i>	<i>12</i>
1.2.2.3.1 <i>Alvos para Irradiações com Feixes Internos</i>	<i>12</i>
1.2.2.3.2 <i>Alvos para Irradiações com Feixes Externos</i>	<i>13</i>
1.3 <i>Produção de <sup>109</sup>Cd</i>	<i>13</i>
1.3.1 <i>Produção de <sup>109</sup>Cd em Reatores Nucleares</i>	<i>15</i>
1.3.2 <i>Produção de <sup>109</sup>Cd em Ciclotrons</i>	<i>16</i>
1.4 <i>Produção de <sup>57</sup>Co</i>	<i>20</i>
1.4.1 <i>Produção de <sup>57</sup>Co em Reatores Nucleares</i>	<i>21</i>
1.4.2 <i>Produção de <sup>57</sup>Co em Ciclotrons</i>	<i>22</i>
1.4.2.1 <i>Cu + p</i>	<i>22</i>
1.4.2.2 <i>Mn + <sup>3</sup>He<sup>++</sup></i>	<i>23</i>
1.4.2.3 <i>Mn + α</i>	<i>23</i>
1.4.2.4 <i>Fe + <sup>3</sup>He<sup>++</sup></i>	<i>23</i>
1.4.2.5 <i>Fe + d</i>	<i>24</i>
1.4.2.6 <i>Fe + α</i>	<i>25</i>
1.4.2.7 <i>Fe + p</i>	<i>26</i>
1.4.2.8 <i>Co + p</i>	<i>26</i>
1.4.2.9 <i>Ni + α</i>	<i>29</i>
1.4.2.10 <i>Ni + d</i>	<i>31</i>

1.4.2.11 Ni + $^3\text{He}^{++}$	31
1.4.2.12 Ni + p	32
1.5 Fundamentos Teóricos de Reações Nucleares	38
1.5.1 Secções de Choque	38
1.5.1.1 Secções de Choque de Reações Nucleares	38
1.5.1.2 Reações Monitoras	39
1.5.2 Cálculos de Funções de Excitação para Reações Nucleares Induzidas por Partículas Carregadas	41
1.5.2.1 Considerações Gerais	41
1.5.2.2 Modelos e Parâmetros	43
1.5.2.2.1 Mecanismos das Reações e sua Importância para Secções de Choque dos Produtos de Ativação	43
1.5.2.2.2 O Modelo de Evaporação do Núcleo Composto	44
1.5.2.2.3 Modelos para Emissão de Pré-equilíbrio	46
1.5.2.2.3.1 O Modelo de Exciton	47
1.5.2.2.3.2 O Modelo Híbrido	47
1.5.3 Códigos de Computador	48
1.5.3.1 Código ALICE	48
1.5.3.2 Códigos STAPRE e GNASH	49
1.5.3.3 Código CCRMN	50
1.5.3.4 Código TNG1	51
1.6 Demanda por Fontes de $^{57}\text{Co}$ e $^{109}\text{Cd}$	51
<b>CAPÍTULO 2: OBJETIVOS</b>	<b>54</b>
<b>CAPÍTULO 3: MATERIAIS E MÉTODOS</b>	<b>57</b>
3.1 Aceleradores: Ciclotron CV-28 e Cyclone 30	57
3.2 Escolha das Reações de Interesse	64

<i>3.3 Medidas de Radioatividade e Absorção Atômica</i>	<i>67</i>
<i>3.3.1 Espectrometria Gama</i>	<i>67</i>
<i>3.3.1.1 Calibração dos Detectores de Ge(HP)</i>	<i>69</i>
<i>3.3.1.2 Contagens de Fontes com Atividades Conhecidas</i>	<i>70</i>
<i>3.3.1.3 Calibrador de Dose</i>	<i>70</i>
<i>3.3.2 Espectrofotometria de Absorção Atômica</i>	<i>70</i>
<i>3.4 Cálculos de Alcance</i>	<i>71</i>
<i>3.5 Metodologia</i>	<i>72</i>
<i>3.5.1 Funções de Excitação</i>	<i>72</i>
<i>3.5.2 Rendimentos de Alvo Grosso</i>	<i>75</i>
<i>3.5.2.1 Experimentais</i>	<i>75</i>
<i>3.5.2.2 Teóricos</i>	<i>76</i>
<i>3.5.3 Medidas de Corrente e Energia do Feixe</i>	<i>77</i>
<i>3.5.4 Produção de Solução de <sup>57</sup>CoCl<sub>2</sub></i>	<i>77</i>
<i>3.5.4.1 Irradiações de Ni</i>	<i>77</i>
<i>3.5.4.2 Separação Química de Ni-Ni*-Co*</i>	<i>78</i>
<i>3.5.5 Produção de <sup>57</sup>Co e <sup>109</sup>Cd</i>	<i>79</i>
<i>3.5.5.1 Irradiações de Ni e Ag (alvo composto)</i>	<i>79</i>
<i>3.5.5.2 Separação Química de Ni e Ag (alvo composto)</i>	<i>79</i>
<b><i>CAPÍTULO 4: RESULTADOS E DISCUSSÕES</i></b>	<b><i>81</i></b>
<i>4.1 Medidas de Radioatividade</i>	<i>81</i>
<i>4.1.1 Espectrometria Gama</i>	<i>81</i>
<i>4.1.1.1 Calibração dos Detectores de Ge(HP)</i>	<i>81</i>
<i>4.1.1.2 Contagens de Fontes com Atividades Conhecidas</i>	<i>81</i>
<i>4.2 Metodologia</i>	<i>82</i>
<i>4.2.1 Funções de Excitação</i>	<i>82</i>
<i>4.2.2 Rendimentos de Alvo Grosso</i>	<i>89</i>
<i>4.2.2.1 Experimentais</i>	<i>89</i>
<i>4.2.2.2 Teóricos</i>	<i>90</i>
<i>4.2.3 Medidas de Corrente e Energia do Feixe</i>	<i>90</i>

<i>4.2.4 Produção de Solução de <math>^{57}\text{CoCl}_2</math></i>	<i>93</i>
<i>4.2.4.1 Irradiações de Ni</i>	<i>93</i>
<i>4.2.4.2 Separação Química de Ni-Ni*-Co*</i>	<i>93</i>
<i>4.2.5 Produção de <math>^{57}\text{Co}</math> e <math>^{109}\text{Cd}</math></i>	<i>94</i>
<i>4.2.5.1 Irradiações de Ni e Ag (alvo composto)</i>	<i>94</i>
<i>4.2.5.2 Separação Química de Ni e Ag (alvo composto)</i>	<i>95</i>
<i>4.3 Escolha das melhores condições para produção de <math>^{57}\text{Co}</math></i>	<i>95</i>
<b><i>CAPÍTULO 5: CONCLUSÕES</i></b>	<b><i>100</i></b>
<b><i>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS</i></b>	<b><i>102</i></b>

## LISTA DE TABELAS

	Página
<b>Tabela 1.1:</b> <i>Isótopos radioativos de Cádmio.</i>	14
<b>Tabela 1.2:</b> <i>Isótopos radioativos de Cobalto.</i>	21
<b>Tabela 1.3:</b> <i>Variação no fornecimento de Fonte Mössbauer de <math>^{57}\text{Co}</math>, normalizada para o ano de 1968.</i>	52
<b>Tabela 1.4:</b> <i>Variação no fornecimento de Fonte de <math>^{109}\text{Cd}</math>, para uso em EDXRF, normalizada para o ano de 1975.</i>	53
<b>Tabela 3.1:</b> <i>Características nominais do Cíclotron CV-28 do IPEN-CNEN/SP.</i>	59
<b>Tabela 3.2:</b> <i>Valores de <math>Q</math> (MeV) e <math>E_{lim}</math> (MeV) das reações nucleares induzidas por prótons, em alvos de <math>^{nat}\text{Ag}</math>, passíveis de ocorrência no Cíclotron CV-28 do IPEN.</i>	65
<b>Tabela 3.3:</b> <i>Valores de <math>Q</math> (MeV) e <math>E_{lim}</math> (MeV) das reações nucleares induzidas por prótons, em alvos de <math>^{nat}\text{Ni}</math>, passíveis de ocorrência no Cíclotron CV-28 do IPEN.</i>	66
<b>Tabela 3.4:</b> <i>Propriedades físicas de decaimento de todos os radionuclídeos identificados nas amostras irradiadas.</i>	68
<b>Tabela 3.5:</b> <i>Radionuclídeos e respectivas características de decaimento adotados nas calibrações dos detectores.</i>	69
<b>Tabela 4.1:</b> <i>Funções de excitação de reações nucleares induzidas por prótons em <math>^{nat}\text{Ni}</math>.</i>	82
<b>Tabela 4.2:</b> <i>Comparação da produção de <math>^{57}\text{Co}</math>, através de reações de Ni com prótons.</i>	85
<b>Tabela 4.3:</b> <i>Rendimentos de produção experimentais médios, dos radionuclídeos formados nas irradiações de <math>^{nat}\text{Ni}</math> com prótons, corrigidos para o EOB.</i>	90
<b>Tabela 4.4:</b> <i>Rendimentos de produção médios dos radionuclídeos formados, corrigidos para o EOB, em alvos de <math>^{nat}\text{Ni}</math> e <math>^{nat}\text{Ag}</math> irradiados com feixe de prótons.</i>	94

## LISTA DE FIGURAS

	<i>Página</i>
<b>Figura 1.1:</b> <i>Representação Geral de um Cíclotron e seu princípio de funcionamento.</i>	08
<b>Figura 3.1:</b> <i>Diagrama esquemático do Cíclotron CV-28 e Sistema de Transporte do Feixe.</i>	58
<b>Figura 3.2:</b> <i>Cíclotron CV-28 e Sistema de Transporte do Feixe instalados na caverna.</i>	59
<b>Figura 3.3:</b> <i>Câmara de vácuo do Cíclotron CV-28, mostrando a ponta de prova, os "dês" e o sistema de extração do feixe.</i>	60
<b>Figura 3.4:</b> <i>Linha de feixe principal, distribuidor magnético e linhas de feixe secundárias do Cíclotron CV-28.</i>	63
<b>Figura 3.5:</b> <i>Diagrama esquemático das folhas empilhadas no porta-alvo para serem irradiadas.</i>	73
<b>Figura 4.1:</b> <i>Funções de excitação de reações nucleares induzidas por prótons em <math>^{nat}Ni</math>, para a produção de <math>^{55}Co</math>, <math>^{56}Co</math> e <math>^{57}Co</math>, de acordo com os valores da Tabela 4.1.</i>	83
<b>Figura 4.2:</b> <i>Funções de excitação de reações nucleares induzidas por prótons em <math>^{nat}Ni</math>, para a produção de <math>^{58}Co</math>, <math>^{56}Ni</math> e <math>^{57}Ni</math>, de acordo com os valores da Tabela 4.1.</i>	84
<b>Figura 4.3:</b> <i>Comparação dos valores de literatura com os dados obtidos neste trabalho, das funções de excitação de Ni com prótons, para a produção de <math>^{55}Co</math> e <math>^{56}Co</math>.</i>	86
<b>Figura 4.4:</b> <i>Comparação dos valores de literatura com os dados obtidos neste trabalho, das funções de excitação de Ni com prótons, para a produção de <math>^{57}Co</math>, <math>^{57}Ni</math> e <math>^{56}Ni</math>.</i>	87
<b>Figura 4.5:</b> <i>Funções de excitação de reações nucleares induzidas por prótons em <math>^{nat}Ni</math>, calculadas com o código ALICE, para a produção de <math>^{55}Co</math>, <math>^{56}Co</math>, <math>^{57}Co</math>, <math>^{58}Co</math>, <math>^{56}Ni</math> e <math>^{57}Ni</math>.</i>	88

- Figura 4.6:** Rendimentos de produção teóricos obtidos para o  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$  e  $^{57}\text{Co}$ , calculados pela expressão (3.9) e com as funções de excitação experimentais. 91
- Figura 4.7:** Rendimentos de produção teóricos obtidos para o  $^{56}\text{Ni}$ ,  $^{57}\text{Ni}$  e  $^{58}\text{Co}$ , calculados pela expressão (3.9) e com as funções de excitação experimentais. 92
- Figura 4.8:** Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$  produzido direta e indiretamente, utilizando os valores experimentais obtidos para alvo grosso. 97
- Figura 4.9:** Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$  produzido indiretamente, utilizando os valores experimentais obtidos para alvo grosso. 97
- Figura 4.10:** Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$  produzido direta e indiretamente, utilizando os valores experimentais obtidos para alvo composto. 98
- Figura 4.11:** Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$  produzido indiretamente, utilizando os valores experimentais obtidos para alvo composto. 98
- Figura 4.12:** Diagrama do método proposto para a produção de  $^{57}\text{Co}$  via decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ . 99

## **CAPÍTULO 1**

### **INTRODUÇÃO**

#### **1.1 Introdução Geral**

O Cíclotron é um acelerador de partículas carregadas, geralmente: prótons (p), dêuterons (d), Hélio-3 ( $^3\text{He}^{++}$ ) e partículas alfa ( $^4\text{He}^{++}$  ou  $\alpha$ ). Atualmente, em virtude de avanços tecnológicos, há Cíclotrons que aceleram íons  $\text{H}^-$ , os quais, posteriormente, são transformados em prótons e estes bombardeiam os alvos desejados. Com estes dois tipos de aceleradores, é possível a realização de estudos em Física Nuclear, danos de irradiação e produção de radioisótopos. Neste último caso, a produção pode ser muito variada, dependendo, obviamente, da característica de cada Cíclotron. Alguns radioisótopos possuem propriedades físicas de decaimento adequadas para serem utilizados, tanto em Diagnóstico por imagem "in vivo", na Medicina Nuclear (com as técnicas de *SPET* e *PET*, *Single Photon Emission Tomography* – Tomografia por Emissão de Fóton Único e *Positron Emission Tomography* – Tomografia por Emissão de Pósitron, respectivamente), como fontes de calibração de diversos instrumentos na área nuclear e na metrologia em particular, ou então, como traçadores radioativos de elementos investigados em diversas áreas, como: Química, Física e Biologia. No primeiro caso, podem ser citados o  $^{11}\text{C}$ ,  $^{13}\text{N}$ ,  $^{15}\text{O}$ ,  $^{18}\text{F}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{77}\text{Br}$ ,  $^{111}\text{In}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{201}\text{Tl}$ , além de outros; no segundo,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{49}\text{V}$  e  $^{55}\text{Fe}$ ; e no terceiro,  $^{111}\text{In}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ , etc.

Dois radioisótopos são importantes do ponto de vista de produção de fontes de calibração, utilizando-se Cíclotrons:  $^{109}\text{Cd}$  e  $^{57}\text{Co}$ . O  $^{109}\text{Cd}$  tem meia-vida de 462,9 dias e decai por captura eletrônica (c.e.) para a  $^{109}\text{Ag}$ , emitindo um raio gama ( $\gamma$ ) de energia de 88keV (intensidade relativa de 3,79%), além do raio-X característico K da Ag, de 22,54keV (102%)<sup>(1)</sup>. Por possuir tais características, o  $^{109}\text{Cd}$  é utilizado para calibração de detectores de raios-X e raios  $\gamma$ , além de ser

amplamente utilizado como traçador radioativo do elemento Cd, que é um elemento ligado ao meio ambiente, pelo uso de produtos, em alta escala, nos quais o metal está presente como impureza, tais como materiais feitos de Zinco, carvão para geração de energia elétrica e fertilizantes fosfatados <sup>(2)</sup>. Além disso, também é usado na técnica de *EDXRF* (*Energie Dispersive X-Ray Fluorescence* - Fluorescência de Raios-X por Dispersão de Energia) <sup>(3)</sup>.

O <sup>57</sup>Co tem meia-vida de 271,3 dias e decai por c.e. para o <sup>57</sup>Fe. Neste decaimento, há a emissão de raios  $\gamma$  de energias de 14,4keV (intensidade relativa de 7,8%), 122keV (84,8%), 136keV (11,4%) e 690keV (0,2%), além do raio-X característico da camada K do Fe, com energia de 6,5keV (48%) <sup>(1)</sup>. Em virtude de apresentar tais propriedades, o <sup>57</sup>Co é amplamente utilizado como fonte de calibração dos detectores de radiação, usados em Diagnóstico na Medicina Nuclear, em especial as câmaras gama. Fontes planas homogêneas (*Flood Sources*) de <sup>57</sup>Co são muito utilizadas para avaliar a uniformidade de resposta destes equipamentos. Este é um procedimento crítico de controle de qualidade, para assegurar a resposta uniforme na área total do detector. As energias do <sup>57</sup>Co simulam a do <sup>99m</sup>Tc ( $t_{1/2}=6h$ ;  $E_{\gamma}=140.5keV - 85\%$ ) <sup>(1)</sup>, que é o radioisótopo mais empregado em Diagnóstico na Medicina Nuclear. Outro uso é como fonte de calibração de vários detectores na área nuclear, como detectores de raios-X e raios  $\gamma$ : Ge(Li), Ge(HP), NaI(Tl) e detectores de poço (calibradores de dose). Além disso, a emissão do raio  $\gamma$  de 14,4keV torna o <sup>57</sup>Co o radioisótopo mais utilizado na Técnica de Espectroscopia Mössbauer, que é bem estabelecida em Física e Química. O <sup>57</sup>Co ainda pode ser usado como marcador e dimensionador, ajudando na localização de órgãos <sup>(4)</sup>. Também pode ser utilizado em kits de Diagnóstico "in vitro", para o estudo de Anemia relacionada à deficiência e má absorção de vitamina B<sub>12</sub> (*Teste de Schilling*) <sup>(5)</sup>. Mais recentemente, foi usado como marcador da Bleomicina (droga utilizada em Quimioterapia), para detecção de tumores. Porém, seu uso não é mais amplo, em virtude de sua meia-vida longa, apesar da dose absorvida ser relativamente baixa<sup>(6)</sup>. Outra aplicação do <sup>57</sup>Co é em Dosimetria Interna. Bringham et al <sup>(7)</sup>, em 1997, estudaram a distribuição e retenção de Cobalto nos tecidos, após injeção intravenosa de solução radioativa

em ratos machos, para obtenção de informação detalhada da biocinética deste elemento (e outros) nos tecidos reprodutores destes. Foi utilizado  $^{57}\text{Co}$  (210MBq/ $\mu\text{g}$  ou 5,67mCi/ $\mu\text{g}$  de Co), adquirido da *Amersham International (Bucks, UK)*. Após diluição e dissolução, a concentração final da solução foi de 50kBq/mL (1,35 $\mu\text{Ci/mL}$ ), que foi administrada por via intravenosa, nos ratos, sob a forma de Citrato. O  $^{57}\text{Co}$  foi rapidamente eliminado, com menos de 5% da atividade injetada retida após 4 semanas. Os rins e o fígado foram os principais órgãos de deposição do  $^{57}\text{Co}$ . O modelo da *ICRP (International Commission on Radiological Protection)* assume que 50% do Cobalto que atinge a circulação é rapidamente eliminado, 5% é depositado no fígado e 45% é distribuído uniformemente entre todos os outros órgãos do corpo humano. O  $^{57}\text{Co}$  é transientemente acumulado na próstata, mas concentrações caem abaixo à do corpo inteiro, após uma semana da administração e os autores sugerem que a absorção específica na próstata não deve ser considerada no modelo da *ICRP (1994b)*.

## **1.2 Produção de Radioisótopos**

Radioisótopos são produzidos artificialmente por reações nucleares que ocorrem em aceleradores e reatores nucleares. Porém, somente cíclotrons ou reatores são capazes de produzir fontes de radioatividade suficientemente altas, de interesse prático. Nestes dois métodos, em geral, não são obtidos os mesmos isótopos de um elemento. A secção de choque  $\sigma$  mede a probabilidade de ocorrer uma determinada reação nuclear e é dada em barn ou  $\text{cm}^2$  ( $1\text{b}=10^{-24}\text{cm}^2$ )<sup>(8)</sup>.

### **1.2.1 Reatores Nucleares**

Muitos cientistas realizaram pesquisas com sistemas de reações em cadeia, após a descoberta que nêutrons induziam fissão no Urânio e o número de nêutrons liberados era maior que um. O primeiro destes sistemas foi construído em *Chicago*, EUA, sob a liderança de Fermi, no início dos anos 40 e se tornou crítico em 1942, como parte do *Projeto Manhattan*, na *Segunda Guerra Mundial*.

Atualmente, há vários reatores nucleares operando e sendo experimentados em todo o mundo <sup>(8)</sup>, inclusive no Brasil, do tipo Reatores de Pesquisa (para pesquisa, treinamento, ensino e produção de radioisótopos), como o *MB-01* e o *IEA-R1m*, ambos instalados no *Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN-CNEN/SP)*, em São Paulo; o *Argonauta*, no Rio de Janeiro; e o *TRIGA MARK I*, em Belo Horizonte, MG. Há ainda os Reatores de Potência (para geração de energia elétrica) Angra I, Angra II e Angra III (este último em construção), na cidade de Angra dos Reis (RJ).

As reações nucleares que ocorrem em reatores nucleares envolvem nêutrons e são principalmente do tipo  $(n,\gamma)$  e  $(n,f)$ . No primeiro caso, a reação nuclear é chamada de captura simples e é produzida por nêutrons térmicos ( $E=0,025\text{eV}$ ). A energia de excitação do núcleo composto é removida por emissão  $\gamma$ . Como exemplos podemos citar as reações:  $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$  e  $^{113}\text{Cd}(n,\gamma)^{114}\text{Cd}$ . No segundo caso, o núcleo composto se desdobra em dois fragmentos de fissão principais e um ou mais nêutrons. A fissão ocorre com: nêutrons térmicos em  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{233}\text{U}$ ; nêutrons rápidos ( $E>0,1\text{MeV}$ ), em  $^{233}\text{Th}$  e  $^{238}\text{U}$ . Um exemplo é a reação  $^{235}\text{U}(n,f)^{140}\text{Xe} + ^{93}\text{Sr} + 3n$ . Há ainda reações do tipo  $(n,p)$ ,  $(n,\alpha)$  e reações secundárias. São exemplos:  $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ ;  $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ ; irradiando-se alvo de  $^6\text{Li}_2\text{CO}_3$  (Carbonato de Lítio) enriquecido em  $^6\text{Li}$ , ocorre a reação  $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$  seguida da  $^{16}\text{O}(^3\text{H},n)^{18}\text{F}$ : o  $^3\text{H}$  formado na primeira reação reage com o  $^{16}\text{O}$  na segunda reação, formando o  $^{18}\text{F}$ . Porém, esta produção só se justifica no caso de países que não possuem aceleradores.

Os radioisótopos produzidos em reatores nucleares possuem excesso de nêutrons, decaindo principalmente pela emissão de partículas  $\beta^-$ , não necessariamente acompanhadas por emissão  $\gamma$ . Geralmente possuem meia-vida mais longa, sendo por isso mais utilizados em Radioterapia e Braquiterapia, na Medicina Nuclear. Em geral, não são livres de carregador, e portanto, são produzidos com menor atividade específica <sup>(9)</sup>. Os principais radioisótopos produzidos em reatores são o  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{125}\text{I}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{153}\text{Sm}$ ,

$^{186}\text{Re}$  e  $^{192}\text{Ir}$ . O mais conhecido deles é o gerador  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ , sendo este último amplamente utilizado em Diagnósticos "in vivo" na Medicina Nuclear <sup>(8)</sup>.

As secções de choque de reações que ocorrem em reatores são praticamente constantes, para uma reação nuclear específica e espectro de nêutrons definido, e existem vários dados coletados em literatura.

### **1.2.2 Ciclotrons**

O Ciclotron foi concebido por Ernest O. Lawrence, em 1929, e desenvolvido com seus colegas e estudantes (sendo Livingston o principal deles), na *University of California, Berkeley*, nos anos 30. Durante o *Projeto Manhattan* dos EUA, foi usada separação eletromagnética para obter  $^{235}\text{U}$  puro. Os separadores magnéticos foram chamados *Calutrons (California University Cyclotrons)* e foram usados após a *Segunda Guerra Mundial*, no *Oak Ridge National Laboratory (ORNL)*, EUA, para produzir isótopos estáveis de muitos elementos, até uma pureza maior ou igual a 99,9%. Além disso, centenas de radioisótopos artificiais foram produzidos através do bombardeio de núcleos com partículas carregadas <sup>(8)</sup>. Hoje em dia, diversos Ciclotrons estão operacionais em todo o mundo. No Brasil, há três deles: dois instalados no *IPEN-CNEN/SP* e um, no *Instituto de Engenharia Nuclear (IEN-CNEN/RJ)*.

Os radioisótopos produzidos em aceleradores circulares são deficientes em nêutrons e decaem por c.e. ou por emissão de pósitrons ( $\beta^+$ ), podendo ser, também, emissores  $\gamma$ . Ambos possuem características ideais de decaimento para uso em Diagnóstico "in vivo". O produto é geralmente livre de carregador e altas atividades específicas podem ser obtidas <sup>(10)</sup>, após a separação química, já que ele não é diluído com o material do alvo. São exemplos o  $^{11}\text{C}$ ,  $^{13}\text{N}$ ,  $^{15}\text{O}$ ,  $^{18}\text{F}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{77}\text{Br}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{111}\text{In}$ ,  $^{117\text{m}}\text{Sn}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{201}\text{Tl}$  e outros.

Para a otimização do método de produção de um radioisótopo, é essencial o conhecimento de dados da Função de Excitação da reação, isto é, Secção de

Choque *versus* Energia da partícula incidente ( $\sigma \times E$ ). Com estes dados, pode ser determinado o intervalo de energia mais conveniente para a produção do radioisótopo, ou seja, o rendimento máximo compatível com o mínimo nível de impureza. Geralmente, informações detalhadas das funções de excitação estão disponíveis. Em casos especiais, porém, novas medidas podem ser necessárias. Estudos de dados nucleares são feitos em correntes de feixe baixas e são preparadas amostras finas, uniformes e de composições químicas bem definidas<sup>(11)</sup>.

### **1.2.2.1 Descrição Geral de um Cíclotron**

O Cíclotron é um acelerador onde partículas carregadas descrevem uma trajetória em espiral plana, contidas em uma câmara sob vácuo, com aplicação de um campo magnético perpendicular a este plano. A ação do campo nos íons em deslocamento torna sua trajetória circular, com raio maior a cada incremento de energia. Duas cavidades chamadas de "dês" (embora a semelhança com a letra maiúscula D tenha desaparecido nos modelos mais modernos) são eletrodos conectados a uma fonte de tensão alternada de frequência fixa. Um íon positivo, liberado por uma fonte colocada no centro entre os "dês", é atraído na direção do "dê" que estiver carregado negativamente, porque sofre a ação do campo elétrico entre eles. O íon possui velocidade constante na região interior do "dê", livre das forças elétricas. O campo magnético curva a trajetória em um semicírculo (não acrescentando energia à partícula, mas apenas direcionando-a para o intervalo entre os "dês", onde o suprimento de energia por ação do campo elétrico é atuante) e quando o intervalo (*gap*) entre os "dês" é novamente atingido, os potenciais são revertidos, levando a uma segunda aceleração e assim sucessivamente, descrevendo uma órbita espiralada em direção às bordas do campo magnético. A energia final resultante é a soma das contribuições individuais. Quando o íon alcança a periferia dos "dês", ele é extraído através de um canal eletrostático, que o direciona para a linha de feixe principal e a partir desta, transportada para a linha de feixe selecionada para bombardear o alvo desejado.

Em um Cíclotron, o tempo que uma partícula está livre do campo elétrico não depende do comprimento da trajetória no interior do "dê". A cada instante, a força eletromagnética ( $q.v.B$ ) fornece uma força centrípeta  $\left(\frac{m.v^2}{r}\right)$ , necessária à trajetória circular.

Sendo:

$m$  = massa do íon ou partícula

$B$  = intensidade do campo magnético

$q$  = carga do íon ou partícula

$v$  = velocidade do íon

$r$  = raio de curvatura da trajetória

Temos:

$$\frac{m.v^2}{r} = q.v.B \quad (1.1)$$

$$m.v = q.B.r \quad (1.2)$$

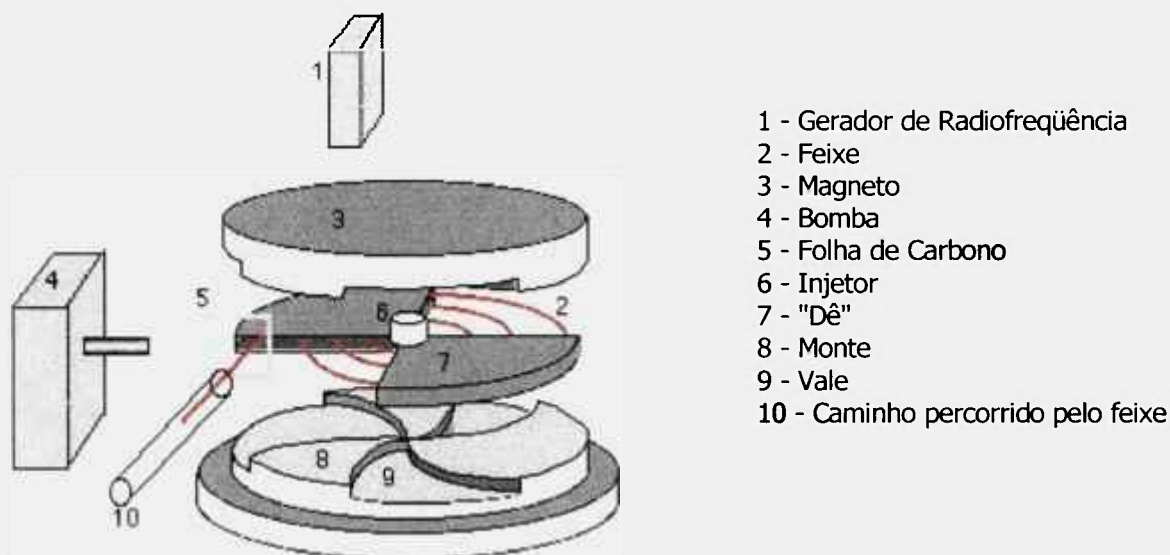
$$\omega = \frac{v}{r} = \frac{q.B}{m} \quad (1.3)$$

Onde:  $\omega$  = velocidade angular do íon

Esta equação mostra que o momento aumenta quando o raio de curvatura aumenta, se  $B$  for constante. O tempo  $T$  para completar uma órbita circular é:

$$T = \frac{2.\pi.r}{v} = \frac{2.\pi.r.m}{q.B.r} = \frac{2.\pi.m}{q.B} \quad (1.4)$$

O período de rotação não depende da velocidade do íon e nem do tamanho da órbita, porém depende da intensidade do campo e da razão massa/carga  $\left(\frac{m}{q}\right)$  da partícula. Se todos forem constantes, o período de rotação também será<sup>(12)</sup>. A figura 1.1 representa um Cíclotron e seu princípio de funcionamento<sup>(13)</sup>.



**Figura 1.1: Representação geral de um Cíclotron e seu princípio de funcionamento.**

Um sistema típico de irradiação de alvos em Cíclotron consiste de:

- (a) Uma janela (folha metálica fina), que separa o vácuo do Cíclotron do material alvo (servindo como isolamento);
- (b) O alvo (sólido, líquido/fundido ou gasoso), natural ou enriquecido em um determinado isótopo;
- (c) O porta-alvo e uma flange (geralmente de PVC ou acrílico), isolados eletricamente, para a intensidade de corrente de feixe poder ser medida;
- (d) Um sistema de refrigeração, para o alvo, a janela do alvo e periféricos<sup>(14)</sup>.

Em virtude do uso de altas correntes de feixe, o aquecimento de um alvo é intenso. Considerando partículas com 10MeV de energia e corrente de feixe máxima de  $10\mu\text{A}$ , incidindo em áreas geralmente pequenas, da ordem de  $1\text{cm}^2$ , é gerada uma densidade de potência de  $100\text{W}/\text{cm}^2$ . O sistema de refrigeração do alvo deve ser bom o suficiente para retirar esta quantidade de calor, prevenindo o superaquecimento do alvo durante o bombardeamento. É necessário, portanto, que o alvo e o porta-alvo propiciem uma transferência de calor eficiente. Materiais como Al, Ti, Ni, Cu, Pt ou Aço Inoxidável (ss) são bastante utilizados. Há outros

fatores importantes para o projeto de um porta-alvo, como: conhecimento dos princípios nucleares; capacidade do material do alvo resistir a altas correntes de feixe; facilidade de separação química dos produtos radioativos; recuperação do alvo, se necessário; e alto nível de radioatividade.

Várias reações nucleares podem ter secções de choque suficientemente altas, para o uso na produção de um radioisótopo. Na escolha de um alvo, contudo, as propriedades mecânicas e químicas da substância desempenham uma função importante, às vezes maior que aquela da secção de choque de uma reação nuclear. O alvo deve, portanto, resistir a altas correntes de feixe, não deve sofrer fortes mudanças químicas induzidas por radiação, deve produzir um radioisótopo com rendimento alto e permitir que sua separação química seja fácil. As janelas mais usadas são de Al, V, Ti, Cu, Ni e liga de Havar (material composto principalmente por Co - 42,5%, Cr - 20%, Fe - 17,46% e Ni - 13%)<sup>(15, 16)</sup>,

A reatividade química do produto é importante, no caso de marcação de moléculas com o radioisótopo (obtenção de radiofármacos). Frequentemente, o estado químico do isótopo é definido no interior do alvo, especialmente no caso de alvos gasosos.

Um produto com atividade específica alta (atividade/massa) é essencial, para uma série de aplicações em seres humanos. A recuperação do material alvo é importante, no caso de elementos enriquecidos isotopicamente. O alto nível de radioatividade envolvida exige o uso de métodos de produção controlados separadamente, ou, se possível, métodos de produção automatizados<sup>(15)</sup>.

### **1.2.2.2 Tipos de Alvos Utilizados em Cíclotrons**

#### **1.2.2.2.1 Sólidos**

Para a produção de um radioisótopo, cujo alvo está no estado sólido, é preferível que este seja metálico, elementar, liga, óxido, carbonato ou outro composto químico termicamente estável. Em alguns casos, pode-se usar o cloreto. Todas estas aplicações dependem, principalmente, do ponto de fusão e da condutividade térmica dos materiais. No caso de alvos metálicos, que são mecanicamente pressionados em contato íntimo com a placa suporte, a refrigeração com H<sub>2</sub>O ou He<sub>2</sub>, em  $2\pi$  (na parte traseira), geralmente é suficiente. No caso de óxidos e materiais com baixa condução de calor, porém, refrigeração em  $4\pi$  (na parte traseira e frontal) é necessária, freqüentemente. A placa suporte do alvo deve ser confeccionada de um material que tenha alta condutividade térmica. Placas de Cu, geralmente, são usadas para este propósito, às vezes revestidas com Ag, Pt, Au ou Ni, para torná-las inertes ao tratamento químico após a irradiação. O Al também é muito usado, porque a ativação deste material com partículas carregadas resulta em baixa atividade induzida por radioisótopos de meia-vida longa.

Estas condições podem ser satisfeitas com os métodos de preparação de alvos, como: eletrodeposição em um suporte metálico (Ni, Cu ou Pt); laminação de metais; soldagem em um suporte; fusão do material em um suporte metálico; compressão de pós para obtenção de pastilhas <sup>(15)</sup>.

Exemplos de uso de alvos sólidos são aqueles para a produção de <sup>57</sup>Co, <sup>67</sup>Ga, <sup>109</sup>Cd, <sup>111</sup>In, <sup>117m</sup>Sn, <sup>123</sup>I, <sup>201</sup>Tl, entre outros.

### **1.2.2.2 Líquidos e Fundidos**

Um composto líquido deve possuir as seguintes características, para ser usado como alvo:

- (a) Um ponto de ebulição alto, para suportar o calor gerado durante a irradiação;
- (b) Uma percentagem de átomos alvo alta, para aumentar o rendimento de produção;
- (c) Ser líquido e estável em temperaturas obtidas antes e durante a irradiação;
- (d) Ser insensível à radiação, quimicamente e fisicamente;
- (e) Ser compatível com os materiais usados no aparato de produção;
- (f) Ser comercialmente disponível e econômico.

O alvo fundido geralmente é um sal e deve ter as mesmas características citadas para o alvo líquido, além de ter um ponto de fusão alto, para permitir o uso de altas correntes de feixe sem ser evaporado (no caso em que o alvo não é fundido antes da irradiação, mas durante a mesma, com o calor gerado pelo feixe).

O  $^{18}\text{F}$ ,  $^{77}\text{Br}$  e o  $^{123}\text{I}$  são exemplos de radioisótopos que podem ser produzidos utilizando-se alvos líquidos ou fundidos. Estes dois últimos radioisótopos ou seus precursores gasosos ( $\text{Xe}_2$  e  $\text{Kr}_2$ ) são removidos "on line" por fluxos de gases ( $\text{He}_2$  ou  $\text{Xe}_2$ ) e capturados em armadilhas à baixa temperatura <sup>(10, 11)</sup>.

### **1.2.2.3 Gasosos**

Os alvos gasosos devem possuir as seguintes propriedades:

- a) Ter, de preferência, abundância isotópica alta no elemento alvo, pois o gás enriquecido tem um custo alto e exige uma tecnologia de alvo muito sofisticada;
- b) Não ser de natureza explosiva;

c) Ser ultra-puros, sempre que alta atividade específica for necessária.

As dimensões do alvo e a pressão do gás são escolhidos de tal modo que a parte mais favorável da função de excitação seja utilizada. Vários radionuclídeos podem ser produzidos usando alvos gasosos:  $^{11}\text{C}$ ,  $^{13}\text{N}$ ,  $^{15}\text{O}$ ,  $^{18}\text{F}$  e  $^{123}\text{I}$  (11).

### **1.2.2.3 Sistemas de Alvos Utilizados em Cíclotrons**

A tecnologia de alvos, para a produção de radioisótopos, é bastante avançada. Basicamente, dois sistemas de alvos podem ser usados, quanto ao seu posicionamento em relação à câmara de aceleração (ou câmara de vácuo) dos íons ou partículas, como descrito a seguir.

#### **1.2.2.3.1 Alvos para Irradiações com Feixes Internos**

Os alvos são irradiados dentro da câmara de vácuo do cíclotron, sendo utilizado, portanto, o feixe interno, que incide tangencialmente no alvo. Somente os alvos sólidos (naturais ou enriquecidos) que possuem boa condutividade térmica podem ser usados, isto é, aqueles na forma metálica, eletrodepositados ou em ligas. Geralmente, emprega-se um termopar, para medir diferenças de temperatura no alvo. Os alvos líquidos e gasosos não podem ser utilizados, justamente pela dificuldade de instalação de aparatos experimentais mais complexos dentro da câmara de vácuo do cíclotron. Alguns exemplos são a produção de  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{75}\text{Br}$  e  $^{77}\text{Br}$  (11). O sistema de alvo interno, do Cíclotron CV-28 do IPEN-CNEN/SP, foi otimizado e verificado para a produção de  $^{67}\text{Ga}$ , utilizando-se alvo de Zn eletrodepositado (14).

### **1.2.2.3.2 Alvos para Irradiações com Feixes Externos**

Os alvos são bombardeados fora da câmara de vácuo do Cíclotron, ou seja, no final das chamadas linhas de feixe externo e são cobertos, geralmente, com uma folha fina de isolamento, isto é, a janela.

Normalmente, a produção de radioisótopos em Cíclotrons é feita usando feixes externos, que podem incidir tangencialmente ou perpendicularmente no alvo. A forma do feixe externo é mais versátil que a do feixe interno. Com desfocalização e oscilação controladas, é possível diminuir a densidade de potência ( $W/cm^2$ ) no alvo. Contudo, em virtude das altas correntes usadas, há uma grande tensão na janela, que separa o alvo do vácuo do cíclotron. Os alvos nos três estados físicos (sólido, líquido/fundido e gasoso) podem ser empregados neste sistema <sup>(11)</sup>.

### **1.3 Produção de $^{109}Cd$**

O Cádmiio possui número atômico 48 e foi descoberto por F. Stromeyer, em 1817, como uma impureza de  $ZnCO_3$  (Carbonato de Zinco). Ele percebeu que estas amostras, em particular, mudavam de cor quando aquecidas, o que não acontece com o  $ZnCO_3$  puro. Assim, conseguiu isolar algum Cd metálico. Este elemento constitui 0,2ppm da crosta terrestre e 0,00005ppm da água do mar <sup>(17)</sup>. Sua composição natural é:  $^{106}Cd$  – 1,25%;  $^{108}Cd$  – 0,89%;  $^{110}Cd$  – 12,51%;  $^{111}Cd$  – 12,81%;  $^{112}Cd$  – 24,13%;  $^{113}Cd$  – 12,22%;  $^{114}Cd$  – 28,72%;  $^{116}Cd$  – 7,47%. A Tabela 1.1 mostra todos os isótopos de Cádmiio radioativos, sendo o  $^{109}Cd$  o segundo de maior meia-vida <sup>(1, 18)</sup>.

Tabela 1.1: Isótopos radioativos de Cádmio.

Isótopo	Meia-vida	Modo de Decaimento
<sup>97</sup> Cd	3s	$\beta^+$
<sup>98</sup> Cd	8s	$\beta^+$
<sup>99</sup> Cd	16s	$\beta^+$
<sup>100</sup> Cd	1,1min	$\gamma$ 343; 672; 1583keV $\beta^+$
<sup>101</sup> Cd	1,2min	$\gamma$ 124; 935keV $\beta^+$
<sup>102</sup> Cd	5,5min	$\gamma$ 98,1; 925; 1723; 1259keV c.e.; $\beta^+$
<sup>103</sup> Cd	7,7min	$\gamma$ 415; 505; 481; 1037keV c.e.; $\beta^+$
<sup>104</sup> Cd	57,7min	$\gamma$ 387; 1080; 1462; 1449keV c.e.; $\beta^+$
<sup>105</sup> Cd	55,5min	$\gamma$ 83,6; 709keV c.e.; $\beta^+$
<sup>107</sup> Cd	6,5h	$\gamma$ 347; 607; 962; 1302; 1693keV c.e.; $\beta^+$
<sup>109</sup> Cd	462,9d	$\gamma$ 93; 829keV c.e.
<sup>111m</sup> Cd	48,6min	$\gamma$ 88,03keV I.T.
<sup>113</sup> Cd	9,3x10 <sup>15</sup> a 13,7a	$\gamma$ 151; 245keV $\beta^-$ $\beta^-$ ; I.T.
<sup>115</sup> Cd	44,8d	$\gamma$ 263,71keV $\beta^-$
	53,38h	$\gamma$ 484; 934; 1291keV $\beta^-$
<sup>117</sup> Cd	2,42h	$\gamma$ 492; 528keV $\beta^-$
	3,31h	$\gamma$ 273; 344; 1303keV $\beta^-$
<sup>118</sup> Cd	50,3min	$\gamma$ 564; 1066; 1997keV $\beta^-$
<sup>119</sup> Cd	2,69min	$\beta^-$
	2,20min	$\gamma$ 292,80; 343keV $\beta^-$
<sup>120</sup> Cd	50,80s	$\gamma$ 1025; 2021keV $\beta^-$ ; $\gamma$
<sup>121</sup> Cd	13,5s	$\beta^-$
	4,8s	$\gamma$ 324; 349; 1041keV $\beta^-$
<sup>122</sup> Cd	5,78s	$\gamma$ 988; 1021; 2060keV $\beta^-$
<sup>124</sup> Cd	0,9s	$\beta^-$
<sup>126</sup> Cd	0,51s	$\gamma$ 63; 143; 180keV $\beta^-$
		$\gamma$ 260; 428keV

I.T. = transição isomérica

c.e. = captura eletrônica

### 1.3.1 Produção de $^{109}\text{Cd}$ em Reatores Nucleares

Krasnov e Sevastjanov <sup>(19)</sup>, em 1979, pesquisaram a produção de  $^{109}\text{Cd}$ , irradiando-se Ag enriquecida em  $^{107}\text{Ag}$ , no Reator Nuclear *SM-2* do *Research Institute of Atomic Reactors*, em *Obninsk*, Rússia (na época, URSS). A seguinte cadeia de reações foi realizada:  $^{107}\text{Ag}(n,\gamma)^{108}\text{Ag} \rightarrow ^{108}\text{Cd}(n,\gamma)^{109}\text{Cd}$ . Com fluxo de nêutrons de  $6 \times 10^{14} \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , amostras metálicas de Ag foram irradiadas em ampolas seladas de quartzo ( $\varnothing_1=3\text{mm}$ ;  $h=10\text{mm}$ ), contendo Ag enriquecida em  $^{107}\text{Ag}$  a 98,8%. As amostras possuíam massa entre 30 e 100mg. Foram realizadas várias irradiações e o maior rendimento de produção de  $^{109}\text{Cd}$  foi 26,27MBq/mg (0,71mCi/mg) de  $^{107}\text{Ag}$ , atividade específica de 130,98MBq/mg (3,54mCi/mg) de  $^{109}\text{Cd}$ , rendimento de  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  de 42,92MBq/mg (1,16mCi/mg), em tempo de irradiação de 112,7dias. Esta atividade específica foi suficiente para a produção de fontes de radiação com área ativa maior ou igual a  $1\text{cm}^2$ , para suprir a demanda por  $^{109}\text{Cd}$ .

Beda et al <sup>(20)</sup>, em 1979, também descreveram a produção de  $^{109}\text{Cd}$ , no Reator Nuclear *SM-2*, irradiando-se Ag enriquecida em  $^{107}\text{Ag}$ . Foram utilizadas as mesmas reações nucleares que no trabalho descrito anteriormente. Uma amostra metálica de 26,4mg, contendo  $^{107}\text{Ag}$  (99,46%) e  $^{109}\text{Ag}$  (0,54%), foi irradiada com fluxo de nêutrons de  $2 \times 10^{15} \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  em um tempo efetivo de 25,7dias. Após 6meses da última irradiação, o Cd formado foi separado radioquimicamente, sendo as atividades de  $^{109}\text{Cd}$  medidas após a separação química da amostra irradiada e a de  $^{110}\text{Ag}$ , na amostra (os números entre colchetes referem-se ao fim da irradiação):  
 $A(^{109}\text{Cd})=244,2 \pm 22,2 \text{MBq}$  (6,6 $\pm$ 0,6mCi) [8,6mCi=318,2MBq];  
 $A(^{110}\text{Ag})=240,5 \pm 22,2 \text{MBq}$  (6,5 $\pm$ 0,6mCi) [10,6mCi=392,2MBq];  
 $AE(^{109}\text{Cd})=111 \pm 22,2 \text{GBq/g}$  (3,0 $\pm$ 0,6Ci/g) [3,9Ci/g=144,3GBq/g]. O único isótopo radioativo de Cd produzido na amostra de Ag irradiada foi o  $^{109}\text{Cd}$ . O Cd foi separado da Ag e a atividade de  $^{110}\text{Ag}$  presente não excedeu  $10^{-6}$  da atividade de  $^{109}\text{Cd}$ . A pureza radionuclídica de fontes de  $^{109}\text{Cd}$  produzidas em Reatores Nucleares é tão boa quanto àquela obtida em Ciclotrons, mas a atividade específica (AE) é inferior. Fontes

de Cíclotron podem atingir mais de 3,7TBq/g (100Ci/g), o que permite a fabricação de uma fonte de 1mm de diâmetro com uma atividade de 370MBq (10mCi).

Existe um método de produção de  $^{109}\text{Cd}$ , através da ativação de Cd em reatores nucleares, utilizando-se a reação  $^{108}\text{Cd}(n,\gamma)$ , mas a atividade específica é baixa e o nível de contaminantes ( $^{107}\text{Cd}$ ,  $^{113}\text{Cd}$ ,  $^{115}\text{Cd}$  e  $^{117}\text{Cd}$ ) é alto <sup>(21)</sup>.

### **1.3.2 Produção de $^{109}\text{Cd}$ em Cíclotrons**

Strelow <sup>(22)</sup>, em 1978, descreveu somente a separação química de  $^{109}\text{Cd}$  de alvos de Ag irradiados no Cíclotron do *National Chemical Research Laboratory*, Pretoria, África do Sul. A produção de  $^{109}\text{Cd}$  foi realizada utilizando-se feixe de dêuterons, através da reação  $^{109}\text{Ag}(d,2n)^{109}\text{Cd}$ . Após a dissolução do alvo em  $\text{HNO}_3$  (Ácido Nítrico) e remoção de Ag pela precipitação com cobre metálico, em pH=5, o Cd foi separado do Zn, Cu e outros elementos por Cromatografia de Troca Iônica. A concentração da solução foi ajustada para  $\text{HNO}_3$  0,5M em meio de HBr (Ácido Bromídrico) 0,1M e percolada através da coluna contendo 4mL de resina de troca aniônica AG1X8 (100-200mesh), equilibrada com a mesma mistura ácida. Zinco, Cobre (II) e outros elementos foram eluídos com 50mL da mistura. O Cd que ficou retido foi finalmente eluído com 50mL de  $\text{HNO}_3$  3M.

Goetz et al <sup>(2)</sup>, em 1980, descreveram a produção de  $^{107}\text{Cd}$  ( $t_{1/2}= 6,5\text{h}$ ) e  $^{109}\text{Cd}$  ( $t_{1/2}=462,9\text{d}$ ), através da irradiação de prótons em  $^{\text{nat}}\text{Ag}$  no *Cyclotron Milan AVF*, Itália, que acelera prótons até 45MeV. As funções de excitação foram medidas, usando folhas finas para ativação, com feixe externo de prótons entre 4 e 43MeV e correntes de feixe de aproximadamente 200nA. A espessura dos alvos de 25mg/cm<sup>2</sup> correspondeu a uma perda média de energia de 0,3MeV. Abaixo de 18MeV, as energias do feixe foram degradadas por folhas de Al. O  $^{107}\text{Cd}$  é formado através de duas reações nucleares,  $^{107}\text{Ag}(p,n)$  e  $^{109}\text{Ag}(p,3n)$ , com rendimentos máximos em 10 e

35MeV, respectivamente. Para a produção de  $^{109}\text{Cd}$ , pela reação  $^{109}\text{Ag}(p,n)$ , é conveniente o intervalo de 5 a 15MeV, pois somente  $^{107}\text{Cd}$  é produzido como contaminante, o qual é facilmente removido com tempo de espera de decaimento de aproximadamente 7dias. O rendimento de produção de  $^{109}\text{Cd}$  é baixo, comparado com outros radioisótopos produzidos, em virtude da sua meia-vida mais longa. Não é possível obter  $^{107}\text{Cd}$  livre de  $^{109}\text{Cd}$ . Menos de 0,01% de  $^{109}\text{Cd}$ , em aproximadamente 30MeV, é obtido na produção de  $^{107}\text{Cd}$ , que deve ser usado imediatamente. Com objetivo de produção, correntes de feixe interno de até  $5\mu\text{A}$  por 5h, em 15MeV, foram usados para a liberação de aproximadamente 925MBq (25mCi) de  $^{107}\text{Cd}$ . Nestas condições, produziram-se aproximadamente 0,74MBq (20 $\mu\text{Ci}$ ) de  $^{109}\text{Cd}$  (menos que  $1\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ). O  $^{107}\text{Cd}$  e  $^{109}\text{Cd}$  foram separados do alvo de Ag de 300-400mg, pelo método de Extração por Solvente, dissolvendo-se o mesmo em  $\text{HNO}_3$  (Ácido Nítrico) 14M. A solução foi evaporada à secura, com um banho de vapor, e o resíduo dissolvido em 25mL de  $\text{H}_2\text{O}$ . Os íons  $\text{Ag}^+$  foram convertidos para o complexo de Tiocianato, com  $\text{NH}_4\text{CNS}$  (Tiocianato de Amônio) e o pH da solução foi ajustado para 5, adicionando-se  $\text{CH}_3\text{COONa}$  (Acetato de Sódio). Uma solução de  $\text{C}_5\text{H}_5\text{N}$  (piridina) em  $\text{CHCl}_3$  (clorofórmio) a 5% extraiu o Cd, porém traços de Ag ainda estavam presentes. A fase com clorofórmio foi evaporada à secura e retomada com  $\text{HCl}$  (Ácido Clorídrico) 1M. A solução foi percolada na resina de troca aniônica DOWEX 1X8. O Cd foi retido na coluna e a Ag passou ao efluente. O Cd foi eluído da coluna com  $\text{HNO}_3$  1M e a solução foi evaporada à secura, sendo o resíduo dissolvido em  $\text{HCl}$   $10^{-4}\text{M}$ . O Cd radioativo, sob a forma química de  $\text{CdCl}_2$  (Cloreto de Cádmio), foi obtido com concentrações radioativas de 74MBq/mL (2mCi/mL), para o  $^{107}\text{Cd}$  e 3,7MBq/mL (0,1mCi/mL) para o  $^{109}\text{Cd}$ . A pureza radionuclídica foi maior que 99% e as atividades específicas finais da ordem de 740MBq/ $\mu\text{g}$  (20mCi/ $\mu\text{g}$ ) e 37MBq/ $\mu\text{g}$  (1mCi/ $\mu\text{g}$ ), para  $^{107}\text{Cd}$  e  $^{109}\text{Cd}$ , respectivamente, foram suficientes para marcar níveis ambientais de Cd presentes, em experimentos bioquímicos de curta e longa duração. A radioatividade do  $^{109}\text{Cd}$  e do  $^{107}\text{Cd}$  foram medidas por Espectrometria Gama, usando-se um detector de  $\text{NaI}(\text{Tl})$  de 2"x1", *Packard AS 320 Autogamma*.

Terry <sup>(23)</sup>, em 1981, citou somente a produção de radioisótopos no Cíclotron de 86 polegadas do *Oak Ridge National Laboratory (ORNL)*, capaz de acelerar prótons de energia máxima de 22MeV, em alvos internos com correntes de feixe de até 3mA. Esta máquina opera com uma frequência fixa de 13,3MHz, tensão entre os "dês" de 450 a 500kV e um campo magnético de 699kA/m. O feixe utilizado nas irradiações se espalhou sobre uma área de 19 a 26mm<sup>2</sup>, em uma placa refrigerada à água. As taxas de produção típicas obtidas foram: 925MBq/h (25mCi/h) e 1480MBq/h (40mCi/h) de <sup>57</sup>Co, respectivamente, para os alvos de <sup>nat</sup>Ni (metálico) e <sup>58</sup>Ni (eletrodepositado); 333MBq/h (9mCi/h) de <sup>109</sup>Cd, para o alvo de <sup>nat</sup>Ag metálica.

Smith-Jones et al <sup>(24)</sup>, em 1988, apresentaram um método para a produção e separação química de <sup>109</sup>Cd, <sup>57</sup>Co e <sup>54</sup>Mn, de um alvo composto de Ag e Fe enriquecidos em <sup>109</sup>Ag e <sup>56</sup>Fe, respectivamente. Estes radioisótopos foram produzidos no *Pretoria Cyclotron*, África do Sul, que é capaz de acelerar feixes de dêuterons de até 16MeV, utilizando-se as reações <sup>109</sup>Ag(d,2n)<sup>109</sup>Cd, com dêuterons de 16MeV e <sup>56</sup>Fe(d,n)<sup>57</sup>Co, com dêuterons de 7MeV. O alvo de Ag ficava na frente do alvo de Fe, já que a pureza radionuclídica é maior para o <sup>109</sup>Cd de 16 a 7MeV (a secção de choque máxima ocorre em 13,3MeV) e abaixo de 7MeV, para o <sup>56</sup>Fe, que é a faixa de energia na qual a pureza radioisotópica é maior, já que a secção de choque para a produção de <sup>57</sup>Co pela reação <sup>56</sup>Fe(d,n)<sup>57</sup>Co é maior que a de <sup>56</sup>Co (contaminante) pela reação <sup>56</sup>Fe(d,2n)<sup>56</sup>Co. O alvo de <sup>56</sup>Fe foi depositado de um banho de sulfato (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>), sobre uma placa suporte de Cu, refrigerada na parte traseira com água, até uma espessura de 9,6µm. Duas camadas adicionais, Cu/Ag (0,10µm) e Ag (0,08µm), foram depositadas de banhos de Cianeto (CN<sup>-</sup>). A camada final de <sup>109</sup>Ag foi depositada de um banho de Cianeto até 26µm. O ângulo do feixe incidente de dêuterons era de 6° e a corrente de feixe de até 500µA. A separação química de <sup>57</sup>Co, de um alvo de Fe, é mais complicada, em virtude da presença de <sup>54</sup>Mn, produzido simultaneamente pela reação <sup>56</sup>Fe(d,α)<sup>54</sup>Mn. O alvo irradiado foi guardado por um período de 2meses para decaimento e separado quimicamente em colunas de troca catiônica e aniônica. Foram usados um Espectrofotômetro de Absorção Atômica,

*Varian, modelo AA775 series*, para a análise de elementos estáveis, e um detector de Ge(Li), *Canberra, modelo 80 series*, para identificar os radionuclídeos presentes. A análise após a separação química mostrou a presença de  $^{54}\text{Mn}$  ( $3,63\text{MBq}=98,1\mu\text{Ci}$ ),  $^{57}\text{Co}$  ( $26,7\text{MBq}=721,6\mu\text{Ci}$ ) e  $^{109}\text{Cd}$  ( $217\text{MBq}=5,86\text{mCi}$ ).

Nortier et al <sup>(25)</sup>, em 1991, mediram funções de excitação para a produção de  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{109}\text{In}$  e  $^{109}\text{Sn}$ , no bombardeamento de  $^{\text{nat}}\text{In}$  com prótons até 200MeV. Foram irradiadas cinco pilhas de folhas deste alvo, no Cíclotron do *National Accelerator Centre*, com energias incidentes de  $200\pm 0,5$ ;  $120\pm 0,4$ ;  $98,7\pm 0,3$ ;  $66,0\pm 0,3$  e  $40,0\pm 0,2\text{MeV}$ . Os valores de secção de choque para o  $^{109}\text{Sn}$  são somente de sua produção direta, mas para o  $^{109}\text{In}$  e  $^{109}\text{Cd}$ , foram medidos após seus respectivos precursores terem decaído completamente e são, portanto, cumulativos. Os cálculos teóricos, com o código computacional *ALICE/85/300*, foram realizados dentro da estrutura do modelo híbrido, dependente da geometria da emissão de pré-equilíbrio da partícula, em combinação com o modelo estatístico de decaimento no equilíbrio, usando a mesma seleção de parâmetros de entrada empregados anteriormente por eles em várias pesquisas. As secções de choque calculadas foram obtidas de acordo com as abundâncias naturais do  $^{113}\text{In}$  (4,3%) e  $^{115}\text{In}$  (95,7%). As taxas de produção de alvo grosso (quando a energia incidente do feixe é totalmente degradada no alvo) para o  $^{109}\text{Cd}$  foram calculadas, provenientes das funções de excitação experimentais e teóricas, para a reação  $^{113}\text{In}+p$ . Um alvo metálico de  $^{\text{nat}}\text{In}$  de 20mm de diâmetro, encapsulado em alumínio (em virtude do baixo ponto de fusão do In,  $\sim 156^\circ\text{C}$ , contra  $\sim 660^\circ\text{C}$  do Al), à vácuo, refrigerado à água na parte frontal e traseira, foi preparado e irradiado com feixe de prótons de  $10\mu\text{A}$  e  $96,7\text{MeV}$ . Após a irradiação, o  $^{109}\text{Cd}$  foi separado do alvo de In por Cromatografia de Troca Iônica, sendo obtido um rendimento de  $1679,8\text{kBq}/\mu\text{A.h}$  ( $45,4\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ), o qual está em boa concordância com o derivado experimentalmente da taxa de produção de alvo grosso,  $1805,6\text{kBq}/\mu\text{A.h}$  ( $48,8\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ). O  $^{107}\text{Cd}$  foi o principal contaminante radioativo obtido, mas não constituiu um problema sério, pois sua meia-vida (6,5h) é muito pequena comparada com a do  $^{109}\text{Cd}$  (462,9d).

Mengatti et al <sup>(26)</sup> em 1992, descreveram a produção de <sup>109</sup>Cd, através da irradiação de <sup>nat</sup>Ag no Cíclotron *CV-28* do *IPEN-CNEN/SP*, com feixe de prótons de 24MeV. Diversas folhas com espessuras entre 40 e 75 $\mu$ m foram utilizadas como alvos, para análise do rendimento da reação <sup>109</sup>Ag(p,n)<sup>109</sup>Cd. A corrente de feixe foi de 1 $\mu$ A e o tempo de irradiação de 15min. Esperou-se um tempo de decaimento de 10dias, para que todo o <sup>107</sup>Cd ( $t_{1/2}$ =6,5h), também produzido na irradiação, decaísse totalmente. A análise das folhas foi realizada por Espectroscopia Gama, com um detector de Ge(Li). Folhas de <sup>nat</sup>Ag de 600 $\mu$ m e 1,1g foram irradiadas com feixe de prótons de 17MeV (a energia foi degradada de 24 a 17MeV por uma janela de Al de 800 $\mu$ m e uma lâmina de água de 500 $\mu$ m, servindo esta última também como refrigeração do alvo), corrente de feixe e tempo de irradiação de 10 $\mu$ A e 1h. O rendimento de produção de <sup>109</sup>Cd foi de 81,4kBq/ $\mu$ A.h (2,2 $\mu$ Ci/ $\mu$ A.h). Após a irradiação, foi feito um estudo da separação química do Cd da Ag, no qual o alvo foi dissolvido em HNO<sub>3</sub> concentrado (10mL), evaporado à secura e retomado em água (20mL). Ajustou-se o pH da solução entre 2 e 7. Precipitou-se a Ag com a adição de 3g de Cu eletrolítico e a solução foi agitada por 15min. Posteriormente, esta foi filtrada e levada à secura. O resíduo foi retomado em 20mL de solução de HNO<sub>3</sub> 0,5M contendo HBr (Ácido Bromídrico) 0,1M. Em resina aniônica AG1X8 (100-200mesh), anteriormente tratada com solução de HNO<sub>3</sub> 0,5M/HBr 0,1M (100mL), com 9,5mm de diâmetro e 60mm de altura, o Cu foi eluído primeiro com 200mL da solução citada acima. Em seguida, o <sup>109</sup>Cd foi eluído com HNO<sub>3</sub> 0,3M (35mL) e evaporado à secura, com eficiência maior que 90%.

#### **1.4 Produção de <sup>57</sup>Co**

O Cobalto é o elemento químico de número atômico 27 e foi descoberto por Brandt, em 1735, aproximadamente. Constitui 0,001% da crosta terrestre e é usado em eletrodeposição por sua aparência, dureza e resistência à oxidação. Se um íon de Cobalto for ingerido, ele é parcialmente absorvido no intestino. A porção absorvida é

rapidamente eliminada, 90% pelos rins e 10% pela via biliar <sup>(6)</sup>. O único isótopo estável de Cobalto é o <sup>59</sup>Co (100%). Os demais isótopos, que são radioativos, são mostrados na Tabela 1.2, com suas respectivas meias-vidas e modos de decaimento. O <sup>60</sup>Co é o de maior meia-vida, sendo o <sup>57</sup>Co o segundo <sup>(1, 18)</sup>.

**Tabela 1.2: Isótopos radioativos de Cobalto.**

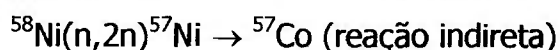
Isótopo	Meia-vida	Modo de Decaimento
<sup>53</sup> Co	247ms	β <sup>+</sup>
	262ms	β <sup>+</sup>
<sup>54</sup> Co	193,23ms	β <sup>+</sup>
	1,46min	β <sup>+</sup>
		γ 411; 1130; 1407keV
<sup>55</sup> Co	17,54h	β <sup>+</sup>
		γ 477; 931; 1409keV
<sup>56</sup> Co	78,76d	c.e.; β <sup>+</sup>
		γ 847; 1038; 1238; 1771; 2599keV
<sup>57</sup> Co	271,3d	c.e.
		γ 14; 122; 136keV
<sup>58</sup> Co	70,78d	c.e.; β <sup>+</sup>
		γ 811keV
<sup>58m</sup> Co	9,15h	I.T.
<sup>60</sup> Co	5,27 <sup>a</sup>	β <sup>-</sup>
		γ 1173,23; 1332,50keV
<sup>60m</sup> Co	10,47min	I.T.; β <sup>-</sup>
		γ 1332keV
<sup>61</sup> Co	1,65h	β <sup>-</sup>
		γ 67; 909keV
<sup>62</sup> Co	13,91min	β <sup>-</sup>
		γ 1173; 1163; 2003keV
	1,5min	β <sup>-</sup>
		γ 1173; 1129; 2302keV
<sup>63</sup> Co	27,4s	β <sup>-</sup>
		γ 87; 982keV
<sup>64</sup> Co	0,3s	β <sup>-</sup>
		γ 931; 1346keV

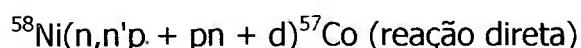
I.T. = transição isomérica

c.e. = captura eletrônica

#### 1.4.1 Produção de <sup>57</sup>Co em Reatores Nucleares

O primeiro trabalho que descreveu a produção do <sup>57</sup>Co, em reatores nucleares, foi publicado por Zaidi et al <sup>(27)</sup>, em 1993. Os alvos utilizados foram o <sup>nat</sup>Ni metálico e o Ni em pó, enriquecido em <sup>58</sup>Ni (99,66%). As reações da produção foram:





Assumindo-se 1g de massa para cada alvo, um fluxo de nêutrons de  $1,46 \times 10^{13} \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  e tempo de irradiação de 120 horas, os resultados experimentais obtidos foram os seguintes, para a produção de  $^{57}\text{Co}$ , utilizando alvos de  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  e  $^{58}\text{Ni}$ , respectivamente: (a) via indireta – 2,52kBq (0,068 $\mu\text{Ci}$ ) e 3,59kBq (0,097 $\mu\text{Ci}$ ). Nos dois casos, os valores experimentais atingiram 97% dos valores teóricos.; (b) via direta – 321,9kBq (8,7 $\mu\text{Ci}$ ) e 481kBq (13 $\mu\text{Ci}$ ). Foram, ainda, produzidos os contaminantes  $^{58}\text{Co}$  e  $^{60}\text{Co}$ , com os respectivos valores de atividade: 555MBq (15mCi) e 177,6kBq (4,8 $\mu\text{Ci}$ ); 814MBq (22mCi) e 1,48kBq (0,04 $\mu\text{Ci}$ ).

O  $^{57}\text{Co}$  de alta pureza não pode ser obtido facilmente, em virtude da reação de competição  $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$  no mesmo núcleo alvo. Contudo, uma separação radioquímica do produto da reação  $^{58}\text{Ni}(n,2n)$ , o  $^{57}\text{Ni}$ , seguida da remoção de seu produto de decaimento, pode levar ao  $^{57}\text{Co}$  de alta pureza. Em um reator de fluxo médio, até aproximadamente 50kBq (1,35 $\mu\text{Ci}$ ) podem ser obtidos, com uma irradiação de 120h e fluxo de nêutrons de  $2 \times 10^{14} \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . Este rendimento de produção é muito baixo, só permitindo preparar fontes de  $^{57}\text{Co}$  para calibração de detectores de raios-X e  $\gamma$ .

## **1.4.2 Produção de $^{57}\text{Co}$ em Cíclotrons**

### **1.4.2.1 Cu + p**

O  $^{57}\text{Co}$  pode ser produzido por reações de espalhamento induzidas por prótons de alta energia em alvos de Cu. As secções de choque para essas reações foram medidas por Williams et al <sup>(28)</sup>, em 1967, com prótons de energia até 60MeV; por Grütter et al <sup>(29)</sup>, em 1982, numa faixa de energia de 16-70MeV e por Mills et al <sup>(30)</sup>, em 1992, com prótons de até 200MeV. O pico da secção de choque ocorreu em

55MeV, de acordo com este último trabalho. Nenhum trabalho propõe este método de produção de  $^{57}\text{Co}$  e suas desvantagens são a necessidade da utilização de aceleradores de alta energia e os vários subprodutos obtidos.

#### **1.4.2.2 Mn + $^3\text{He}^{++}$**

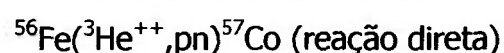
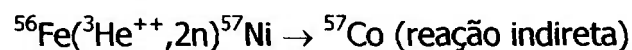
Watanabe et al <sup>(31)</sup>, em 1979, descreveram um método de produção de  $^{55}\text{Co}$  pela irradiação de Mn com feixe de  $^3\text{He}^{++}$ . Um dos contaminantes era o  $^{57}\text{Co}$ , produzido pela reação  $^{55}\text{Mn}(^3\text{He}^{++},n)^{57}\text{Co}$  e com rendimento de produção de 7,4kBq/ $\mu\text{A.h}$  (0,2 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ), para irradiação com 40MeV de energia. Uma alta contaminação de  $^{55}\text{Co}$  e  $^{56}\text{Co}$  estava presente, quando se pretendeu produzir  $^{57}\text{Co}$  por este método.

#### **1.4.2.3 Mn + $\alpha$**

Das et al <sup>(32)</sup>, em 1987, descreveram a produção de  $^{57}\text{Co}$  pela reação  $^{55}\text{Mn}(\alpha,2n)^{57}\text{Co}$ . Para irradiação na faixa entre 28 e 18MeV, o rendimento de produção foi de 143,19kBq/ $\mu\text{A.h}$  (3,87 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ), com a presença de impurezas,  $^{58}\text{Co}$  e  $^{56}\text{Co}$ , em níveis muito altos, 79% e 3%, respectivamente. Isto porque a abundância do alvo de  $^{55}\text{Mn}$  é de 100% e ocorrem muitas reações de competição. O pico da secção de choque foi em torno de 20MeV, com aproximadamente 631mb, para a produção de  $^{57}\text{Co}$ .

#### **1.4.2.4 Fe + $^3\text{He}^{++}$**

Hazan et al <sup>(33)</sup>, em 1965, mediram as funções de excitação para a produção de  $^{57}\text{Co}$  pelas reações:



A faixa de energia de  ${}^3\text{He}^{++}$  estudada foi entre 6 e 29MeV, e o detector utilizado foi o de NaI. Foram irradiados alvos de Fe, enriquecidos em  ${}^{56}\text{Fe}$  (99,7%), eletrodepositados em folhas de Au de 0,2mm. Os picos das seções de choque ocorrem entre 17 e 18MeV, e 20,6MeV, com 680mb e 50mb, respectivamente, para a produção de  ${}^{57}\text{Co}$  e  ${}^{57}\text{Ni}$ . Não foram citados valores de rendimentos de produção, mas valores relativos, experimentais e teóricos, entre  ${}^{57}\text{Co}/{}^{57}\text{Ni}$  e  ${}^{56}\text{Co}/{}^{56}\text{Ni}$ . Para a 1ª relação, 14,5 e 2,1, respectivamente, e para a 2ª relação, 125 e 15. Tais dados foram obtidos em funções de excitação máximas e pode-se perceber que os erros nas medidas foram muito grandes.

#### **1.4.2.5 Fe + d**

O  ${}^{57}\text{Co}$  pode ser produzido pela reação  ${}^{56}\text{Fe}(d,n){}^{57}\text{Co}$ . Krasnov et al <sup>(34)</sup>, em 1970, descreveram o uso do  ${}^{57}\text{Co}$  em estudos biológicos e citam que este radioisótopo foi produzido pela irradiação do Fe com dêuterons. Para essa reação, foi afirmado que se deve usar feixe de dêuterons com energia menor que 7,5MeV, para evitar a formação do contaminante  ${}^{56}\text{Co}$ .

Sharma et al <sup>(35)</sup>, em 1986, estudaram a produção e separação química do  ${}^{55}\text{Co}$ , através da reação do Fe com dêuterons. Neste estudo, também foi medido o rendimento de produção do  ${}^{57}\text{Co}$  (obtido como contaminante, com 0,016% no *EOB* (*End Of Bombardment - fim do bombardeamento*), que foi de 7,03kBq/ $\mu\text{A.h}$  (0,19 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ), para irradiação de ferro enriquecido em  ${}^{54}\text{Fe}$  (87,9%), com feixe de dêuterons de 12MeV. O rendimento do  ${}^{55}\text{Co}$  obtido foi 62,9MBq/ $\mu\text{A.h}$  (1,7mCi/ $\mu\text{A.h}$ ) no *EOB*.

Smith-Jones et al <sup>(24)</sup>, em 1988, utilizaram um alvo composto de prata e ferro irradiado com feixe de dêuterons de 16MeV, para a produção simultânea de  ${}^{109}\text{Cd}$ ,  ${}^{57}\text{Co}$  e  ${}^{54}\text{Mn}$ . Neste trabalho, a preocupação foi com a separação química dos traçadores e só foi informada a atividade produzida, 25,9MBq (0,7mCi) de  ${}^{57}\text{Co}$ .

Yang et al <sup>(36)</sup>, em 1996, utilizaram como alvo <sup>nat</sup>Fe de alta pureza, eletrodepositado em chapa de Cu (aproximadamente 40mg/cm<sup>2</sup>), irradiado com feixe de dêuterons de 7,5 a 9MeV, para produzir <sup>57</sup>Co. As reações ocorridas foram <sup>56</sup>Fe(d,n)<sup>57</sup>Co e <sup>57</sup>Fe(d,2n)<sup>57</sup>Co, além das que produziram contaminantes como: <sup>58</sup>Fe(d,2n)<sup>58</sup>Co, <sup>54</sup>Fe(d,α)<sup>52</sup>Mn, <sup>56</sup>Fe(d,α)<sup>54</sup>Mn e <sup>58</sup>Fe(d,α)<sup>56</sup>Mn. A impureza radionuclídica mais importante foi o <sup>54</sup>Mn. A corrente de feixe média foi de 11μA e a carga total de 600μA.h. Foram usados métodos de Extração e Troca Iônica para separar e purificar o <sup>57</sup>Co (livre de carregador). O conteúdo total de impurezas foi abaixo de 1%. A atividade específica da fonte foi 473,6Bq/mg (0,0128μCi/mg).

Takács et al <sup>(37)</sup>, em 1998, calcularam as funções de excitação de diversas reações nucleares induzidas em alvos metálicos, para monitorar a energia e a intensidade de feixes de partículas carregadas (p, d, <sup>3</sup>He<sup>++</sup>, α). Entre elas está a de <sup>nat</sup>Fe(d,x), no intervalo de 6,93 a 21,32MeV, sendo produzidos o <sup>56</sup>Co e <sup>57</sup>Co. O pico da secção de choque para a formação de <sup>57</sup>Co ocorreu entre 7 e 8MeV, em torno de 300mb. Acima de 7MeV é o limiar para a produção de <sup>56</sup>Co. Não foi citado nenhum rendimento de produção.

#### **1.4.2.6 Fe + α**

Singh et al <sup>(38)</sup>, em 1998, usaram a Técnica de Folhas Empilhadas (que é descrita no Capítulo 3) e Espectroscopia Gama com detector de Ge(HP), para a pesquisa em reações induzidas por partículas α em <sup>nat</sup>Fe até 50MeV. Foram obtidas as funções de excitação para a produção de <sup>56,57</sup>Ni, <sup>56,57,58</sup>Co das reações em <sup>56</sup>Fe. Os resultados experimentais foram comparados com cálculos que consideram as reações de equilíbrio e pré-equilíbrio, de acordo com o modelo de Blann (código *ALICE/90*). Não foram medidos rendimentos de produção.

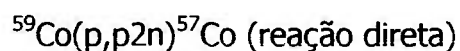
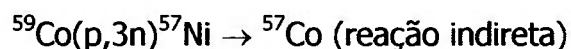
### **1.4.2.7 Fe + p**

Takács et al <sup>(39)</sup>, em 1994 realizaram medidas das funções de excitação de reações induzidas por prótons em <sup>nat</sup>Fe, na região de energia até 18MeV, usando a Técnica de Folhas Empilhadas, no Cíclotron *MGC-20E, Debrecen, Hungria*. Foram determinadas estas funções de excitação para a produção de <sup>56,57,58</sup>Co. Sob o ponto de vista dos autores, o único isótopo de Co que possui um significado especial, nesta faixa de energia, é o <sup>56</sup>Co, e portanto, somente os resultados da reação <sup>nat</sup>Fe(p,xn)<sup>56</sup>Co foram discutidos. Foi feita, também, uma compilação de dados disponíveis medidos entre 1959 e 1993. O <sup>57</sup>Co pode ser produzido pelas reações <sup>57</sup>Fe(p,n)<sup>57</sup>Co e <sup>58</sup>Fe(p,2n)<sup>57</sup>Co, mas o rendimento de produção deve ser baixo, devido às baixas abundâncias naturais dos isótopos de Fe (<sup>57</sup>Fe - 2,2% ; <sup>58</sup>Fe - 0,3%) e uma alta contaminação de <sup>56</sup>Co e <sup>55</sup>Co é esperada.

Outro trabalho de Takács et al <sup>(37)</sup> foi publicado em 1998, onde foi obtida a função de excitação de 4,9 a 17,5MeV da reação <sup>nat</sup>Fe(p,x)<sup>56</sup>Co, proposta para realizar a monitoração de feixe de prótons, cujo pico está em torno de 13MeV, com mais de 350mb. Como no trabalho anterior, não foi mencionado nenhum rendimento de produção.

### **1.4.2.8 Co + p**

O <sup>57</sup>Co pode ser produzido pela irradiação do Co (<sup>59</sup>Co – 100%) com prótons, através das reações:



Sharp et al <sup>(40)</sup>, em 1956, mediram as funções de excitação das reações nucleares ocorridas em alvos de Co, quando irradiado com prótons, num intervalo de energia entre 0 e 100MeV. Foram feitos bombardeamentos dos alvos em um

Acelerador Linear (na região de 0 a 30MeV) e em um Cíclotron (0 a 100MeV). Os alvos irradiados foram separados quimicamente e, em seguida, realizadas as análises. Os detectores de radiação utilizados para as análises dos radionuclídeos produzidos foram o Cintilador Líquido, Geiger-Müller, Proporcional e NaI. Somente foram citados dados relativos obtidos para as secções de choque, mas o pico ocorreu perto de 40MeV, para a produção de  $^{57}\text{Co}$ .

Michel et al <sup>(41)</sup>, em 1979, determinaram funções de excitação de reações nucleares induzidas por prótons, entre 12 e 45MeV, em alvos de Co (composição isotópica natural). As irradiações foram feitas no Cíclotron isócrono *JULIC*, do *KFA, Jülich*, Alemanha, utilizando-se a Técnica de Folhas Empilhadas. Foram produzidos nas folhas  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Mn}$ ,  $^{56}\text{Ni}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Ni}$ ,  $^{57}\text{Co}$  e  $^{58\text{m}+9}\text{Co}$ , cujas análises foram feitas por Espectroscopia Gama. As reações estudadas foram:  $\text{Co}(p,pxn)$ ,  $\text{Co}(p,xn)$  e  $\text{Co}(p,3pxn)$ , que tiveram, também, as secções de choque inversas calculadas usando o modelo óptico de subrotina do código *OVERLAID ALICE*. A comparação dos dados experimentais com os resultados do modelo mostraram uma concordância parcial surpreendentemente boa, sendo somente apresentada alguma dificuldade com relação à produção de  $^{56}\text{Ni}$ , para a emissão de  $\alpha$  e t (trítio), e para desvios de energia. Os valores dos picos obtidos para a produção de  $^{57}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Co}$  foram, respectivamente, em 37,9MeV, com 14,55mb e em 35,81MeV, com 336mb.

Johnson et al <sup>(42)</sup>, em 1984, desenvolveram um método de produção do  $^{57}\text{Co}$  pela reação  $^{59}\text{Co}(p,3n)^{57}\text{Ni} \rightarrow ^{57}\text{Co}$ . A faixa de energia utilizada foi de 40-24MeV e o rendimento de produção de 7,4kBq/ $\mu\text{A.h}$  (2 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ). A pureza radionuclídica foi maior que 99,9 %. As análises dos radionuclídeos produzidos foram feitas com um detector de Ge(Li), após a separação química dos alvos irradiados.

Michel et al <sup>(43)</sup>, em 1985, mediram funções de excitação integrais de reações induzidas por prótons em V, Mn e Co, entre 45 e 200MeV, para a produção de radionuclídeos com  $43 \leq A \leq 60$ . Os experimentos foram realizados no Sincrocíclotron

de *IPN*, em *Orsay*, França (até 200MeV) e no Cíclotron isócrono da *Université Catholique at Louvain La Neuve*, Bélgica (até 80MeV). Os cálculos teóricos de secção de choque foram feitos com o código *ALICE LIVERMORE 82*. No caso das reações induzidas em alvos de  $^{59}\text{Co}$  (elemento alvo com único isótopo, conveniente, portanto, para testes de modelos de cálculos de reações nucleares), foram obtidas secções de choque experimentais entre 48 e 200MeV, para aquelas do tipo  $^{59}\text{Co}(p, xn\gamma p)$ . Os radioisótopos produzidos foram:  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58m+g}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Ni}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{52}\text{Mn}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{48}\text{V}$ ,  $^{47}\text{Sc}$ ,  $^{46m+g}\text{Sc}$  e  $^{44m}\text{Sc}$ . Para reações do tipo  $(p, pn)$ , acima de 45MeV, há um aumento de discrepância entre teoria e experimentos. As secções de choque experimentais para a reação  $^{59}\text{Co}(p, pn)^{58}\text{Co}$  (radionuclídeo produzido com maior valor de secção de choque) foram maiores que as teóricas por até um fator de cinco. Todos os dados de secção de choque citados são valores cumulativos.

Zaitseva et al <sup>(44)</sup>, em 1991, calcularam funções de excitação de algumas reações nucleares com o código *OVERLAID ALICE* (no *Institute for Nuclear Research*, em *Swierk*, Polônia). O objetivo do trabalho foi estudar a produção de  $^{52}\text{Fe}$ , entre outros radionuclídeos, incluindo secções de choque e rendimentos. Foi utilizado alvo de  $^{59}\text{Co}$  (folha metálica) e feixe de prótons, desde 65MeV, aproximadamente, até 100MeV. A atividade das amostras irradiadas foi medida com um detector de Ge(Li). Foram calculadas funções de excitação de reações do tipo  $^{59}\text{Co}(p, xp\gamma n)$ , que mostraram, também, a produção de:  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Ni}$  e  $^{59}\text{Ni}$ , de 5 a 100MeV (no caso, eram contaminantes). As secções de choque foram apresentadas graficamente e os valores dos picos estavam abaixo de 40MeV para o  $^{57}\text{Co}$  e em torno de 20MeV para o  $^{57}\text{Ni}$ . A comparação dos dados calculados com os resultados experimentais mostrou uma concordância satisfatória entre 65 e 80MeV, para a produção de  $^{52}\text{Fe}$ . Neste trabalho, porém, foi usado o acelerador *LU-100 Proton Linac*, do *Institute of High Energy Physics (IHEP)*, de *Serpukhov*, antiga URSS.

Lagunas-Solar et al <sup>(45)</sup>, em 1993, determinaram funções de excitação de várias reações nucleares, entre elas  $^{59}\text{Co}(p, x)^{57}\text{Ni}$ ,  $^{59}\text{Co}(p, x)^{57}\text{Co}$ ,  $^{59}\text{Co}(p, x)^{56}\text{Co}$  e

$^{59}\text{Co}(p,x)^{54}\text{Mn}$ , e compararam com os valores teóricos obtidos pelo código *ALICE 82*. Os valores foram apresentados em método gráfico e a concordância foi muito ruim, sem picos muito bem definidos. A energia máxima dos prótons foi de 40MeV.

Zweit et al <sup>(46)</sup>, em 1993, mediram as funções de excitação pela Técnica de Folhas Empilhadas, para as reações  $^{59}\text{Co}(p,3n)^{57}\text{Ni}$ , desde o limiar até 60MeV, no Ciclotron *MC-60 Scanditronix Ltd.*, do *Douglas Cyclotron Unit* no *Clatterbridge Center for Oncology*, de *Wirral*, Inglaterra. O valor máximo de secção de choque obtido para a reação  $^{59}\text{Co}(p,3n)^{57}\text{Ni}$  foi em 38MeV, com 13,8mb. O intervalo ótimo encontrado para a produção de  $^{57}\text{Ni}$  foi de 41-26MeV, com um rendimento experimental para alvo grosso de 19,3MBq/ $\mu\text{A.h}$  (522 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ). O nível de impureza de  $^{56}\text{Ni}$  foi somente 0,21% no *EOB*, produzindo  $^{57}\text{Ni}$  com 99,7% de pureza radionuclídica, na hora do uso (24h após o *EOB*). Os dados de secção de choque para a produção de  $^{56}\text{Ni}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{52}\text{Mn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  e  $^{51}\text{Cr}$  também foram apresentados. O pico da secção de choque total para a produção de  $^{57}\text{Co}$  foi de 228mb, em torno de 35MeV. O objetivo do trabalho foi usar o  $^{57}\text{Ni}$  para marcar uma droga (*DXR – Doxorubicin*) usada em *PET*, para verificação de tumores sólidos. O  $^{57}\text{Ni}$  foi separado por Cromatografia de Troca Catiônica, do alvo irradiado e de outras impurezas químicas e radioquímicas presentes.

Este método é o que produz  $^{57}\text{Co}$  com o maior nível de pureza radionuclídica, (sem necessidade de esperar o decaimento das impurezas), mas o rendimento de produção é baixo.

#### **1.4.2.9 Ni + $\alpha$**

Tanaka <sup>(47)</sup>, em 1960; Houck et al <sup>(48)</sup>; em 1961 e Blann et al <sup>(49)</sup>, em 1964, determinaram as funções de excitação das reações  $^{58}\text{Ni}(\alpha,\alpha n)^{57}\text{Ni} \rightarrow ^{57}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Ni}(\alpha,\alpha p)^{57}\text{Co}$  com prótons de energia de até 47MeV. Os picos ocorreram, respectivamente, em 35,58MeV, com 47mb; 37,65MeV, com 48,6mb e 35,70MeV,

com 41mb, para a produção de  $^{57}\text{Ni}$ . No caso do  $^{57}\text{Co}$ , os valores foram 31,84MeV, com 272mb; entre 30,97 e 35,44MeV, com 279mb e 33,20MeV, com 260mb, respectivamente.

Muramatsu et al <sup>(50)</sup>, em 1978, mediram as funções de excitação para as reações do feixe de partículas alfa, incidindo em alvos de Ni, na faixa de energia de 10 a 40MeV. O objetivo do trabalho foi a produção de  $^{61}\text{Cu}$ , mas foram apresentados, também, os resultados obtidos para a maioria dos produtos, pelo método gráfico. O pico para a produção de  $^{57}\text{Co}$  ocorreu em torno de 30MeV e para a de  $^{57}\text{Ni}$ , em torno de 35MeV.

Das et al <sup>(32)</sup>, em 1987, estudaram a produção do  $^{57}\text{Co}$  pelas reações  $^{58}\text{Ni}(\alpha, \alpha p)^{57}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Ni}(\alpha, \alpha n)^{57}\text{Ni} \rightarrow ^{57}\text{Co}$ . O rendimento de produção com prótons de 49MeV foi de 124,32kBq/ $\mu\text{A.h}$  (3,36 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ), mas o nível de impurezas de  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$  foi menor que 1%, somente após 350 dias de decaimento.

Takács et al <sup>(51)</sup>, em 1996, determinaram as funções de excitação, em alvo de  $^{\text{nat}}\text{Ni}$ , de reações nucleares induzidas por partículas alfa, para a produção de  $^{62,63,65}\text{Zn}$ ,  $^{60,61,67}\text{Cu}$ ,  $^{57}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Co}$ , até 25MeV. As irradiações foram feitas nos ciclotrons compactos de *Debrecen, MGC 20-E* (16 e 20,7MeV) e *CV-28, de Julich* (26,6MeV), com 100-200nA de corrente de feixe e de duração de 0,5 a 2h. As secções de choque foram medidas pelo método de ativação, através da Técnica de Folhas Empilhadas. Para a produção de  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Ni}$ , entre outros, os dados foram medidos somente perto dos limiares das reações, já que a energia incidente disponível era relativamente baixa. O uso destas funções de excitação foi discutido para produção de radioisótopos, técnicas de ativação e monitoração de feixe de partículas carregadas. Os espectros de raios gama das folhas irradiadas foram obtidos com detectores de Ge(HP), sem separação química. Os valores encontrados foram apresentados graficamente, para a produção de  $^{57}\text{Co}$  e de  $^{57}\text{Ni}$ , mas as curvas não são bem definidas.

Neste método, além da necessidade de utilização de partículas alfa de alta energia, o nível de impurezas radionuclídicas é muito alto.

#### **1.4.2.10 Ni + d**

Zweit et al <sup>(52)</sup>, em 1991, mediram as funções de excitação para as reações induzidas por dêuterons em Ni, visando a produção de <sup>64</sup>Cu. Dentre as impurezas, foram medidos os rendimentos de produção de <sup>57</sup>Ni e <sup>57</sup>Co (usando alvo de Ni enriquecido em <sup>64</sup>Ni a 96,48%), de 728,9MBq/μA.h e 55,5MBq/μA.h (19,7 e 1,5mCi/μA.h), respectivamente, numa faixa de energia de 19 a 15MeV. No caso do uso de alvos naturais de Ni, os resultados foram de 14,43MBq/μA.h e 1,70MBq/μA.h (0,39 e 0,046mCi/μA.h). Os picos de secção de choque para a produção de <sup>57</sup>Co e de <sup>57</sup>Ni ocorreram em 18,9MeV, com valores de 79,9mb e 5mb, respectivamente.

Takács et al <sup>(37)</sup>, em 1998, mediram as funções de excitação das reações: <sup>nat</sup>Ni(d,x)<sup>55,56,57,58</sup>Co, <sup>57</sup>Ni, <sup>60,61</sup>Cu, entre o limiar até 21,3MeV de energia. A reação <sup>nat</sup>Ni(d,x)<sup>58</sup>Co foi proposta para a monitoração de feixes de dêuterons. Os valores foram apresentados graficamente e as curvas não são bem definidas.

#### **1.4.2.11 Ni + <sup>3</sup>He<sup>++</sup>**

Takács et al <sup>(53)</sup>, em 1995, mediram as secções de choque pela Técnica de Folhas Empilhadas, no intervalo de energia de 2-36MeV, para reações induzidas em <sup>nat</sup>Ni por partículas de <sup>3</sup>He<sup>++</sup>. Foram produzidos <sup>62,65</sup>Zn, <sup>60,61</sup>Cu, <sup>56,57</sup>Ni, <sup>55,56,57,58</sup>Co, <sup>52,53</sup>Fe e <sup>52</sup>Mn. Os experimentos foram realizados no Cíclotron *MGC-20E*, em *Debrecen*, Hungria, e no Cíclotron compacto *CV-28* (mesmo modelo do existente no *IPEN-CNEN/SP e IEN-CNEN/RJ*), em *Jülich*, Alemanha. As funções de excitação medidas foram consideradas em relação ao uso como reações monitoras de intensidade e energia do feixe. Os valores dos picos obtidos foram em 35MeV, com 167,6mb e 32,9mb, para a produção de <sup>57</sup>Co e <sup>57</sup>Ni, respectivamente.

### 1.4.2.12 Ni + p

Kaufman et al <sup>(54)</sup>, em 1960, determinaram as funções de excitação das reações  $^{58}\text{Ni}(p,2p)^{57}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Ni}(p,pn)^{57}\text{Ni} \rightarrow ^{57}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Ni}(p,\alpha)^{55}\text{Co}$ , com prótons de até 19MeV, e da reação  $^{60}\text{Ni}(p,\alpha)^{57}\text{Co}$ , com prótons de até 13MeV. As irradiações foram feitas no Cíclotron da *Princeton University*, em *New Jersey*, EUA, cuja capacidade máxima é acelerar prótons até 19MeV. Foram usados alvos de  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  de 350 $\mu\text{m}$  de espessura e Ni enriquecido em  $^{58}\text{Ni}$  a 99,6%, eletrodepositado em folha de Platina (Pt), com 500 $\mu\text{m}$ . Foi usada a técnica de folhas empilhadas para a medida de funções de excitação, com folhas de Ni intercaladas por folhas de Al para degradar a energia do feixe. Após o bombardeamento, os alvos foram dissolvidos em HCl, para o qual  $\text{Co}(\text{NO}_3)_2$  (Nitrato de Cobalto) teve que ser adicionado. A solução foi percolada em uma coluna contendo resina de troca iônica DOWEX-1, que serviu para separar Ni do Co, Cu, Pt e Au. O Co foi eluído seletivamente da coluna e foi submetido à purificação química, após a qual ele foi precipitado e montado para contagem. As frações de Ni foram isoladas para que todo o  $^{57}\text{Ni}$  decaísse para o  $^{57}\text{Co}$ , que foi, então, separado como nas frações de Co e contado. Foram usados o detector Geiger-Müller (G-M) e um Contador Proporcional, que mostraram a presença de  $^{55}\text{Co}$ . As amostras de  $^{57}\text{Co}$  foram contadas em detector de NaI (Iodeto de Sódio) 1½"x1", revelando que estavam livres dos outros isótopos de Co, como  $^{56,58,60}\text{Co}$ . O  $^{57}\text{Co}$  é produzido pelas reações  $^{58}\text{Ni}(p,2p)^{57}\text{Co}$  e  $^{60}\text{Ni}(p,\alpha)^{57}\text{Co}$ , em  $^{\text{nat}}\text{Ni}$ . Abaixo de 13MeV, onde a primeira reação tem uma secção de choque pequena, sua contribuição pode ser subtraída da atividade total de  $^{57}\text{Co}$  e a da segunda determinada. A secção de choque da reação  $^{58}\text{Ni}(p,2p)^{57}\text{Co}$  é maior que a da reação  $^{58}\text{Ni}(p,pn)^{57}\text{Ni}$ , em todos os valores de energia disponíveis, sendo que a razão diminui com o aumento de energia. A razão da secção de choque da reação (p,2p) em relação à (p,pn) encontrada foi de 3,5 em 19MeV e aumentava com a diminuição da energia (em 21,5MeV passou para 2,8). Foi proposto que este excesso de emissão de prótons poderia ser explicado pela teoria de evaporação e um cálculo computacional das funções de excitação desta teoria foi descrito. O cálculo reproduziu as curvas (p,2p) e (p,pn) bastante bem e forneceu

evidências de que o mecanismo de núcleo composto provavelmente se aplicava a estas reações. A curva  $(p,\alpha)$  calculada não concordou muito bem com os resultados experimentais.

Ewart et al <sup>(55)</sup>, em 1964, mediram as funções de excitação para as reações anteriores, com prótons de até 40MeV. O detector utilizado foi um Contador Proporcional.

Gillette <sup>(56)</sup>, em 1965, estudou a produção de <sup>57</sup>Co irradiando Ni com prótons de 23MeV. O rendimento de produção foi de 111 a 185kBq/ $\mu$ A.h (3 a 5 $\mu$ Ci/ $\mu$ A.h), contendo até 1% de <sup>58</sup>Co.

Barrandon et al <sup>(57)</sup>, em 1975, mediram a função de excitação da reação  $Ni(p,x)^{57}Ni$ , com feixe de prótons de até 20MeV, no Cíclotron de Energia Variável do Centro de Estudos Nucleares de *Saclay*, França. Este trabalho fazia parte de um estudo de análise por ativação com prótons de vários metais. As curvas foram obtidas por irradiação de folhas metálicas de 10 a 25 $\mu$ m empilhadas. O <sup>57</sup>Ni foi produzido com energia acima de 12MeV, sendo o maior valor de secção de choque perto de 20MeV (menos de 68mb). A medida da radioatividade das folhas foi feita com detector de Ge(Li).

Brinkman et al <sup>(58)</sup>, em 1977, determinaram a função de excitação da reação  $Ni(p,x)^{57}Ni$ , com feixe de prótons de até 51MeV, no *Institute for Nuclear Physics Research (IKO)*, em *Amsterdam*, Holanda. Uma pilha combinada de folhas de Ni e Cu de alta pureza e composição isotópica natural, com espessura de 94mg/cm<sup>2</sup> e 8,7mg/cm<sup>2</sup>, respectivamente, foi usada para irradiação com feixe de prótons. O diâmetro do feixe extraído era de 2cm, enquanto o das folhas do alvo era 3cm. O objetivo do trabalho foi o de medir os parâmetros, para usar o Ni como monitor da corrente de feixe das partículas. As intensidades da corrente de feixe variaram de dezenas a centenas de nA. As reações de interesse nas folhas de Ni foram aquelas

para a produção de  $^{57}\text{Ni}$  e  $^{55}\text{Co}$ :  $^{58}\text{Ni}(p,pn)^{57}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}(p,p3n)^{57}\text{Ni}$  e  $^{61}\text{Ni}(p,p4n)^{57}\text{Ni}$ ;  $^{58}\text{Ni}(p,\alpha)^{55}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Ni}(p,\alpha 2n)^{55}\text{Co}$ ,  $^{61}\text{Ni}(p,\alpha 3n)^{55}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Ni}(p,2p2n)^{55}\text{Co}$ . Os autores chegaram à conclusão que no caso do uso de folhas de Ni, as melhores características para monitoração de correntes de feixe com prótons foram a energia incidente de 50MeV, medindo-se o  $^{57}\text{Ni}$ . Foram utilizados alvos de Ni com feixe de prótons, dêuterons e partículas alfa e; Cu com feixe de prótons,  $^3\text{He}^{++}$  e partículas alfa. O detector utilizado nas análises das folhas irradiadas foi o Ge(Li).

Watanabe et al <sup>(31)</sup>, em 1979, apresentaram o  $^{55}\text{Co}$  como um dos isótopos de Cobalto promissores para uso na Medicina Nuclear (além dos já produzidos na época, como  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$  e  $^{60}\text{Co}$ , disponíveis como vitamina B<sub>12</sub> (radiocianocobalamina) e (radiobleomicina), em *PET*, já que decai para o  $^{55}\text{Fe}$  com 81%, por emissão de pósitron e 19% por captura eletrônica (c.e.). As funções de excitação (método gráfico somente) de reações  $^{58}\text{Ni}+p$  e  $^{60}\text{Ni}+p$  foram determinadas. Foram avaliadas e mostradas curvas de rendimento de alvo grosso para estas reações, em alvos de composição isotópica natural e enriquecido em  $^{58}\text{Ni}$  a 99,95%. No intervalo de energia do feixe de prótons entre 12,5 e 9,2MeV, o nível de  $^{57}\text{Co}$ , produzido como impureza na produção de  $^{55}\text{Co}$ , foi de aproximadamente 0,5% no *EOB*. A espessura do alvo era de 113mg/cm<sup>2</sup>, produzindo 7,955MBq/μA.h (215μCi/μA.h) de  $^{55}\text{Co}$ . No caso do uso de alvo enriquecido, no intervalo de 12,8 a 9,2MeV e alvo de 138mg/cm<sup>2</sup> de espessura, não foi gerada nenhuma impureza de  $^{56,57,58}\text{Co}$ . As atividades dos produtos das reações foram determinadas diretamente, medindo-se os raios gama emitidos de cada alvo, com detector de Ge(Li) acoplado a um analisador de altura de pulso de 2048 canais.

Gureev et al <sup>(59)</sup>, em 1981, estudaram a preparação do  $^{57}\text{Co}$  livre de carregador, com prótons, através da irradiação do alvo de Ni eletrodepositado em Cu. O trabalho só descreve a separação química do  $^{57}\text{Co}$ .

Osso Jr. <sup>(60)</sup>, em 1987, descreveu a produção de <sup>57</sup>Co, através da irradiação de Ni com feixe de prótons de 24MeV no Cíclotron *CV-28* do *IEN-CNEN/RJ*. O alvo usado foi uma folha de Ni metálico irradiada com 5μA de corrente de feixe. O alvo irradiado foi dissolvido em HNO<sub>3</sub> 3N (5mL) e a solução posteriormente levada à secura. O resíduo foi dissolvido em HCl 8N (5mL) e percolado em uma resina de Troca Aniônica DOWEX 1x8 (200-400 mesh) com 7cm de altura e 1cm de diâmetro, previamente condicionada em HCl 8N. O Ni foi passado ao efluente com aproximadamente 50mL e o <sup>57</sup>Co eluído, com cerca de 20mL em HCl 0,1N. O rendimento de produção foi de 1,073MBq/μA.h (29μCi/μA.h), mas o nível de impureza <sup>56</sup>Co e <sup>58</sup>Co só caiu a menos que 1% após 60dias de decaimento.

Rylov et al <sup>(61)</sup>, em 1995, produziram <sup>57</sup>Co, no *Cyclotron U-150*, do Uzbequistão, usando alvo interno refrigerado à água, consistindo de uma camada fina de <sup>58</sup>Ni enriquecido cobrindo uma placa suporte de Cobre. Este método permitiu obter <sup>57</sup>Co na forma de Cloreto, com nível de impureza radionuclídica menor que 0,1% e com atividade total de aproximadamente 3,7x10<sup>10</sup>Bq (1Ci), após 10 dias (leva-se a pensar que este é o tempo de irradiação, já que este valor de atividade é muito alto) do início da irradiação. A intensidade do feixe interno de prótons, no alvo, foi entre 500-600μA, o intervalo de energia do feixe de prótons, 18-20MeV e a potência térmica até 10-12kW (rendimento aproximado de 10μCi/μA.h). O principal obstáculo para obter <sup>57</sup>Co puro foi a acumulação total de <sup>56</sup>Co, <sup>58</sup>Co e <sup>60</sup>Co, de aproximadamente 0,1%, durante o bombardeamento. O <sup>56</sup>Co fornece 80% da contaminação, obtido pela reação <sup>58</sup>Ni(p,2pn)<sup>56</sup>Co durante a irradiação e do decaimento de <sup>56</sup>Ni, pela reação <sup>58</sup>Ni(p,2pn)<sup>56</sup>Ni → <sup>56</sup>Co. A acumulação do <sup>56</sup>Co pode ser diminuída (até 30% do seu conteúdo total) reduzindo o tempo de espera para decaimento para 2-3 dias, quando a acumulação de <sup>57</sup>Co do decaimento de <sup>57</sup>Ni produzido pela reação <sup>58</sup>Ni(p,pn)<sup>57</sup>Ni → <sup>57</sup>Co é máxima. Após 2-3 dias, o alvo permaneceu com atividade acima de 18,5x10<sup>4</sup>MBq (5Ci) para todos os isótopos. A energia limiar para a formação de <sup>56</sup>Co é aproximadamente 19,9MeV e é maior que a requerida para o <sup>57</sup>Co, 8,33MeV. Portanto, o <sup>56</sup>Co tem a tendência de se acumular mais nas camadas superiores do

alvo, que nas inferiores. A eliminação da camada superior não reduz a atividade total do alvo (aproximadamente 5% da atividade total), mas permite diminuir o conteúdo de  $^{56}\text{Co}$  no produto final até 20%. Usando ambas propriedades, conseguiu-se reduzir o conteúdo de  $^{56}\text{Co}$  em 50%.

Sonck et al <sup>(62)</sup>, em 1998, mediram secções de choque de reações nucleares (p,x) de 14 a 44MeV, em alvos de  $^{nat}\text{Ni}$ , levando à produção de  $^{57}\text{Ni}$  e usando a Técnica de Folhas Empilhadas. O valor do pico da secção de choque desta reação foi de 178mb, em aproximadamente 26,5MeV. Também foi estimada a influência da reação (n,2n) para as secções de choque de produção de  $^{57}\text{Ni}$ , nas piores condições experimentais. Esta reação foi citada em uma lista de reações monitoras sugeridas pelo *INDC (International Nuclear Data Committee)*, da *IAEA (International Atomic Energy Agency – Agência Internacional de Energia Atômica)*, em 1996. As irradiações foram feitas na estação de feixe externo do Cíclotron da *Vrije Universiteit Brussel (VUB)*, Bélgica. As folhas foram ativadas em 12 experimentos separados. Os tempos de irradiação variaram de 5 a 55min e a carga integrada, de 3 a 10mC. Foram feitos, também, experimentos separados com folhas de Ni e Al que frearam completamente o feixe de prótons. O tempo utilizado foi de 1h e as correntes de feixe variaram de 500 a 850nA. Um detector de Ge(HP), acoplado a um *S35 Canberra MCA*, mediu a radioatividade das folhas ativadas. Com base nestes estudos, pode ser concluído que este processo pode ser usado na monitoração de feixe de prótons, neste intervalo de energia.

Reimer e Qaim <sup>(63)</sup>, em 1998, mediram as funções de excitação, para a formação de  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ , nas interações de prótons com  $^{58}\text{Ni}$ , de seus respectivos limiares até 45MeV. Amostras finas foram preparadas por deposição eletrolítica de  $^{58}\text{Ni}$ , enriquecido a 99,87%, sobre suporte de Au. Para medidas de  $^{56}\text{Co}$  e  $^{57}\text{Co}$ , uma separação radioquímica imediata, via Cromatografia de Troca Aniônica foi necessária para eliminar as contribuições originadas do decaimento de  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ . Rendimentos integrais dos radionuclídeos mencionados acima foram calculados das

funções de excitação medidas das reações  $^{58}\text{Ni}(p,x)$ . No intervalo ótimo de energia, de 15 a 7MeV, os rendimentos teoricamente esperados para  $^{55}\text{Co}$  chegaram até 14,3MBq/ $\mu\text{A.h}$  (386,49 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ) e o nível de impureza de  $^{57}\text{Co}$  até 0,5%. A produção de  $^{57}\text{Co}$ , por outro lado, é possível sem qualquer impureza de  $^{56}\text{Co}$  no intervalo de energia de 23 a 13MeV e seu rendimento atingiu até 1,4MBq/ $\mu\text{A.h}$  (37,84 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ). Os picos das secções de choque das reações, para a produção de  $^{57}\text{Ni}$ ,  $^{57}\text{Co}$  e  $^{55}\text{Co}$  (em Ni enriquecido em  $^{58}\text{Ni}$  a 100%) foram, respectivamente, de 252mb, em 27,2MeV; 488mb, em 26MeV e 43mb, em 18,3MeV. A competição entre as reações (p,pn) e (p,2p), sobre o  $^{58}\text{Ni}$ , mostrou que o último processo tem maior probabilidade de ocorrer que o primeiro. As sistemáticas de funções de excitação (p, $\alpha$ ) em alguns isótopos de alvos de Níquel de massa par ( $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$  e  $^{64}\text{Ni}$ ) também foram discutidas brevemente, onde, em geral, a probabilidade de emissão de partículas alfa diminui com o aumento do número de nêutrons do núcleo alvo, já que estes tipos de núcleos tendem a emitir mais nêutrons que partículas carregadas.

Spellerberg et al <sup>(64)</sup>, em 1998, produziram  $^{55}\text{Co}$  e  $^{57}\text{Co}$  pelas reações (p, $\alpha$ ) e (p,2p), respectivamente, em  $^{58}\text{Ni}$  altamente enriquecido. Foram utilizadas medidas das funções de excitação de reações induzidas neste tipo de alvo, por Reimer e Qaim<sup>(63)</sup>, em 1998. Daqueles dados, foi deduzido o intervalo ótimo de produção, 13 a 23MeV, para o  $^{57}\text{Co}$  e de 7 a 15MeV para o  $^{55}\text{Co}$ . O alvo consistiu de uma camada fina de  $^{58}\text{Ni}$ , depositada eletroliticamente (99,78% e 108 $\mu\text{m}$ ), em um bloco de Cu, em um ângulo inclinado de 20° (esta geometria permite a utilização de alvo de espessura menor e é suficiente para cobrir os intervalos de energia para a produção de  $^{55}\text{Co}$  e  $^{57}\text{Co}$ ). Este era fixo a um suporte de alvo, refrigerado com água corrente na parte traseira e este último, anexado à uma linha de feixe externo do Cíclotron CV-28 (modelo igual ao possuído pelo IPEN) de Jülich, Alemanha. O processamento químico da amostra irradiada teve como objetivo produzir estes dois radioisótopos da forma mais pura possível e recuperar o material do alvo altamente enriquecido. Foi utilizado HCl (Ácido Clorídrico) na célula de eletrodeposição com polaridade invertida, para separar o  $^{58}\text{Ni}$  e o cobalto radioativo do bloco de Cu. A Cromatografia de Troca

Aniônica foi a técnica utilizada na eluição, com resina DOWEX 1X8 (200-400 mesh), na forma de  $\text{Cl}^-$ . A solução final foi preparada com solução isotônica e filtrada em um filtro millipore ( $0,22\mu\text{m}$ ), estando o produto estéril pronto para injeção direta ou o resíduo levado a um reagente conveniente com propósito de marcação. Os rendimentos experimentais de alvo grosso, especialmente em altas correntes de feixe foram invariavelmente menores que os calculados. Em termos absolutos, os rendimentos de alvo grosso do  $^{55}\text{Co}$  e  $^{57}\text{Co}$  foram um tanto baixos. No caso do  $^{55}\text{Co}$ , uma irradiação de 3h produziu 240MBq (6,5mCi) no *EOB* (com impureza de  $^{57}\text{Co}$  de 0,5%), quantidade suficiente para realizar experimentos com animais e para aplicações no ser humano. Com relação ao  $^{57}\text{Co}$ , foram obtidos 20MBq (0,5mCi) após uma irradiação de 5h e aproximadamente  $10\mu\text{A}$  de corrente de feixe (rendimento de  $10\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ). Esta quantidade foi suficiente para preparar fontes Mössbauer e padrões para raios gama, mas não para calibração em *SPET*.

Este é o método que proporciona o maior rendimento de produção de  $^{57}\text{Co}$ , apesar das impurezas radionuclídicas presentes ( $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$ ).

## **1.5 Fundamentos Teóricos de Reações Nucleares <sup>(65)</sup>**

### **1.5.1 Secções de Choque**

#### **1.5.1.1 Secções de Choque de Reações Nucleares <sup>(66)</sup>**

Um núcleo de raio  $r$  representa um alvo de área projetada  $\pi r^2$  para uma partícula incidente. A secção de choque  $\sigma$  mede a probabilidade de ocorrer uma determinada reação nuclear e é dada na mesma unidade de área ( $1\text{barn}=1\text{b}=10^{-24}\text{cm}^2$ ).

Várias reações nucleares podem ocorrer, quando uma partícula atinge um determinado núcleo. A secção de choque total da reação é a soma de todas estas contribuições possíveis.

Medidas experimentais dos valores das secções de choque são úteis para calcular o rendimento dos produtos, em bombardeamentos realizados em Cíclotrons ou Reatores Nucleares.

No caso dos Cíclotrons, as partículas são absorvidas em um Copo de Faraday, após atravessarem o alvo, o qual possui espessura suficiente para pará-las. A carga total ( $C$ ) depositada pelas partículas do feixe é medida por um eletrômetro. A relação entre o número de partículas por segundo, do feixe, e a corrente medida é dada por:

$$1\mu\text{A de partículas de carga } Z = \frac{6,28 \cdot 10^{12}}{Z} \text{ (pps)} \quad (1.5)$$

### **1.5.1.2 Reações Monitoras**

O uso de reações monitoras é um método simples para determinar o fluxo de feixe e pode também fornecer o valor da energia da partícula, calculada em uma folha fina (da ordem de  $\mu\text{m}$ ), assegurando a precisão necessária em diferentes aplicações. Da atividade induzida na folha pelo feixe de partículas carregadas e da relação conhecida entre secção de choque – energia da reação ocorrida na folha monitora, a energia ou a intensidade do feixe bombardeante podem ser calculados. Há diversos critérios para selecionar os alvos e reações monitoras. Estes incluem a disponibilidade do material, as características físicas e químicas do alvo, os parâmetros de decaimento do radionuclídeo produzido, a forma e magnitude da função de excitação na região de energia em questão e a ocorrência de reações interferentes não desejadas. Entre todos os critérios, a secção de choque é o mais importante. Assim, uma reação nuclear apropriada para monitoração deve possuir propriedades como:

- (a) Ter uma secção de choque alta;
- (b) Para determinação de fluxo, deve ter uma função de excitação com um patamar bem definido na região de energia pesquisada;
- (c) Para a determinação de energia, deve ter inclinação acentuada de secção de choque, pois fornece uma boa resolução no intervalo de energia verificado;

- (d) O isótopo usado para monitoração deve ter meia-vida conveniente comparada com o tempo de irradiação;
- (e) Os raios  $\gamma$  emitidos pelo isótopo monitor devem ter uma energia apropriada, sem interferência e com intensidade relativa alta;
- (f) O produto da reação deve permanecer na folha monitora, ou seja, deve possuir baixa probabilidade de volatilização, evaporação ou escape;
- (g) É vantajosa a possibilidade de uso do mesmo material para diferentes tipos de feixes ( $p$ ,  $d$ ,  ${}^3\text{He}$ ,  $\alpha$ ).

Para uma folha monitora ser utilizada com material alvo, deve ter:

- (a) Estabilidade e resistência químicas;
- (b) Boas propriedades mecânicas para a confecção de folhas finas;
- (c) Boa condução elétrica e de calor (para dissipação da energia do feixe);
- (d) Disponibilidade alta e preço baixo.

Considerando todas estas propriedades citadas anteriormente, os materiais Al, Ti, Fe, Ni e Cu podem ser utilizados como alvos monitores.

Além dos princípios geralmente aceitos, como conhecimento da secção de choque das reações monitoras aplicadas, uso de folhas monitoras finas e o uso de feixe bombardeante mono-energético, há dois outros princípios postulados para aplicação deste método:

1. A intensidade de feixe calculada pela atividade da folha monitora, em diferentes pontos na pilha de alvos, será a mesma, somente se a energia do feixe, em cada folha monitora, for determinada corretamente e se nenhuma perda de feixe ocorrer no alvo;
2. A energia calculada a partir da análise de uma folha monitora, usando-se diferentes reações monitoras, será a mesma, somente se a intensidade do feixe na folha for determinada corretamente <sup>(37)</sup>.

## ***1.5.2 Cálculos de Funções de Excitação para Reações Nucleares Induzidas por Partículas Carregadas***

### ***1.5.2.1 Considerações Gerais***

Os dados de secção de choque, para reações nucleares induzidas por partículas carregadas, são necessários em diversos campos, como por exemplo, na produção de radioisótopos, em técnicas de ativação e em radiobiologia. Estes tipos de reações têm tido menor importância em aplicações tecnológicas, acarretando em uma quantidade menor de dados disponíveis. Já no caso das reações com nêutrons, uma grande quantidade de dados tem sido coletada, cobrindo um intervalo de energia de até diversos MeV, para quase todos os isótopos estáveis. Portanto, há várias compilações disponíveis como arquivos de dados.

As funções de excitação, que representam variações de secção de choque para certas reações, com a energia da partícula incidente, podem ser usadas na produção de radioisótopos para:

- (a) determinar a energia da partícula necessária para ocorrer um tipo de reação;
- (b) calcular o rendimento que pode ser esperado para um tipo de reação e um certo alvo;
- (c) calcular os rendimentos de produção das impurezas radionuclídicas, que ajudam a determinar a necessidade ou não da utilização de alvos enriquecidos isotopicamente;
- (d) Cálculo de espessura de alvo, na faixa ideal de energia da partícula, para uma determinada reação de interesse.

Para qualquer radioisótopo, as melhores condições de produção dependerão de muitos fatores. Uma grande quantidade de dados, particularmente para partículas com energias maiores, seria necessária para determinar os rendimentos de produção e contaminantes de todas as reações de competição. Somente se estes dados estiverem disponíveis, pode ser feita uma primeira avaliação das

vantagens e limitações dos vários métodos de produção. A situação é mais complexa, se métodos de produção indiretos são esperados, para usufruir da diferença da meia-vida de contaminantes, no decaimento dos produtos da ativação.

Com mais freqüência, somente dados de rendimentos de produção de radioisótopos são mais disponíveis em literatura. Embora estes dados sejam importantes para objetivos de produção, uma compreensão melhor da relação entre os vários fatores que contribuem para o rendimento de produtos e contaminantes, é obtida dos dados das funções de excitação. Outros fatores importantes (como foi citado anteriormente) incluem o sistema de porta-alvos (composição e material do alvo, construção, transferência e dissipação de calor no alvo) e procedimentos radioquímicos (manuseio remoto do alvo, processamento químico e controle de qualidade radioquímico e radiofarmacêutico do alvo) convenientes.

Nos casos em que as funções de excitação são necessárias, mas há dados experimentais em pequena quantidade, dois meios estão disponíveis para obter estimativas. Keller et al. <sup>(67)</sup> idealizaram um método semi-empírico, pelo qual parâmetros característicos das funções de excitação (energia inicial, secção de choque máxima, a energia na secção de choque máxima, a secção de choque na descida da curva e largura no ponto médio do máximo da secção de choque) são derivados de uma série padrão de dados. Um outro meio, é a aplicação de um dos códigos de computador disponíveis para o cálculo de secções de choque nucleares. Estes códigos foram desenvolvidos, principalmente, para que os processos de uma reação nuclear fossem compreendidos teoricamente, mas eles também têm sido usados para avaliações de secções de choque de reações induzidas por nêutrons primários (aqueles produzidos nas reações em Cíclotrons).

A precisão com a qual as secções de choque podem ser reproduzidas, usando códigos de computador, depende de diversos fatores que serão discutidos a seguir. A medida da precisão da função de excitação é o dado experimental. De

acordo com Qaim <sup>(68)</sup>, erros experimentais de secções de choque atingem, em geral, de 10 a 15% aproximadamente, aumentando para dados de baixo rendimento para 25%. Erros na energia da partícula não são encontrados freqüentemente em literatura, mas dependendo da partícula, poderiam se estender para aproximadamente  $\pm 2\text{MeV}$  ou mais. Isto tem muita importância, quando o aparecimento inicial de uma função de excitação de várias fontes é comparada.

Em seguida, é fornecida uma introdução para princípios teóricos, ajudando na aplicação dos códigos e no entendimento de seus parâmetros de entrada.

### ***1.5.2.2 Modelos e Parâmetros***

Este item apresenta um pequeno perfil dos modelos de reações mais importantes para os cálculos de secção de choque, na produção de radioisótopos. Todas as citações se referem a energias entre poucos MeV e diversas dezenas de MeV.

#### ***1.5.2.2.1 Mecanismos das Reações e sua Importância para Secções de Choque dos Produtos de Ativação***

Em geral, podem ser distingüidos dois mecanismos de reação: reações diretas (*DIR*) e reações de núcleos compostos (*CNR*). O primeiro envolve poucos graus de liberdade dos muitos sistemas de nucleons considerados. As secções de choque são calculadas resolvendo explicitamente o problema de espalhamento, para um modelo dinâmico simplificado. O segundo, caracteriza-se pela participação de muitos graus de liberdade e é baseado, essencialmente, em suposições estatísticas. Além destes mecanismos, há também reações de pré-equilíbrio (*PER*) ou reações pré-compostas, situadas entre *DIR* e *CNR*, em termos de complexidade. Os três mecanismos contribuem com certa percentagem, dependendo do tipo de reação (partícula incidente e partícula emergente), da

energia incidente e da energia de excitação dos núcleos residuais.

Com energias incidentes superiores a poucos MeV, os produtos da ativação resultam, essencialmente, de desexcitação por raios  $\gamma$  de um grande número de estados altamente excitados. As secções de choque para a formação destes níveis, por reações com uma ou mais partículas emitidas, pode ser calculada pela combinação de modelos para *PER* e *CNR*.

Reações diretas ocorrem principalmente por processos binários. Em muitas aplicações, o desprezo da *DIR* é justificado quando os erros resultantes são da mesma ordem que as incertezas ligadas aos modelos de *PER* e *CNR*. Um cuidado especial é necessário, contudo, nos casos de grandes contribuições de *DIR*, como por exemplo, reações com núcleos leves ou com núcleos alvos deformados permanentemente e reações induzidas por projéteis (partículas incidentes) fracamente ligados, tais como dêuterons ou partículas de  ${}^3\text{He}^{++}$ .

É difícil dar uma avaliação geral dos erros resultantes do desprezo de *DIR*, já que o efeito depende criticamente do caso em consideração e dos parâmetros usados por *PER*. Para um cálculo cuidadoso de uma secção de choque não conhecida, é importante investigar como os modelos, bem empregados, reproduzem dados experimentais para núcleos alvos vizinhos.

Apesar destas restrições, a discussão se concentra na aplicação dos modelos para os mecanismos *CNR* e *PER*. A distribuição angular dos produtos da reação é irrelevante para secções de choque e não será discutida.

#### **1.5.2.2.2 O Modelo de Evaporação do Núcleo Composto**

Tal modelo é baseado no conceito de Bohr do núcleo composto, como um estágio intermediário de uma reação nuclear. Assume-se que o núcleo composto (*CM*) está em equilíbrio térmico. Seu decaimento é governado somente pelo espaço de fase e penetrações das barreiras. As fórmulas de secção de choque

resultantes deste conceito dependem das leis de conservação que são levadas em consideração.

Os estados inicial e final de uma reação nuclear binária  $A(a,b)B$ , isto é, os canais, são caracterizados por índices  $\alpha, \beta, \dots$ , que especificam a fragmentação de sistemas de muitos nucleons em subsistemas leves e pesados  $(a,A), (b,B), \dots$  e pelos estados intrínsecos dos fragmentos. Para reações de interesse neste contexto, assume-se que elementos leves e o alvo estão em seus estados fundamentais:  $E_\alpha=0$  e  $e_\gamma=0$ , onde  $\alpha$  denota o canal de entrada e  $\gamma$  um canal arbitrário.

A conservação de energia, momento angular e paridade estão relacionados pelos canais de entrada e saída. A expressão mais simples de secção de choque resulta do conceito de *CN* e considera somente a conservação de energia, para estes dois canais. Há ainda a densidade de estados excitados do núcleo residual em torno da energia de excitação.

Para o cálculo das secções de choque dos produtos da ativação, assume-se que o decaimento gama é desprezível, comparado com a emissão de partículas. Portanto, a secção de choque dos produtos da ativação é dada pela soma das populações dos estados dos núcleos residuais, com energias de excitação até o limiar de emissão de partículas, já que somente aqueles estados irão ocupar o estado fundamental pelas cascatas de raios gama. A população de estados com energia de excitação maior que o limiar de emissão de partículas, dá origem à emissão de múltiplas partículas.

A aproximação de *Weisskopf-Ewing (WE)* pode ser estendida facilmente para reações com emissão de múltiplas partículas, supondo que elas são emitidas sequencialmente e que cada um dos núcleos intermediários pode ser tratado como um núcleo composto. Este formalismo oferece um método rápido e simples para estimar a contribuição de *CNR* para secções de choque dos produtos de ativação.

A versão refinada do modelo de evaporação *CN* também considera a conservação de momento angular e paridade. Cálculos baseados neste modelo serão conhecidos como cálculos *Hauser-Feshbach* (*HF*). Com várias somas de momento angular, códigos de computador, que realizam cálculos *HF*, utilizam mais tempo e armazenamento que aqueles para os cálculos *WE*. A competição entre os vários modos de decaimento do *CN* depende do momento angular. Este efeito, que é mais pronunciado perto do spin máximo, permitido para uma dada energia de excitação, não pode ser reproduzido pelo cálculo *WE*. A escolha entre a aproximação mais trabalhosa, *HF* e *WE*, que é mais rápida, mas menos precisa, depende do tipo de secção de choque a ser calculada e da precisão necessária. Para secções de choque de produção de estados isoméricos, um cálculo *HF* é indispensável.

#### **1.5.2.2.3 Modelos para Emissão de Pré-equilíbrio**

Com o aumento da energia incidente, as propriedades das partículas emitidas, significativamente, se desviam das previsões do modelo de evaporação do *CN*. Em vez de um espectro de evaporação puro e simetria por volta de  $90^\circ$ , observa-se um excesso de partículas de alta energia, que são emitidas preferencialmente na direção frontal. Estes efeitos são interpretados com sendo devido à emissão, antes do sistema composto (que inicialmente é formado de estados simples e se equilibra através de transições intranucleares) atingir o equilíbrio térmico característico para o *CN*. A secção de choque, para emissão de *PE*, consiste de duas contribuições, representando o decaimento do sistema composto antes e após o equilíbrio. Muitos cálculos de secção de choque consideram emissão de *PE*, somente para as primeiras partículas emitidas e tratam a emissão de múltiplas partículas como evaporação *CN*. De acordo com Blann e Vonach, este procedimento parece justificado para energias incidentes até 50MeV, aproximadamente. Reações de *PE* têm que ser consideradas para energias incidentes maiores que 8MeV.

Embora diversas teorias fundamentais de *PER* tenham sido propostas nos últimos anos, somente os dois modelos de *PE* mais populares, os modelos híbrido e de exciton, que são especialmente convenientes para cálculos de rotina, são discutidos aqui. Estes modelos são conceitualmente diferentes, mas quando parametrizados convenientemente, ambos reproduzem com sucesso dados experimentais.

### **1.5.2.2.3.1 O Modelo de Exciton**

Os estados do sistema composto são caracterizados somente pela energia de excitação, pelo número de partículas excitadas  $p$  e buracos excitados  $h$ . Partículas e buracos são definidos de acordo com o estado de referência das camadas fechadas e são chamados coletivamente de excitons. O número de exciton  $n$  é dado por  $n=p+h$ . Iniciando com uma configuração de uma única partícula-buraco,  $n_0=p_0+h_0$ , que depende do projétil (ou partícula incidente), o sistema se equilibra através de uma série de interações de dois corpos e emite partículas de todos os estágios intermediários. Interações de dois corpos podem mudar o número de excitons por quantidades de  $\Delta n=2,0,-2$ , correspondendo à criação, espalhamento e aniquilação de um par partícula-buraco. A soma de todos os números de excitons se estende até o valor mais provável  $\bar{n}$ , em equilíbrio, que em termos da densidade de estados de uma única partícula  $g$ , é dada, aproximadamente, por  $\bar{n} = \sqrt{2 \cdot g \cdot E}$ , sendo  $E$  a energia da partícula incidente. O modelo de exciton descrito não considera momento angular e paridade.

### **1.5.2.2.3.2 O Modelo Híbrido**

Este modelo foi proposto por Blann, em 1971, e combina aspectos do modelo de exciton simples e o modelo *Harp-Miller-Beine (HME)*, que realiza um tratamento dos processos de equilíbrio muito detalhados e, por isso, relativamente complicados. As expressões resultantes são simples e foram as primeiras a prever

as secções de choque absolutas sobre uma base anterior. O modelo híbrido está ligado somente com a emissão de nucleons.

### **1.5.3 Códigos de Computador**

Nos últimos anos, muitos códigos de computador foram desenvolvidos, para calcular secções de choque de reações nucleares, com base na combinação de modelos de equilíbrio e pré-equilíbrio. Aqui, são descritos rapidamente alguns programas representativos e discutidas suas aplicações, para o cálculo de secções de choque de produtos de ativação.

#### **1.5.3.1 Código ALICE**

Cálculos de funções de excitação com as várias versões do código *ALICE*, como *OVERLAID ALICE*, *ALICE/LIVERMORE 82*, *ALICE 85/300*, *ALICE 87*, *ALICE 95<sup>(69)</sup>*, têm sido feitas. Kurenkov et al <sup>(70)</sup>, em 1999, calcularam as funções de excitação de 52 reações nucleares induzidas por p, d,  $^3\text{He}^{++}$  e  $\alpha$ , em elementos de  $Z=51-55$  e  $Z=79-83$ . Foram utilizadas duas versões do código *ALICE*: *ALICE 87* e *ALICE IPPE 96*. Para a maioria das reações, foram comparados dados teóricos e experimentais obtidos, bem como, foi feita uma análise estatística. O código *ALICE IPPE 96*, a mais nova versão deste código, gerou uma descrição melhor dos dados experimentais até 100MeV de energia, especialmente para reações induzidas por prótons. Os autores concluíram que este novo código é uma ferramenta útil para prever funções de excitação desconhecidas, além de estimar as melhores condições para a produção de radionuclídeos e de nível de impurezas radionuclídicas.

O código *ALICE/LIVERMORE 82* é uma versão dos códigos *ALICE* usados, desenvolvidos por Blann e Bissplinghoff. O programa calcula, para qualquer partícula incidente e emitida, selecionadas entre nêutrons, prótons, partículas alfa e dêuterons (as escolhas reais são n; n, p; n, p,  $\alpha$ ; n, p,  $\alpha$ , d), as secções de choque de produtos de ativação, para todos os núcleos de um retângulo no plano

(Z,N), que podem ter 11 unidades de massa de largura e 9 unidades de carga de comprimento.

Um cálculo *WE* é realizado para a contribuição da evaporação *CM*. A emissão de nucleons de pré-equilíbrio é tratada tanto dentro da estrutura do modelo híbrido dependente da geometria, como do híbrido. É incluído um formalismo simples para múltiplas emissões de *PE*. Esta versão do código permite, opcionalmente, efeitos de isospin no decaimento pré-composto.

Como restrições ao uso do código *ALICE/LIVERMORE 82*, podem ser citadas as reações com probabilidade maior de emissão de partículas compostas (já que para estes, nenhuma contribuição no *PE* é considerada) e as limitações inerentes no método de cálculo de *WE*.

Para executar o código *ALICE/85*, o autor comenta que não há necessidade de estudar a física envolvida nas reações, havendo três linhas para entradas de dados: as massas e as cargas da partícula incidente e do alvo; um título qualquer e as energias incidentes. Este código foi escrito em linguagem FORTRAN <sup>(71)</sup>.

Para aplicações práticas, os códigos *ALICE* são os preferidos, uma vez que somente poucos dados de entrada são necessários e os tempos de execução do programa são moderados em comparação com *STAPRE*. Na verdade, *STAPRE* poderia produzir resultados mais acurados.

### **1.5.3.2 Códigos *STAPRE* e *GNASH***

Um exemplo extremo de restrição do número de núcleos produtos é o código conhecido como *STAPRE*. Este código calcula as secções de choque de produção para todos os núcleos que seguem um caminho da reação, para até seis partículas emitidas seqüencialmente (selecionadas entre n, p,  $\alpha$ , d), além das outras quantidades. Portanto, um caminho é definido por uma seqüência específica de partículas emitidas, por exemplo,  $\alpha p n n$ . Enquanto esta restrição é irrelevante para

reações do tipo  $(p,nn)$ , os problemas aumentam se o núcleo final de interesse é povoado por diversos caminhos, como por exemplo, para as reações  $(p,np)$ ,  $(p,pn)$  e  $(p,d)$ . Naquele caso, diversas execuções diferentes são necessárias para os resultados finais. Esta desvantagem é, no mínimo, superada pelo programa *GNASH*, de Young e Arthur. Neste código, as partículas emergentes podem ser escolhidas entre  $n$ ,  $p$ ,  $\alpha$ ,  $d$ ,  $t$ ,  ${}^3\text{He}^{++}$ . As secções de choque de produtos de ativação, para até dez núcleos finais diferentes, podem ser calculadas e as contribuições dos diferentes caminhos são obtidas em uma única execução do código. Por outro lado, o número máximo de núcleos finais é muito menor que para *ALICE/LIVERMORE 82*. A contribuição de *PE* em *STAPRE* e *GNASH* é calculada dentro da estrutura do modelo de exciton.

### **1.5.3.3 Código CCRMN**

O programa *CCRMN* (*Calculating Complex Reactions of a Medium-Heavy Nucleus*), de Cai, Shen e Yu <sup>(72)</sup>, 1997, foi desenvolvido para o cálculo teórico de todas as reações complexas de núcleos médios a pesados, com nêutrons ou partículas carregadas, na região de energia de 1 a 100MeV. As partículas de entrada e saída podem ser  $n$ ,  $p$ ,  $\alpha$ ,  $d$ ,  $t$ ,  ${}^3\text{He}^{++}$ . Os dados de saída incluem as secções de choque: total; de espalhamento elástico e sua distribuição angular; total da reação (não elástica); de captura radioativa; das reações  $(x,x')$  e  $(x, x_1, x_2)$  (onde  $x$ ,  $x'$ ,  $x_1$ , e  $x_2$  podem ser todas a seis partículas citadas acima) e das reações  $(x,2n)$ ,  $(x,3n)$ , ...,  $(x,10n)$ . Para haver uma comparação conveniente com os dados experimentais, ele também dá a soma das secções de choque de todas as reações que levam à produção do mesmo núcleo residual, isto é, as chamadas secções de choque de rendimento do isótopo. Neste programa, todos os dados nucleares são dados para elementos naturais, bem como para isótopos. As restrições ao programa são: uso de núcleos com número de massa de 28 a 208; o elemento do alvo deve consistir de somente um isótopo, ou, no máximo, seis, na qual a diferença entre o mais leve e o mais pesado deve ser menor ou igual a 10; e as energias incidentes devem ser de 1 a 100MeV, sendo 40 o número máximo de pontos em um cálculo. O tempo para executar o programa depende do número

mesmo cálculo para 4 pontos de energia (30, 40, 50 e 60MeV) leva aproximadamente 40,5min; e para um ponto de energia (80MeV), aproximadamente 1h. A linguagem do programa é o FORTRAN 77.

#### **1.5.3.4 Código TNG1**

Finalmente, há o programa *TNG1*, de Fu, que realiza um tratamento dependente do momento angular da contribuição de *PE*, na estrutura do modelo de exciton, contrário aos dois códigos *HF* mencionados anteriormente (*GNASH* e *STAPRE*). Este programa é de interesse especial de populações de estados isoméricos, nos casos de contribuição dominante de *PE*. O *TNG1* manuseia reações com até três partículas emitidas.

Todos os códigos mencionados neste item consideram a fissão, exceto o *TNG1*, podendo calcular secções de choque de produtos de ativação, nos casos onde a competição de fissão é relevante.

### **1.6 Demanda por Fontes de $^{57}\text{Co}$ e $^{109}\text{Cd}$**

Clayton <sup>(73)</sup>, em 1990, fez alguns comentários sobre o desenvolvimento de radiação e aplicação de medidas com radioisótopos na Indústria. Dentre elas, está a mudança na procura por fontes radioativas seladas. A variação na demanda por  $^{57}\text{Co}$ , como uma Fonte Mössbauer, indicava um aumento na procura por equipamento Mössbauer em 1968 (em valor normalizado, 100) até 1984 (400), sem evidência de qualquer mudança significativa desde então (em 1987, com 379), como pode ser visto na Tabela 1.3.

**Tabela 1.3: Variação no fornecimento de Fonte Mössbauer de  $^{57}\text{Co}$ , normalizada para o ano de 1968.**

<b>Ano</b>	<b>Nº relativo fornecido</b>
1968	100
1969	142
1970	154
1971	157
1972	197
1973	212
1974	205
1975	285
1976	243
1977	298
1978	288
1979	289
1980	315
1981	325
1982	348
1983	362
1984	400
1985	387
1986	365
1987	379

Fonte: Amersham International plc.

Em vista da meia-vida relativamente longa, comparada com o período coberto, e considerando que os centros de aplicação tendem a ser grandes laboratórios de pesquisa e universidades, isto era aproximadamente o esperado. O aumento do uso de equipamentos de Fluorescência de Raios-X de Energia Dispersiva (*EDXRF*) foi refletido no aumento do fornecimento de fontes de  $^{109}\text{Cd}$ , de 1975 até o ponto inicial para liberação dos dados, em 1987 (923). Um pico de procura foi atingido em 1982, mas é difícil relatar estes dados para qualquer área particular de tecnologia, como pode ser visto na Tabela 1.4.

**Tabela 1.4: Variação no fornecimento de fonte de  $^{109}\text{Cd}$  para uso em *EDXRF*, normalizada para o ano de 1975.**

<b>Ano</b>	<b>Nº relativo fornecido</b>
1975	100
1976	98
1977	92
1978	144
1979	254
1980	595
1981	748
1982	1101
1983	757
1984	802
1985	838
1986	872
1987	923

Fonte: Amersham International plc.

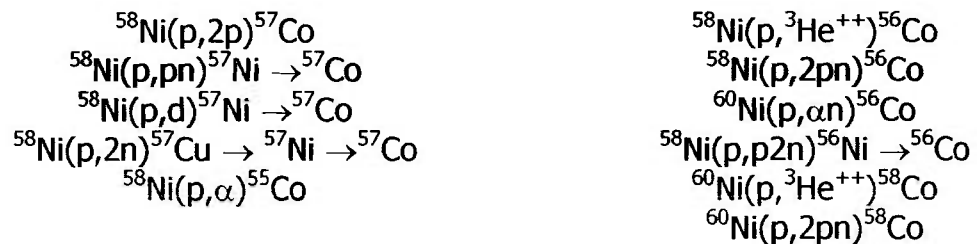
O interesse por fontes radioativas tem crescido muito nos últimos anos, no Brasil. O  $^{57}\text{Co}$  é uma fonte padrão muito importante e não é produzida rotineiramente no Brasil. O seu uso no controle de qualidade rotineiro de câmaras gama, em Medicina Nuclear, é essencial e visando atender este mercado potencial, o *IPEN* tem demonstrado grande interesse na produção e distribuição destas fontes. A procura por fontes de  $^{109}\text{Cd}$ , também não produzido rotineiramente no Brasil, não tem sido muito grande, mas a expectativa é que aumente, para uso como fonte de calibração de detectores e em estudos do meio ambiente, pela técnica de *EDXRF*<sup>(3, 74)</sup>.

## CAPÍTULO 2

### OBJETIVOS

O objetivo principal do trabalho foi o estudo completo de todos os parâmetros envolvidos na produção de  $^{57}\text{Co}$ , através da irradiação de Ni com feixe de prótons do *Cíclotron CV-28* do *IPEN-CNEN/SP*. Os estudos realizados até hoje limitaram-se à determinação, apenas, das funções de excitação das reações de Ni com feixe de prótons <sup>(54, 55, 57, 58)</sup>, à produção de  $^{57}\text{Co}$  <sup>(56, 60)</sup> ou somente à separação química  $^{57}\text{Co-Ni}$  <sup>(59)</sup>. Neste trabalho, todos estes aspectos foram estudados, além de outros que serão relatados adiante.

O método mais adequado para a produção de  $^{57}\text{Co}$ , com o *Cíclotron CV-28* do *IPEN*, é a irradiação de Ni com feixe de prótons de 24MeV, porque apresenta o maior rendimento de produção e pelo fato que este, atualmente, só opera com feixe de prótons. Por este método, também são produzidas impurezas radionuclídicas, como  $^{56}\text{Co}$  ( $t_{1/2}=78,76\text{d}$ ) e  $^{58}\text{Co}$  ( $t_{1/2}=70,78\text{d}$ ), que necessitam de um tempo de decaimento de 60dias, no mínimo, para atingir o nível de impureza satisfatório (<1%). Este método já havia sido utilizado no *IEN-CNEN/RJ* <sup>(60)</sup>, mas era necessário estabelecer as condições ideais de irradiação e compreender as várias reações envolvidas. Em primeiro lugar, foram medidas as funções de excitação das várias reações nucleares envolvidas, com ênfase para as seguintes:



Das funções de excitação encontradas em literatura, visando a produção de  $^{57}\text{Co}$ , as mais antigas <sup>(54, 55)</sup> usaram detectores não adequados (NaI, G-M, etc.) comparados com os disponíveis hoje em dia, além de apresentarem incertezas maiores nos dados de decaimento dos núclídeos estudados, enquanto que as mais

recentes (57, 58, 62, 63) limitaram-se à medida do precursor do  $^{57}\text{Co}$ , o  $^{57}\text{Ni}$ . Em virtude disso, pensou-se na necessidade de se medir novamente essas funções de excitação e, a partir delas, determinar as curvas de rendimento e a melhor faixa de energia para maximizar a produção de  $^{57}\text{Co}$  e minimizar a das impurezas,  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$ . Estas funções experimentais foram comparadas com as disponíveis em literatura e aquelas geradas em códigos como o *ALICE*.

Foram medidos e comparados os rendimentos de produção de  $^{57}\text{Co}$  e das impurezas, com os outros métodos de produção vistos em literatura.

Visando a produção de  $^{57}\text{Co}$ , com o menor nível de impurezas, foi desenvolvido um método inédito no país, quando o  $^{57}\text{Co}$  é produzido através da irradiação de Ni com prótons, usando apenas a reação indireta, através do decaimento de  $^{57}\text{Ni}$  ( $t_{1/2}=36\text{h}$ ). Todos os trabalhos apresentados em literatura relatam a produção de  $^{57}\text{Co}$ , através da somatória da reação direta e da indireta, pelo decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ , o que contribui para o aumento do nível de impurezas radionuclídicas.

Foi proposta uma separação química para liberar qualquer Co produzido diretamente. O  $^{57}\text{Ni}$  decai para o  $^{57}\text{Co}$ , enquanto que o  $^{56}\text{Ni}$  ( $t_{1/2}=6,1\text{d}$ ) decai pouco para o  $^{56}\text{Co}$ . O  $^{58}\text{Co}$  não pode ser produzido indiretamente. Através da diferença das meias-vidas do  $^{57}\text{Ni}$  e  $^{56}\text{Ni}$ , pode-se isolar o  $^{57}\text{Co}$  com o menor nível de impurezas.

Outro objetivo deste trabalho, inédito em literatura, foi usar um alvo composto de Ni e Ag, para a produção simultânea de  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$ . Desta maneira, otimiza-se a operação do Cíclotron, minimizando-se o seu desgaste. Isto é possível, porque as reações para a produção de  $^{57}\text{Co}$  ocorrem com prótons de energia entre 24 e 14MeV, e a reação  $^{109}\text{Ag}(p,n)^{109}\text{Cd}$  é favorecida com energias menores que 14MeV (26). Além de otimizar a operação do Cíclotron, o alvo composto é vantajoso economicamente, porque diminui o tempo de irradiação para preparação das fontes. Foi estudada, a separação química deste alvo

composto e dos produtos. O método de separação química foi a Troca Iônica, em virtude das diferenças de comportamento dos íons de Ni, Co, Ag e Cd , em resinas deste tipo. A facilidade de irradiação e otimização do tempo de operação do Cíclotron superaram muito a desvantagem de uma separação química mais complexa destes traçadores, além de possibilitar a preparação de fontes mistas de  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$ . Para os detectores de Ge, uma fonte como esta será ideal para medir a eficiência na região de máximo, entre 80 e 140keV.

## **CAPÍTULO 3**

### **MATERIAIS E MÉTODOS**

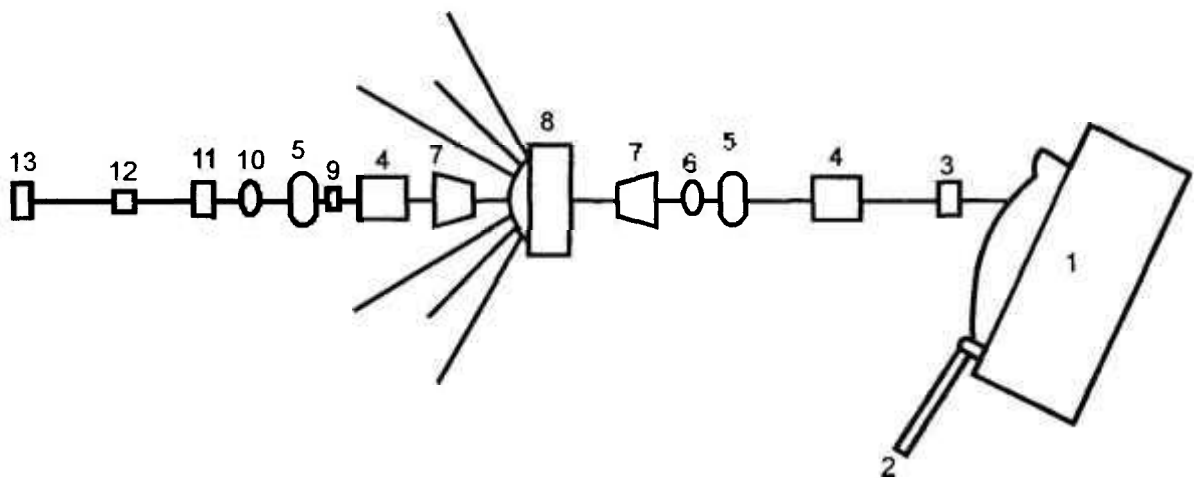
#### **3.1 Aceleradores: *Cíclotron CV-28*<sup>(11, 14)</sup> e *Cyclone 30*<sup>(75)</sup>**

Todo o trabalho experimental foi desenvolvido utilizando-se o Cíclotron *CV-28* do *IPEN-CNEN/SP*, para a realização das irradiações dos alvos. Este modelo foi fabricado pela *The Cyclotron Corporation (TCC)*, uma empresa Americana, adquirido em 1976 e, atualmente, pertence ao *Laboratório de Cíclotrons* (neste prédio, também está instalado o novo modelo comprado pelo Instituto, o *Cyclone 30*, da empresa Belga *Ion Beam Applications – IBA*). O modelo *CV-28* foi utilizado para a realização de pesquisas em geral e para a produção de radioisótopos empregados em Diagnóstico na Medicina Nuclear, desde 1982 até 1999. Desde então, está sendo utilizado somente para pesquisas, já que foi substituído pelo *Cyclone 30*.

O *CV-28* é um acelerador de partículas carregadas, isócrono (os íons circulam em frequência constante), compacto, de energia variável, definido por três setores radiais, incorporados às peças polares e possui quatro bobinas auxiliares para ajuste do perfil radial do campo, o que permite acelerar os quatro tipos de partículas: prótons, dêuterons,  $^3\text{He}^{++}$  e partículas alfa. Este acelerador pesa 23ton e está localizado em uma área de 75m<sup>2</sup>, chamada de caverna, a qual é formada por paredes de concreto, que também servem de blindagem de radiação. Nesta área, estão instalados o Cíclotron propriamente dito e o sistema de transporte de feixe (com saída para sete linhas de feixe, mas somente duas são usadas), que possui um sistema de porta-alvo no final de cada linha, no qual os alvos são irradiados com feixe externo (fora da câmara de vácuo do cíclotron). Consome aproximadamente 500kVA de potência elétrica e possui, ainda, os seguintes periféricos:

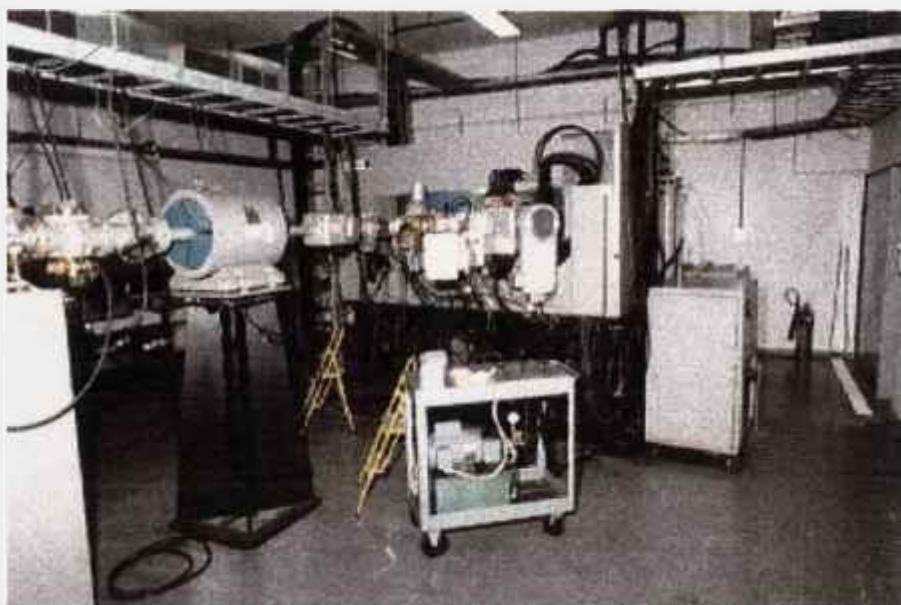
- Sistema de fontes de alimentação das bobinas de campo, fonte de íons, deflexão, centralização, sistema de radiofrequência e de deflexão magnética;
- Sistema de refrigeração com água deionizada;
- Sistema de ar comprimido;
- Sistema de ar condicionado;
- Sistema de vácuo.

As Figuras 3.1 e 3.2 mostram o Cíclotron *CV-28* e o Sistema de Transporte do Feixe.



- 1- Cíclotron *CV-28*
- 2- Sistema de Alvo Interno
- 3- Ímã Centralizador *x-y* (*x-y Steering Magnet*)
- 4- Lente Dupla Quadrupolar
- 5- Monitor do Perfil do Feixe
- 6- Colimador de Feixe (*Beam Shutter Colimator*)
- 7- Sistema de Vácuo da Linha de Feixe
- 8- Ímã Distribuidor (*Switching Magnet*)
- 9- Sistema de Varredura do feixe
- 10- Colimador de 4 setores
- 11- *Beam Gate*
- 12- *Beam Stopper*
- 13- Sistema de Alvo Externo (linha de feixe 4)

**Figura 3.1: Diagrama esquemático do Cíclotron *CV-28* e Sistema de Transporte do Feixe.**



**Figura 3.2:** Ciclotron *CV-28* e Sistema de Transporte do Feixe instalados na caverna.

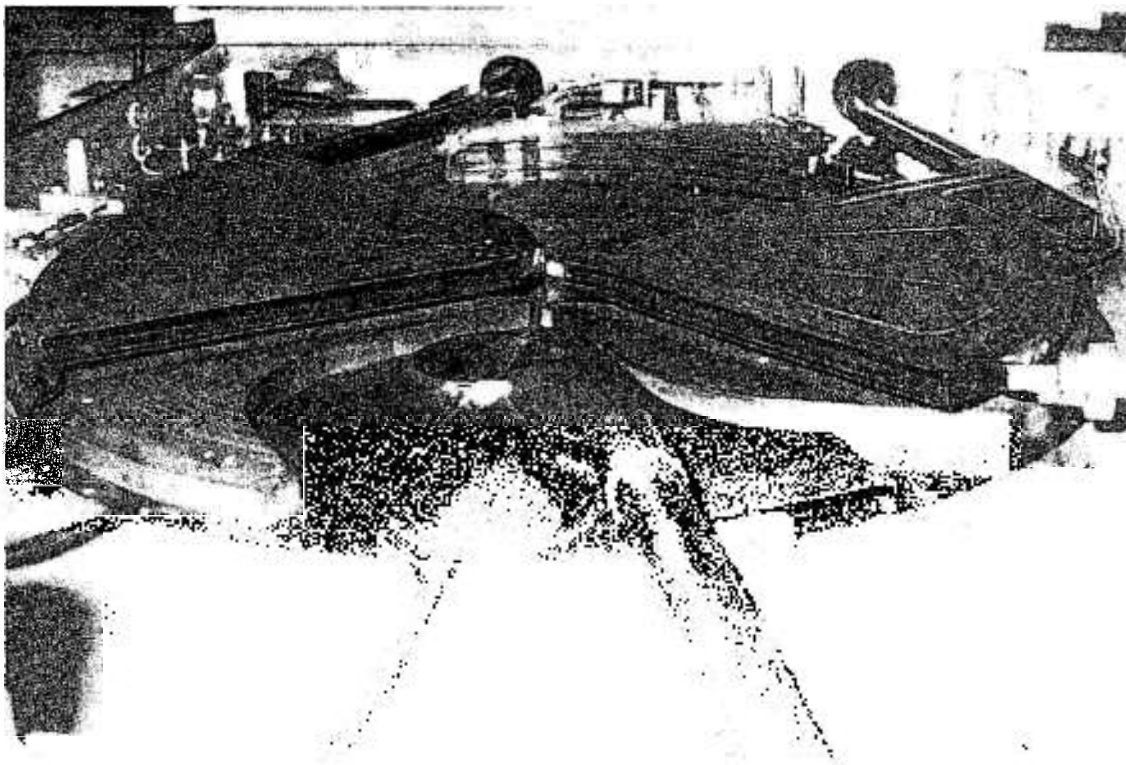
A Tabela 3.1 mostra as principais características nominais do Ciclotron *CV-28* do IPEN-CNEN/SP.

**Tabela 3.1 - Características nominais do Ciclotron *CV-28* do IPEN-CNEN/SP.**

Partícula	Energia (MeV)	Corrente Externa ( $\mu\text{A}$ ) Máxima para		Corrente Interna Máxima ( $\mu\text{A}$ )
		Energia Mínima	Energia Máxima	
p	2-24	40	60	200
d	4-14	50	100	300
$^3\text{He}^{++}$	6-36	5	50	135
$^4\text{He}^{++}$	8-28	6	40	90

Tolerância:  $\pm 0,5\text{MeV}$  em  $E_{\text{min}}$  e  $\pm 1\text{MeV}$  em  $E_{\text{máx}}$ ;  
Resolução: 0,5% ou 50keV (aquele que for maior)

Na Figura 3.3 podem ser vistos a câmara de vácuo (principal) do Ciclotron *CV-28* (região central de criação e aceleração dos íons), a ponta de prova, os "dês" e o sistema de extração do feixe.



**Figura 3.3 - Câmara de vácuo do Cíclotron CV-28, mostrando a ponta de prova, os "dês" e o sistema de extração do feixe.**

A câmara de vácuo do Cíclotron possui diâmetro polar de 965mm e raio máximo de extração de 420mm. A intensidade do campo magnético médio é de 1,74T. O sistema de radiofrequência opera com frequência fixa no intervalo de 6,0 a 25,5MHz, dependendo da energia e da partícula acelerada.

O Cíclotron *CV-28* é composto de um eletroimã, que possui três regiões de campo forte (montes) e três regiões de campo fraco (vales), simetricamente dispostos em azimute, para fornecer focalização, por setor, do feixe de íons durante a aceleração. Os montes são feitos de ferro e em forma de cunha, com cerca de 60° de abertura. O gradiente radial do campo magnético é controlado por bobinas de ajuste, que permitem operação com cada partícula, em todos os intervalos de energia. A armadura do imã consiste de dois pólos e duas peças

laterais, ajustadas com precisão, para manter uniformidade e alinhamento do campo magnético entre os pólos. Bobinas harmônicas (*harmonic coils*) controlam o primeiro harmônico do campo, para melhorar a eficiência de extração do feixe. Os pólos do ímã se fecham em duas partes, formando uma câmara de vácuo, que permite elevação da parte superior, dando acesso às regiões de criação e aceleração dos íons para manutenção.

A câmara de vácuo tem dois sistemas de alto vácuo, compostos por duas bombas de difusão, as quais atingem um vácuo final de  $1,33 \times 10^{-7}$  mbar, que é suficiente para ionização apenas do gás injetado, o qual é posteriormente acelerado, gerando o feixe de íons. Isto também garante o isolamento da alta tensão gerada no sistema de radiofrequência e no sistema de extração.

Os íons são gerados por uma fonte de íons (*ion source*) do tipo *PIG* (*Penning Ion Gauge*), montada na posição radial e localizada no centro da câmara de aceleração do Cíclotron. Ela utiliza catodos aquecidos pelos próprios íons (catodos quentes), eliminando, assim, a necessidade de um filamento. Conta ainda com a possibilidade de ajuste tridimensional, para eficiência na geração dos íons. Estes são acelerados por dois eletrodos em forma de "dês", de 90°, que estão conectados a um conjunto indutor localizado no sistema de radiofrequência, que funciona como um circuito ressonante de meia-onda.

O feixe interno pode ser monitorado e otimizado em qualquer raio de aceleração, através de uma ponta de prova (*probe*), dispositivo que é remotamente controlado, possibilitando, assim, medir a posição e a intensidade do feixe. Este dispositivo pode ser completamente retirado, permitindo que o feixe passe por um canal de extração.

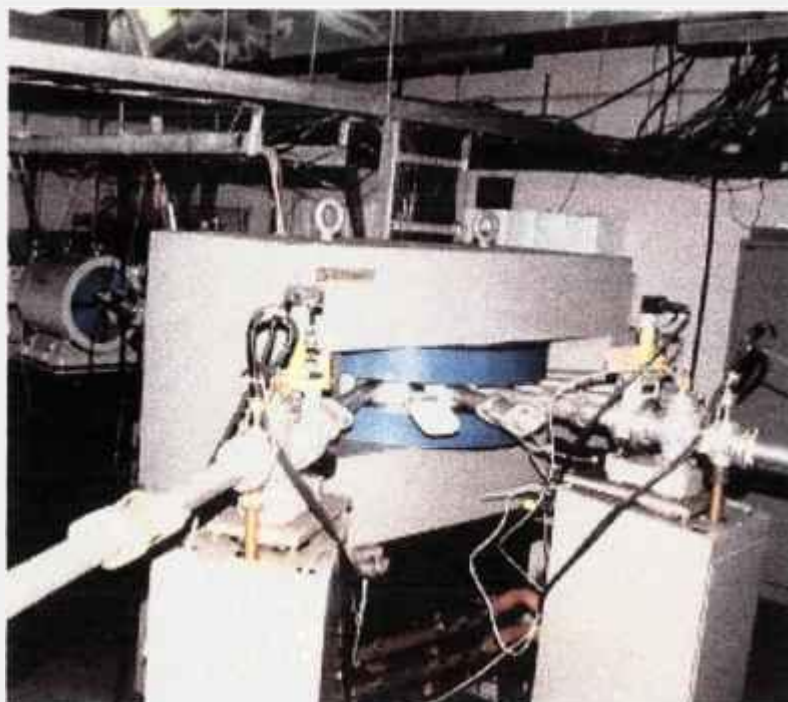
Em um Cíclotron clássico, os prótons são extraídos por um canal eletrostático (defletor), que é formado por um *septum* (lâmina), feito com uma chapa de cobre muito fina, aterrada (0,3 a 0,7mm) e um eletrodo negativo (barra), paralelo, localizado a uma distância de 3mm. Isto permite a produção de um alto campo

eletrostático (150kV/cm), necessário para extrair a última órbita das partículas (normalmente de largura 1mm e separadas da órbita precedente por 1mm). Mesmo com uso de técnicas de extração ressonantes, as últimas órbitas do feixe não são separadas e a folha de cobre intercepta uma parte significativa de feixe, apesar de sua espessura reduzida. Em virtude da variedade de feixe que pode ser extraído com o modelo *CV-28*, o canal eletrostático foi projetado para permitir um ajuste remoto entre a barra defletora e o *septum*.

Após a deflexão do feixe de sua órbita máxima, ele passa por um canal magnético, sendo, então, enviado para o sistema de transporte de feixe. Este consiste, inicialmente, de uma linha de feixe principal, com um sistema de bobinas de centralização (*steering*) e focalização (quadrupolares). Um imã distribuidor (*switching magnet*), refrigerado à água e situado a cerca de 4m à frente, desvia o feixe para cada uma das sete linhas de feixe externo, a  $0^\circ$ ,  $\pm 20^\circ$ ,  $\pm 40^\circ$ ,  $\pm 60^\circ$ , até atingir o alvo numa destas posições.

Em cada uma destas linhas também estão instalados um sistema de bobinas quadrupolares, para focalização e um sistema de varredura, que permite uma maior uniformidade do feixe. O sistema de feixe externo instalado atualmente neste Cíclotron, é composto de uma linha de feixe principal e duas linhas secundárias, nas quais têm sido irradiados alvos sólidos e líquidos. Estão sendo realizados estudos e trabalhos para a irradiação de alvos gasosos também. Atualmente são acelerados prótons com energia de 24MeV e corrente de feixe externo máxima de  $30\mu\text{A}$  no alvo.

A Figura 3.4 mostra a linha de feixe principal, distribuidor magnético e linhas de feixe secundárias.



**Figura 3.4:** Linha de feixe principal, distribuidor magnético e linhas de feixe secundárias do Cíclotron CV-28.

O *Cyclone 30* é completamente controlado por computador e projetado para a produção de radioisótopos em escala industrial. A sua principal aplicação é a produção de radioisótopos ( $^{18}\text{F}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{67}\text{Ga}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{123}\text{I}$ ,  $^{201}\text{Tl}$  e outros) para uso em Diagnósticos por imagem, como *PET* e *SPET*, além de poder ser usado, também, em pesquisa fundamental e aplicada, na Agricultura.

Este Cíclotron é capaz de acelerar íons  $\text{H}^-$  de 15 a 30MeV, com uma corrente de feixe externo de até  $350\mu\text{A}$ , permitindo, ainda, a produção simultânea de dois radioisótopos diferentes em energia e corrente. A confiabilidade e a simplicidade são maiores, diminuindo os riscos de falhas o máximo possível, como por exemplo, com o uso de campo magnético fixo e frequência fixa (não requer uma segunda bobina), reduzindo a necessidade de manutenção.

A redução da taxa de exposição dos trabalhadores à radiação, acelerando íons negativos ( $\text{H}^-$ ), usando o sistema de extração *Stripping*, permite uma eficiência muito alta e perdas mínimas de feixe na máquina (menor que 5%),

garantindo uma ativação mínima do equipamento. Quando íons negativos de Hidrogênio são acelerados, uma folha fina (no caso deste Cíclotron é de Carbono) é colocada dentro da órbita, para extrair a partícula. Os íons  $H^-$  perdem elétrons na folha e são transformados em prótons. Como resultado, a curvatura na trajetória das partículas aceleradas em um campo magnético se reverte e os íons  $H^+$  escapam do acelerador. A extração das partículas dos Cíclotrons que usam esta troca de carga de  $H^-$  para  $H^+$  tem diversas vantagens, como: eficiência alta de extração (95 a 100%, pois não há o defletor eletrostático, que desvia o feixe de sua trajetória, e no qual ocorrem perdas e colisões de partículas); a possibilidade de variar suavemente a energia dos feixes extraídos, ajudada pelo movimento do alvo ao longo do raio do Cíclotron e a possibilidade de extração simultânea de feixes com diferentes energias, por causa da sobreposição parcial dos feixes pelos alvos em órbitas diferentes do Cíclotron. Uma séria desvantagem da aceleração de íons  $H^-$  em Cíclotrons, é a perda de íons nos campos magnéticos. Por este motivo, a intensidade destes campos, neste tipo de acelerador, é limitada.

### ***3.2 Escolha das Reações de Interesse***

De acordo com a revisão bibliográfica, a produção de  $^{109}\text{Cd}$  pode ser realizada em Cíclotrons e em Reatores Nucleares. No último caso, é necessária a utilização de alvos altamente enriquecidos, altos fluxos de nêutrons e irradiações de diversos dias para se obter atividades específicas altas. No primeiro caso, é possível a irradiação de alvos naturais e a obtenção de atividades específicas maiores. Verifica-se que o melhor método de produção de  $^{109}\text{Cd}$ , no Cíclotron *CV-28* do *IPEN*, é a irradiação de  $^{\text{nat}}\text{Ag}$  com feixes de prótons.

Como verifica-se na revisão bibliográfica, a produção de  $^{57}\text{Co}$  pode ser feita em Cíclotrons, através de várias reações nucleares e, em menor escala, em Reatores Nucleares. Nas irradiações em Cíclotrons, é possível empregar as 4 partículas carregadas, para produzir este radioisótopo. O método que apresenta o menor nível de impureza radionuclídica, para esta produção, é a irradiação de Co

com prótons, porém necessita-se, no melhor caso, de 40MeV de energia. Contudo, o Cíclotron *CV-28* do *IPEN* acelera somente prótons, atualmente, e com energia máxima (nominal) de 24MeV. Assim, o método mais adequado para a produção deste radioisótopo, neste Cíclotron, é a irradiação de Ni com este tipo de feixe.

Os valores de  $Q$  (MeV) e  $E_{lim}$  (MeV) das reações nucleares induzidas por prótons em  $^{nat}\text{Ni}$  e  $^{nat}\text{Ag}$ , passíveis de ocorrência no Cíclotron *CV-28* do IPEN-CNEN/SP, são dados nas Tabelas 3.2 e 3.3. As expressões utilizadas foram:

$$Q = 931 \cdot [m_p + m_A - (m_S + m_P)] \quad (3.1)$$

$$E_{lim} = Q \cdot \left( \frac{m_p + m_A}{m_A} \right) \quad (3.2)$$

Onde <sup>(76)</sup>:

$m_p$  = massa de repouso do próton (uma = unidade de massa atômica);

$m_P$  = massa do nuclídeo produto (uma);

$m_A$  = massa do núcleo alvo (uma);

$m_S$  = soma das massas das partículas contribuintes em cada reação nuclear (uma).

**Tabela 3.2: Valores de  $Q$  (MeV) e  $E_{lim}$  (MeV) das reações nucleares induzidas por prótons, em alvos de  $^{nat}\text{Ag}$ , passíveis de ocorrência no Cíclotron *CV-28* do *IPEN*.**

Alvo	Reação Nuclear	Produto	Meia-vida	$Q$ (MeV)	$E_{lim}$ (MeV)
$^{107}\text{Ag}$ (51,83%)	(p,n)	$^{107}\text{Cd}$	6,5h	-2,19	2,22
	(p,3n)	$^{105}\text{Cd}$	55,5min	-18,24	18,42
	(p,pn)	$^{106}\text{Ag}$	8,3d	-9,54	9,63
	(p,p2n)	$^{105}\text{Ag}$	41,29d	-17,46	17,63
	(p,d)	$^{106}\text{Ag}$	8,3d	-7,32	7,39
	(p,t)	$^{105}\text{Ag}$	41,29d	-8,98	9,07
	(p,nd)	$^{105}\text{Ag}$	41,29d	-15,24	15,38
	(p,nt)	$^{104}\text{Ag}$	69,2min	-18,98	19,15
$^{109}\text{Ag}$ (48,17%)	(p,n)	$^{109}\text{Cd}$	462,9d	-0,96	0,98
	(p,3n)	$^{107}\text{Cd}$	6,5h	-18,65	18,94
	(p,nt)	$^{106}\text{Ag}$	8,3d	-17,51	17,79

**Tabela 3.3: Valores de  $Q$  (MeV) e  $E_{lim}$  (MeV) das reações nucleares induzidas por prótons, em alvos de  $^{nat}\text{Ni}$ , passíveis de ocorrência no Cíclotron CV-28 do IPEN.**

Alvo	Reação Nuclear	Produto	Meia-vida	$Q$ (MeV)	$E_{lim}$ (MeV)	
<b><math>^{58}\text{Ni}</math> (68,27%)</b>	(p,2p)	$^{57}\text{Co}$	271,3d	-8,17	8,31	
	(p,2n)	$^{57}\text{Cu} \rightarrow ^{57}\text{Ni}$	0,18s/36h	-21,45	21,83	
	(p,pn)	$^{57}\text{Ni}$	36h	-12,18	12,40	
	(p,d)	$^{57}\text{Ni}$	36h	-9,96	10,13	
	(p, $\alpha$ )	$^{55}\text{Co}$	17,54h	-1,34	1,36	
	(p, $n^3\text{He}$ )	$^{55}\text{Co}$	17,54h	-21,91	22,29	
	(p,pt)	$^{55}\text{Co}$	17,54h	-21,14	21,51	
	(p,2pn)	$^{56}\text{Co}$	78,76d	-19,57	19,91	
	(p, $^3\text{He}$ )	$^{56}\text{Co}$	78,76d	-11,85	12,06	
	(p,pd)	$^{56}\text{Co}$	78,76d	-17,34	17,65	
	(p,p2n)	$^{56}\text{Ni}$	6,1d	-22,46	22,85	
	(p,t)	$^{56}\text{Ni}$	6,1d	-13,98	14,22	
	(p,nd)	$^{56}\text{Ni}$	6,1d	-20,23	20,59	
	<b><math>^{60}\text{Ni}</math> (26,10%)</b>	(p,2n $\alpha$ )	$^{55}\text{Co}$	17,54h	-21,16	21,52
(p, $\alpha$ )		$^{57}\text{Co}$	271,3d	-0,27	0,27	
(p, $n^3\text{He}$ )		$^{57}\text{Co}$	271,3d	-20,83	21,19	
(p,pt)		$^{57}\text{Co}$	271,3d	-20,07	20,41	
(p,2pn)		$^{58}\text{Co}$	70,78d	-19,98	20,32	
(p, $^3\text{He}$ )		$^{58}\text{Co}$	70,78d	-12,27	12,47	
(p,pd)		$^{58}\text{Co}$	70,78d	-17,80	18,06	
(p, $\alpha$ n)		$^{56}\text{Co}$	78,76d	-11,66	11,86	
<b><math>^{61}\text{Ni}</math> (1,13%)</b>		(p, $n^3\text{He}$ )	$^{58}\text{Co}$	70,78d	-20,09	20,42
		(p,pt)	$^{58}\text{Co}$	70,78d	-19,32	19,64
	(p, $\alpha$ )	$^{58}\text{Co}$	70,78d	0,48	0	
	(p,2d)	$^{58}\text{Co}$	70,78d	-23,35	23,74	
	(p,2n $\alpha$ )	$^{56}\text{Co}$	78,76d	-18,93	19,24	
	(p, $\alpha$ n)	$^{57}\text{Co}$	271,3d	-8,09	8,22	
<b><math>^{62}\text{Ni}</math> (3,59%)</b>	(p, $\alpha$ n)	$^{58}\text{Co}$	70,78d	-10,10	10,27	
	(p, $\alpha$ 2n)	$^{57}\text{Co}$	271,3d	-18,11	18,41	
<b><math>^{64}\text{Ni}</math> (0,91%)</b>	(p, $\alpha$ n)	$^{60}\text{Co}$	5,27a	-8,65	8,79	
	(p, $\alpha$ )	$^{61}\text{Co}$	1,65h	0,7	0	
	(p,n)	$^{64}\text{Cu}$	12,7h	-2,46	2,50	
	(p, $d\alpha$ )	$^{59}\text{Fe}$	45,1d	-14,69	14,93	

A energia mínima necessária para uma partícula sobrepor a Barreira Coulombiana de um núcleo é chamada de Energia da Barreira Coulombiana. Este valor é de: 6,48MeV, para a reação  $^{58}\text{Ni}+p$ ; 7,12MeV, para  $^{60}\text{Ni}+p$ ; 9,15MeV, para  $^{107}\text{Ag}+p$  e 9,10MeV, para  $^{109}\text{Ag}+p$ .

### 3.3 Medidas de Radioatividade e Absorção Atômica

#### 3.3.1 Espectrometria Gama

A atividade de cada radionuclídeo identificado nas amostras irradiadas foi obtida a partir das transições gama marcadas em negrito na Tabela 3.4 <sup>(1)</sup>.

Dois detectores de radiação gama de Germânio (Ge) foram utilizados para medir as atividades das amostras irradiadas. O primeiro deles, um detector de Ge(HP), da *EG&G Ortec*, modelo *GEM-10175-P*, com resolução (FWHM) de 1,67keV, em 1332keV, relativa ao <sup>60</sup>Co. O segundo, um detector de Ge(HP), da *Canberra*, modelo *GX1518*, com 1,8keV de resolução na mesma energia. O primeiro detector foi acoplado a um sistema de aquisição e tratamento de dados, os quais foram processados, posteriormente, via microcomputador com o programa *Maestro II MCA (EG&G Ortec)*. O segundo, foi acoplado do mesmo modo que o anterior, porém empregando o programa *Genie PC*, para realizar o processamento dos dados, utilizando-se um microcomputador. Os espectros gama puderam ser gravados e os dados impressos.

A atividade  $A$  (Bq) de cada radionuclídeo identificado foi calculada usando-se as equações:

$$A = \frac{S}{I_{\gamma} \cdot \xi} \quad (3.3)$$

$$S = \frac{Net}{LT} \quad (3.4)$$

Onde:

$S$  = Área do pico de interesse (cps=contagens por segundo);

$I_{\gamma}$  = Intensidade relativa da energia  $E_{\gamma}$  de interesse;

$\xi$  = Eficiência do detector na energia  $E_{\gamma}$  de interesse;

$LT$  = Tempo de contagem (s);

$Net$  = Área líquida (contagens).

Os valores de eficiência  $\xi$  do detector foram extrapolados das curvas de calibração  $\ln\xi$  vs  $\ln E_\gamma$ , obtidas para as diferentes geometrias de detecção (prateleiras).

**Tabela 3.4: Propriedades físicas de decaimento de todos os radionuclídeos identificados nas amostras irradiadas.**

Radionuclídeo	Meia-vida	Energia $\gamma$ (keV)	$I_\gamma$ (%)
<sup>55</sup> Co	<b>(17,54±0,3)h</b>	477,2	20,2
		<b>931,1</b>	<b>75</b>
		1408,5	16,9
<sup>56</sup> Co	<b>(78,76±0,3)d</b>	<b>846,77</b>	<b>99,9</b>
		1037,8	14,1
		1238,28	66,1
		1771,4	15,5
<sup>57</sup> Co	<b>(271,3±0,9)d</b>	2598,6	16,8
		14,41	9,5
		<b>122,07</b>	<b>85,6</b>
<sup>58</sup> Co	<b>(70,78±0,3)d</b>	136,43	10,6
		<b>810,77</b>	<b>99,4</b>
		863,6	0,69
<sup>56</sup> Ni	<b>(6,1±0,1)d</b>	1674,8	0,53
		<b>158,38</b>	<b>98,8</b>
		749,95	49,5
		811,85	86
		269,5	36,5
<sup>57</sup> Ni	<b>(36±0,6)h</b>	1561,8	14
		480,4	36,5
		127,16	16,7
<sup>62</sup> Zn	<b>(9,257±0,13)h</b>	<b>1377,63</b>	<b>81,7</b>
		1919,52	12,3
		<b>596,63</b>	<b>25,70</b>
<sup>65</sup> Zn	<b>(244,26±0,26)d</b>	40,8	25,2
		548,4	15,2
		507,6	14,6
<sup>107</sup> Cd	<b>(6,5±0,2)h</b>	<b>1115,55</b>	<b>50,75</b>
		93,12	4,79
<sup>109</sup> Cd	<b>(462,9±0,4)d</b>	<b>22,1</b>	<b>89</b>
		25	18,8
		<b>88,03</b>	<b>3,61</b>
<sup>106m</sup> Ag	<b>(8,46±0,4)d</b>	22,1	84,2
		25	17,7
		450,6	27,6
		406,2	13,5
		616,2	21,7
		<b>717,3</b>	<b>29,1</b>
748,4	20,7		
		1045,8	29,7

### 3.3.1.1 Calibração dos Detectores de Ge(HP)

Anteriormente à realização das medidas, os detectores foram calibrados em energia e eficiência. Para calibração em energia, foram usadas fontes padrões calibradas de  $^{60}\text{Co}$  e  $^{137}\text{Cs}$ . Na calibração em eficiência, foram contadas fontes padrões calibradas de  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{60}\text{Co}$  e  $^{241}\text{Am}$ , para o primeiro e  $^{152}\text{Eu}$  e  $^{133}\text{Ba}$ , para o segundo. Neste último caso, as características das fontes eram:  $^{152}\text{Eu}$  ( $t_{1/2}=13,33$ anos), com atividade de  $11,21\mu\text{Ci}$  ( $8,7\% - 3\sigma$ ), em 01/11/1981, cedida pelo *IFUSP (Instituto de Física da Universidade de São Paulo)* e  $^{133}\text{Ba}$  ( $t_{1/2}=10,52$ anos), com  $0,409\mu\text{Ci}$ , em 30/11/1989, pertencente ao *IPEN*. As contagens foram realizadas a seis distâncias do detector, para cada fonte. Assim, puderam ser obtidas as curvas de calibração em eficiência para cada prateleira, cobrindo-se a faixa de energia de 81 a 1408keV. As características de decaimento usadas nas calibrações para cada um deles, são dadas na Tabela 3.5 <sup>(1)</sup>.

**Tabela 3.5: Radionuclídeos e respectivas características de decaimento adotados nas calibrações dos detectores.**

Radionuclídeo	Meia-vida (anos)	Energia $\gamma$ (keV)	I <sub><math>\gamma</math></sub> (%)
$^{152}\text{Eu}$	$13,33\pm 0,10$	121,78	28,37
		244,70	7,51
		344,28	26,58
		411,11	2,234
		443,96	3,121
		778,90	12,96
		964,13	14,62
$^{133}\text{Ba}$	$10,52\pm 0,13$	80,99	34,1
		276,39	7,1
		302,85	18,3
		356,01	62
		383,85	9,4
$^{22}\text{Na}$	$2,6\pm 0,2$	1274,53	99,9
$^{60}\text{Co}$	$5,27\pm 0,5$	1173,23	100
		1332,50	100
$^{241}\text{Am}$	$432,2\pm 0,7$	26,34	2,41
		59,54	35,9
$^{137}\text{Cs}$	$30,17\pm 0,3$	661,66	85,1

### **3.3.1.2 Contagens de Fontes com Atividades Conhecidas**

Para determinar a precisão dos resultados das medidas no detector de Ge(HP) (*EG&G Ortec*), foram analisadas três fontes de calibração com atividades conhecidas. As fontes utilizadas foram:  $^{152}\text{Eu}$  ( $t_{1/2}=13,33\text{anos}$ ), fornecida pela *Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA - International Atomic Energy Agency)*, com atividade igual a  $10,408\mu\text{Ci}\pm 2\%$ , em 01/01/1981;  $^{60}\text{Co}$  ( $t_{1/2}=5,27\text{anos}$ ), cedida pelo *Instituto de Física da Universidade de São Paulo (IFUSP)*, com  $1,239\mu\text{Ci}\pm 3,9\%$  de atividade, em 01/11/1981; e  $^{152}\text{Eu}$ , também cedida pelo *IFUSP*, com  $0,576\mu\text{Ci}$  em 02/1996.

### **3.3.1.3 Calibrador de Dose**

O Calibrador de Dose da *Capintec*, modelo *CRC 120*, foi usado para realizar medidas de atividade, após a separação química dos alvos irradiados, naqueles casos em que as atividades induzidas eram muito altas.

## **3.3.2 Espectrofotometria de Absorção Atômica**

A técnica de Espectrofotometria de Absorção Atômica (*AAS - Atomic Absorption Spectrophotometry*) baseia-se na absorção de energia radiante por átomos neutros, não excitados, no estado gasoso. O elemento a ser determinado é levado à condição de dispersão atômica gasosa, através da qual se faz passar um feixe de radiação com comprimento de onda que possa ser convenientemente absorvido. A fonte de radiação mais usada é a lâmpada de catodo oco. É uma técnica sensível (permite a determinação de microquantidades de um elemento metálico), exata e precisa (1% *RSD* – Desvio Quadrático Médio).

As análises foram realizadas no Espectrofotômetro de Absorção Atômica, *Hitachi*, modelo *Z-5000*. Foi utilizado um queimador padrão, em chama de gás-acetileno e lâmpada de catodo oco dos elementos de interesse. As curvas de

calibração foram levantadas, medindo-se soluções padrões de 1, 3, 5, 7, 10 e 20ppm (1ppm=1 $\mu$ g/mL) dos mesmos elementos.

### **3.4 Cálculos de Alcance<sup>(66)</sup>**

Quando uma partícula carregada atravessa um alvo, interage com os elétrons orbitais e cargas positivas dos núcleos dos átomos. Tais cargas podem ser atraídas ou repelidas, de acordo com as forças coulombianas. A partícula perde parte de sua energia, decorrente destes movimentos, sendo absorvida pelos elétrons, provocando ionização ou excitação. As partículas mais leves ( $e^-$ ,  $e^+$ ,  $\beta^-$ ,  $\beta^+$ ), além de perderem energia, tendem a ser defletidas em ângulos maiores que as partículas pesadas ( $p$  e  $\alpha$ ).

À medida que a partícula penetra no alvo, perde energia cinética e eventualmente pára. O alcance  $R$  é definido como a distância média que a partícula percorre em um determinado meio. Este alcance aumenta com o aumento da energia inicial da partícula. Partículas leves possuem alcance maior que as partículas pesadas e as de menor carga têm alcance maior que as de maior carga. O alcance da partícula será menor, quanto maior for a densidade  $\rho$  ( $g/cm^3$ ) do meio.

Além de perderem energia por colisões, as partículas podem perdê-la pelo processo de *Bremsstrahlung*, no qual as seguidas acelerações e desacelerações levam, algumas vezes, à emissão de raios-X. A probabilidade de ocorrência deste evento aumenta de acordo com o aumento da energia da partícula e do número atômico do meio.

A relação entre a perda de energia ( $dE$ ) da partícula ao atravessar uma certa distância ( $dX$ ) em um certo meio é chamada de *Stopping Power* (Poder de

Freamento)  $S = -\frac{dE}{dX}$  (MeV/cm). Quanto maior o *Stopping Power* do meio, menor o alcance da partícula. A degradação da energia das partículas é dada por:

$$\Delta E = E_1 - E_0 = -\left(\frac{dE}{dX}\right)_{\text{médio}} \cdot X \quad (3.5)$$

Sendo:

$E_1$  = energia emergente das partículas ao atravessarem a espessura  $X$  do material alvo;

$E_0$  = energia incidente das partículas

A degradação da energia do feixe de prótons que atravessa os alvos, janelas e folhas monitoras foi calculada pela fórmula de Alcance, dada anteriormente, utilizando-se as tabelas de *Stopping Power* (Poder de Freamento), de acordo com Janni <sup>(77)</sup>, que é uma tabela já bastante consagrada e usada no meio científico. A energia estimada em cada uma das folhas foi aquela situada no ponto médio das mesmas.

### **3.5 Metodologia**

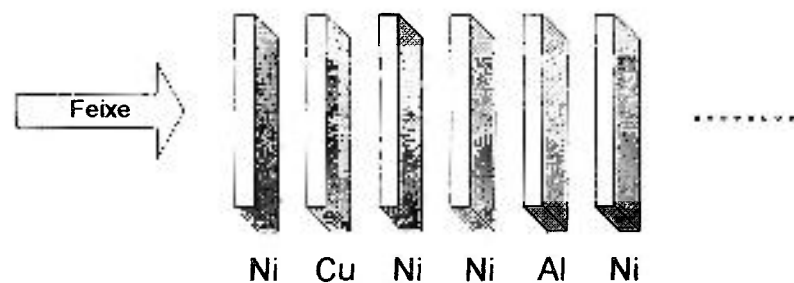
Todos os alvos foram irradiados, utilizando-se o sistema de feixe externo (linha de feixe 4), nos quais o feixe incidia perpendicularmente.

As medidas de radioatividade dos alvos irradiados, as separações químicas dos mesmos e as medidas de absorção atômica foram realizadas nos Laboratórios do *Centro de Radiofarmácia (CR)* do IPEN.

#### **3.5.1 Funções de Excitação**

A técnica de empilhamento de lâminas (folhas) finas, foi o método adotado nas irradiações com feixes de prótons, para as medidas das funções de excitação.

A Figura 3.5 mostra um esquema deste empilhamento. Folhas de Ni (*Goodfellow Metals Ltd.*), utilizadas como os alvos de interesse, tiveram sua espessura reduzida em um Laminador, *Auri SA*, modelo *CR-502*. Folhas de Cu e Al podem ser intercaladas nas pilhas: as primeiras são usadas como monitores da corrente e energia do feixe e as segundas, como degradadores de energia do feixe. Esta energia é calculada pela fórmula de Alcance de partículas carregadas (no caso, prótons), em todas as folhas utilizadas nas irradiações (estimando-se o ponto médio em cada uma delas). Os valores de alcance foram calculados, utilizando-se as tabelas de *Stopping Power* (Poder de Freamento), de acordo com Janni <sup>(77)</sup>, como citado no item (3.4).



**Figura 3.5: Diagrama esquemático das folhas empilhadas no porta-alvo para serem irradiadas.**

Com os valores de energia obtidos nos cálculos, as funções de excitação, isto é, os dados de secção de choque  $\sigma$  em função da energia incidente  $E$  da partícula ( $\sigma$  vs  $E$ ) foram medidas, para as reações induzidas por prótons nos alvos empregados.

As secções de choque  $\sigma$  (mb) foram calculadas pela equação dada a seguir:

$$\sigma = \frac{A}{N \cdot \Phi \cdot 10^{-22} \cdot (1 - e^{-\lambda t})} \quad (3.6)$$

$A$  = Atividade (Bq) do radioisótopo no *EOB* (fim do bombardeamento);

$N$  = número de moléculas alvo por  $\text{cm}^2$ ;

$\Phi$  = fluxo de feixe (pps = partículas por segundo);

$\lambda$  = constante de decaimento do radioisótopo =  $\frac{\ln 2}{t_{1/2}}$  (inverso da meia-vida  $t_{1/2}$ );

$t$  = tempo de irradiação (mesma unidade da meia-vida).

O valor de  $N$  é calculado por:

$$N = \frac{Na \cdot \rho \cdot x \cdot a}{M} \quad (3.7)$$

Onde:

$Na$  = número de Avogadro =  $6,023 \times 10^{23}$  moléculas;

$\rho$  = densidade do material alvo ( $\text{g}/\text{cm}^3$ );

$a$  = abundância natural do isótopo alvo;

$x$  = espessura do alvo (cm);

$M$  = peso molecular do elemento alvo (g);

O valor de  $\Phi$  é calculado por:

$$\Phi = 6,28 \times 10^{12} \cdot i \quad (3.8)$$

Sendo:

$i$  = corrente de feixe ( $\mu\text{A}$ )

Foram realizadas quatro irradiações, para a determinação das funções de excitação de reações nucleares induzidas por prótons, em folhas de Níquel natural.

Uma irradiação foi feita com prótons de até 24MeV (nominal) de energia, onde o número total de folhas utilizadas foi 19, sendo 8 delas de Níquel natural, com 99,98% de pureza e com espessuras que variaram de 70 a 80 $\mu\text{m}$ , cada; 4 de Cobre natural, com 99,99+% de pureza e 20 $\mu\text{m}$  de espessura (nominal do fabricante, *Goodfellow Metals Ltd.*) e 7 de Alumínio ( $^{27}\text{Al}$  - 100%), com pureza de 99,98% e espessuras de 30 a 360 $\mu\text{m}$ . A área de cada folha era de (13x13) $\text{mm}^2$ . A corrente de feixe média, determinada pelo integrador de dose do Cíclotron ( $\mu\text{A.h}$ ), foi 0,59 $\mu\text{A}$  e o tempo de irradiação, 17min.

A segunda irradiação foi feita utilizando-se a faixa de energia de 22,4 a 14MeV. Os alvos eram 10 folhas de Níquel e uma de Cobre (na última posição), todas naturais (com as mesmas purezas citadas acima), com 50 $\mu$ m de espessura e dimensões de 15mmx15mm cada. A corrente de feixe média na irradiação foi de 1,25 $\mu$ A, durante 8min.

Na terceira irradiação, a faixa de energia compreendida foi de 16 a 4MeV. Foram utilizadas: uma folha de Alumínio de 1085 $\mu$ m de espessura (a primeira delas incidida pelo feixe de 22,4MeV - energia do Cíclotron), uma de Cobre e 10 folhas de Níquel também com 50 $\mu$ m (cada). As dimensões das folhas eram as mesmas que as das citadas acima. O tempo de irradiação foi 7min, com corrente de feixe média de 1,43 $\mu$ A.

Na quarta irradiação, foi coberta a faixa de energia de 22,33 a 13,8MeV. Como alvos, foram empregadas 10 folhas de Ni e uma de Cu (na primeira posição), com espessura de 50 $\mu$ m cada, e 99,98% e 99,99+% de pureza, respectivamente. As folhas eram compreendidas por uma área de (13x13)mm<sup>2</sup> cada. Durante a irradiação de 58min, a corrente de feixe média foi de 1,03 $\mu$ A.

A radioatividade dos alvos foi medida por Espectrometria Gama, empregando-se o detector de Ge(HP), conforme descrito no item 3.3.

### ***3.5.2 Rendimentos de Alvo Grosso***

#### ***3.5.2.1 Experimentais***

O rendimento de alvo grosso experimental mede a quantidade de radioisótopo (no caso, <sup>57</sup>Co) e impurezas radionuclídicas produzidos, quando a energia do feixe de prótons é totalmente degradada no alvo. Folhas de Níquel natural, ou seja, contendo <sup>58</sup>Ni (68,27% de abundância); <sup>60</sup>Ni (26,10%); <sup>61</sup>Ni (1,13%); <sup>62</sup>Ni (3,59%) e <sup>64</sup>Ni (0,91%), com 1mm de espessura e área (13x13)mm<sup>2</sup>, cada, foram utilizadas em todas as irradiações. As correntes de feixe

médias de prótons variaram de 1,25 a 2,51 $\mu$ A . Os tempos de irradiação foram de 5min a 1hora.

A radioatividade dos alvos também foi medida por Espectrometria Gama, empregando-se o detector de Ge(HP), conforme descrito no item 3.3.

### 3.5.2.2 Teóricos <sup>(66)</sup>

Os rendimentos de produção teóricos de <sup>57</sup>Co e seus respectivos contaminantes, também obtidos nas irradiações, foram calculados a partir dos dados das funções de excitação obtidos no item (3.5.1). A expressão utilizada nos cálculos foi:

$$R = \frac{Na \cdot a \cdot \Phi}{M \cdot 3,7 \times 10^4} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \cdot \int_{E_1}^{E_0} \left( \frac{dE}{\rho \cdot dx} \right)^{-1} \cdot \sigma(E) dE \quad (3.9)$$

Onde:

$R$  = Rendimento de produção ( $\mu$ Ci/ $\mu$ A.h)

$Na$  = número de Avogadro =  $6,023 \times 10^{23}$  moléculas;

$a$  = abundância natural do isótopo alvo;

$M$  = peso molecular do elemento alvo (g);

$\lambda$  = constante de decaimento do radioisótopo =  $\frac{\ln 2}{t_{1/2}}$

$t_{1/2}$  = meia-vida do radioisótopo (mesma unidade de  $t$ );

$t$  = tempo de irradiação (mesma unidade da  $t_{1/2}$ );

$\Phi$  =  $6,28 \times 10^{12} \cdot i$  (pps);

$i$  = corrente de feixe ( $\mu$ A);

$E_1$  = energia do feixe na saída do alvo (MeV);

$E_0$  = energia incidente do feixe (MeV);

$\left( \frac{dE}{\rho \cdot dx} \right)^{-1}$  = inverso do poder de freamento [ $g/(MeV \cdot cm^2)$ ];

$\sigma(E)$  = secção de choque ( $cm^2$ )

### **3.5.3 Medidas de Corrente e Energia do Feixe**

Foram feitas três irradiações para monitorar a corrente do feixe de prótons, em duração crescente, utilizando-se folhas de Cobre natural, através das reações nucleares  $^{63}\text{Cu}(p,2n)^{62}\text{Zn}$  e  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$ , que originam espectros de raios  $\gamma$  avaliados facilmente. Em duas delas, foram empilhadas 3 folhas de Cu de 99,99+% de pureza e 20 $\mu\text{m}$  de espessura cada (nominal do fabricante, *Goodfellow Metals Ltd.*) e em outra, adotou-se apenas uma de espessura maior, 50 $\mu\text{m}$ . Tanto a corrente como a energia do feixe podem ser determinadas destas maneiras, já que os dois radionuclídeos monitores,  $^{62}\text{Zn}$  e  $^{65}\text{Zn}$ , são produzidos simultaneamente, com energias de limiar das reações citadas de 13,51MeV, para o primeiro e 2,16MeV, para o segundo. A área das folhas era de 13x13mm<sup>2</sup>, como citado em irradiações anteriores. A corrente de feixe média, determinada pelo integrador de carga do Cíclotron ( $\mu\text{A.h}$ ), foi 1 $\mu\text{A}$  nas duas irradiações citadas primeiro e 1,33 $\mu\text{A}$  na última. Os tempos de irradiação foram 10min, 1hora e 45min, respectivamente. A energia do feixe foi determinada estimando-se o ponto médio de cada folha. A determinação da corrente e energia do feixe foi feita baseando-se nos dados obtidos nas análises das folhas monitoras e de acordo com Kopecký <sup>(78)</sup>.

### **3.5.4 Produção de Solução de $^{57}\text{CoCl}_2$**

#### **3.5.4.1 Irradiações de Ni**

Para atender ao pedido de fornecimento de uma solução de  $^{57}\text{CoCl}_2$ , feito pelo Centro de Medicina Nuclear do Hospital das Clínicas de São Paulo <sup>(79)</sup>, foram feitas cinco irradiações em um período de um mês, isto é, irradiações descontínuas irregulares, em virtude das características de operação do Cíclotron CV-28. Apenas uma folha de Níquel natural, com 1mm de espessura e área de (25x25)mm<sup>2</sup>, foi usada como alvo. A refrigeração do alvo foi feita com água e diretamente na parte traseira da folha. A carga total acumulada foi de 242 $\mu\text{A.h}$  e o tempo total de irradiação foi de 20,45h. Após o último *EOB*, esperou-se um tempo

de decaimento de 13 dias (no qual já não foi verificada a presença de  $^{55}\text{Co}$ , pois este possui meia-vida de 17,54h), para realizar a primeira medida de atividade da amostra irradiada, sem realizar a separação química. O Calibrador de Dose (*Capintec*), modelo *CRC 120*, foi o detector empregado. A amostra foi medida na posição pré-calibrada para o  $^{57}\text{Co}$ , mas como havia outros radioisótopos no alvo irradiado, a medida foi realizada para se ter um parâmetro de como estava o nível de atividade da amostra. Esta contagem não foi feita no detector de Ge(HP), porque já se sabia que a percentagem de tempo morto do mesmo seria muito alta. Em uma segunda contagem efetuada, todo o  $^{57}\text{Ni}$  também já havia decaído para o  $^{57}\text{Co}$ , pois sua meia-vida é de 36h (em 15 dias, a maior parte do  $^{57}\text{Ni}$  presente no último *EOB* decai para o seu filho).

#### **3.5.4.2 Separação Química de Ni-Ni\*-Co\***

Após um intervalo de 46 dias do último *EOB*, foi dado início ao processo de separação química do  $^{57}\text{Co}$  (via direta e indireta). O método baseia-se na retenção de  $^{57}\text{Co}$  em Resina de Troca Aniônica e sua eluição, através da adição de HCl (Ácido clorídrico), de acordo com Osso Jr. <sup>(80)</sup>. A resina adotada para a realização da separação química do  $^{57}\text{Co}$  foi a *Analytical Grade Anion Exchange Resin DOWEX 1X8*, 50-100 mesh, *Chloride Form* (*Bio-Rad Laboratories*). A ativação da resina foi feita de acordo com Santos <sup>(11)</sup> e posteriormente transferida para a coluna de vidro da separação química, com 2cm de diâmetro, até o preenchimento com 6cm de altura de resina. Todo o trabalho foi feito em uma capela com sistema de exaustão e com parede de chumbo (blindagem da radiação). Em seguida, foram adicionados à coluna cerca de 200mL de HCl 8N, para condicionamento da resina. Este processo foi terminado e a coluna deixada em repouso, para posteriormente ser utilizada com o alvo já dissolvido. A partir de então deu-se início ao processo de dissolução do alvo irradiado. A placa sólida de  $^{nat}\text{Ni}$  irradiada foi dissolvida com 40mL de  $\text{HNO}_3$  (Ácido Nítrico) 2N, à quente, sem chegar à ebulição. Para acelerar o processo de dissolução da placa, foi adicionado  $\text{HNO}_3$  concentrado ( $\pm 20\text{mL}$ ). A solução foi, a seguir, levada à secura e retomada com 20mL de HCl 8N. Esta solução (carga) foi adicionada à coluna e, em seguida,

50mL de HCl 8N foram percolados. Nestas condições, o Ni passa ao efluente e somente o Co radioativo retido na resina. Posteriormente, 20mL de HCl 0,1N foram adicionados, para retirar, agora, todo o Co. Amostras do alvo irradiado dissolvido, da solução com Ni e do eluído de Co foram coletadas para análise no detector de *Ge(HP)*.

### ***3.5.5 Produção de $^{57}\text{Co}$ e $^{109}\text{Cd}$***

#### ***3.5.5.1 Irradiações de Ni e Ag (alvo composto)***

Foi realizada uma irradiação em uma folha de Níquel natural de 607 $\mu\text{m}$  de espessura e 99,98% de pureza e outra de Prata natural com 260 $\mu\text{m}$ . Estas espessuras degradaram a energia do feixe incidente de prótons de 22,5MeV, na folha de Níquel, até 14MeV e na de Prata, de 14 a 9MeV. A composição natural da Prata é de 51,83%, para  $^{107}\text{Ag}$  e 48,17%, para  $^{109}\text{Ag}$ . A área das folhas era de (13x13) $\text{mm}^2$ . O tempo de irradiação foi de 10min e a corrente de feixe média, 1,5 $\mu\text{A}$ . A carga integrada foi, portanto, 0,25 $\mu\text{A.h}$ .

Foram realizadas mais duas irradiações. Em uma, foram empregadas duas folhas naturais: uma de Ni (662 $\mu\text{m}$  de espessura) e uma de Ag (228 $\mu\text{m}$ ), nas quais a energia do feixe de prótons foi degradada de 22,47 a 13,23MeV e 13,23 a 8,71MeV, respectivamente. A corrente de feixe média foi de 0,77 $\mu\text{A}$ , durante 13min. Na outra irradiação, também foram utilizadas folhas naturais: uma de Cu (50 $\mu\text{m}$ ), uma de Ni (650 $\mu\text{m}$ ) e uma de Ag (328 $\mu\text{m}$ ). A degradação da energia do feixe de prótons foi de: 22,77 a 22,11MeV; 22,11 a 12,82MeV e 12,82 a 6,18MeV, respectivamente. A carga integrada foi de 1 $\mu\text{A.h}$ .

#### ***3.5.5.2 Separação Química de Ni e Ag (alvo composto)***

O método proposto para a separação química de  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$ , simultaneamente, do alvo composto de Ni e Ag irradiado, é descrito a seguir.

Os alvos de Ni (0,9069g) e Ag (0,4044g) foram dissolvidos em 20mL de HNO<sub>3</sub> concentrado e a solução foi levada à secura, sendo retomada com 20mL de H<sub>2</sub>O. A solução é novamente levada à secura e retomada em 20mL de H<sub>2</sub>O (pH final entre 2 e 7). Cerca de 1,25g de Cu metálico eletrolítico foram, então, adicionados e manteve-se a solução agitada por 15 min. O Cu reduz a Ag<sup>+</sup> a Ag<sup>0</sup>. A Ag metálica e o excesso de Cu são filtrados em papel de filtro quantitativo, e o filtrado, contendo <sup>57</sup>Co, <sup>109</sup>Cd, Ni<sup>2+</sup>, Cu<sup>+</sup> e resíduos de Ag<sup>+</sup>, é levado à secura e retomado com HCl 8N, repetindo esta etapa 2 vezes. A solução final, em 10mL de HCl 8N, é percolada em resina de troca aniônica Dowex 1X8 (50-100 mesh, 7cm de altura x 1 cm de diâmetro), previamente condicionada com HCl 8N. Nesta condição, Ni<sup>2+</sup>, Cu<sup>+</sup> e Ag<sup>+</sup> não são retidos na resina, e <sup>57</sup>Co e <sup>109</sup>Cd são adsorvidos. Os dois são posteriormente eluídos em HCl 0,1N (60mL). As amostras dos eluídos foram analisadas por Espectrometria Gama e na solução final foram analisados Cu e Ni por Espectrofotometria de Absorção Atômica.

## **CAPÍTULO 4**

### **RESULTADOS E DISCUSSÕES**

#### **4.1 Medidas de Radioatividade**

##### **4.1.1 Espectrometria Gama**

###### **4.1.1.1 Calibração dos Detectores de Ge(HP)**

As curvas de calibração em eficiência ( $\ln \xi \times \ln E_\gamma$ ), para cada prateleira, foram obtidas através de cálculos de regressão linear e foram bem reprodutivas, com valores de coeficiente de correlação linear maiores que 0,98, para o detector da *EG&G Ortec* e maiores que 0,97, para o detector da *Canberra*.

###### **4.1.1.2 Contagens de Fontes com Atividades Conhecidas**

Verificou-se que o sistema de contagem estava funcionando muito bem, onde os desvios relativos percentuais, comparando-se as atividades conhecidas das fontes (corrigidas, naturalmente, para as datas das medidas) com os valores encontrados nas análises foram de -1,15% para a fonte de  $^{60}\text{Co}$ ; +0,53%, para a fonte de  $^{152}\text{Eu}$  cedida pelo *IFUSP* e +2,5% para a fornecida pela *IAEA*. Vale ressaltar que o tempo morto do detector, na última contagem (fonte de  $^{152}\text{Eu}$  da *IAEA*) foi de 12%, enquanto que nas outras duas não passou de 1,7%. Estes são erros muito satisfatórios, mostrando que o sistema de contagem utilizado era muito confiável.

## 4.2. Metodologia

### 4.2.1 Funções de Excitação

Os radionuclídeos encontrados na Espectrometria Gama realizada nas folhas de Ni irradiadas foram:  $^{55}\text{Co}$  ( $t_{1/2}=17,54\text{h}$ ),  $^{56}\text{Co}$  ( $t_{1/2}=78,76\text{d}$ ),  $^{57}\text{Co}$  ( $t_{1/2}=271,3\text{d}$ ),  $^{58}\text{Co}$  ( $t_{1/2}=70,78\text{d}$ ),  $^{56}\text{Ni}$  ( $t_{1/2}=6,1\text{d}$ ) e  $^{57}\text{Ni}$  ( $t_{1/2}=36\text{h}$ ). Os valores de secção de choque calculados estão mostrados na Tabela 4.1 e nas Figuras 4.1 e 4.2. Os erros totais nestes valores foram obtidos pela raiz quadrada da soma dos erros individuais ao quadrado. As fontes de erros individuais foram estimadas por: corrente de feixe, eficiência do detector, estatística de contagem e análise da área do pico, dados de decaimento e espessura do alvo (no caso das folhas que foram laminadas).

**Tabela 4.1 Funções de excitação de reações nucleares induzidas por prótons em  $^{nat}\text{Ni}$ .**

$E_p$ (MeV)	$\sigma$ (mb)					
	$^{55}\text{Co}$	$^{56}\text{Co}$	$^{57}\text{Co}$	$^{58}\text{Co}$	$^{56}\text{Ni}$	$^{57}\text{Ni}$
22,70	19,1±2,4	9,19±1,41	233±28	29,7±4,2	1,06±0,14	234±28
21,44	---	3,63±0,37	260±12	10,7±0,9	0,54±0,04	72,3±3,1
21,29	17,2±4,6	5,16±1,40	165±44	19,9±5,4	0,74±0,19	164±44
20,64	---	2,02±0,31	195±9	9,50±0,90	0,42±0,03	133±5
20,56	22,5±6,1	2,56±0,72	181±49	15,9±4,3	0,68±0,80	155±41
19,96	17,0±0,8	---	221±10	6,28±2,33	0,36±0,05	101±4
19,81	27,3±7,4	---	264±71	14,4±3,9	0,46±0,12	146±39
19,19	19,9±0,9	---	119±6	---	0,19±0,04	89,2±3,6
19,04	32,6±8,8	---	199±54	8,19±2,25	---	131±35
18,40	22,5±1,0	---	197±9	---	0,12±0,04	74,4±3,0
18,25	33,1±8,9	---	175±47	---	---	97,2±26,0
17,58	23,7±0,9	---	119±5	---	---	55,6±2,2
17,42	36,6±9,8	---	191±51	---	---	73,3±19,7
16,73	24,5±1,0	---	133±6	---	---	35,0±1,4
16,56	38,6±10,4	---	229±61	---	---	44,5±11,9
15,85	23,4±0,9	---	142±7	---	---	18,3±0,7
15,68	37,1±9,9	---	197±53	---	---	21,1±5,6
15,47	36,8±10,4	---	194±55	4,74±1,39	---	25,5±7,2
14,94	21,8±0,9	---	56±3	---	---	7,22±0,29
14,76	34,4±9,2	---	137±37	---	---	7,33±1,97
14,54	33,6±9,5	---	149±42	4,71±1,37	---	9,59±2,71
13,98	19,8±0,8	---	51,4±2,5	---	---	2,04±0,09
13,8	30,4±8,1	---	74,4±20,0	---	---	1,06±0,28
13,57	31,9±9,0	---	57,1±16,2	3,90±1,19	---	2,01±0,57
12,89	18,4±2,2	---	16,5±1,9	6,68±0,85	---	---
12,54	26,0±7,4	---	33,4±9,5	2,49±0,78	---	0,04±0,02
11,44	20,2±5,7	---	19,6±5,6	3,44±1,08	---	---
10,27	14,9±4,2	---	13,3±3,8	3,29±0,98	---	---
9,44	0,20±0,02	---	0,93±0,15	1,38±0,19	---	---
9,01	6,36±1,80	---	7,47±2,23	2,43±0,72	---	---
7,62	0,96±0,27	---	2,29±0,66	2,35±0,69	---	---
6,05	---	---	0,38±0,14	1,51±0,45	---	---
4,18	---	---	---	1,54±0,46	---	---

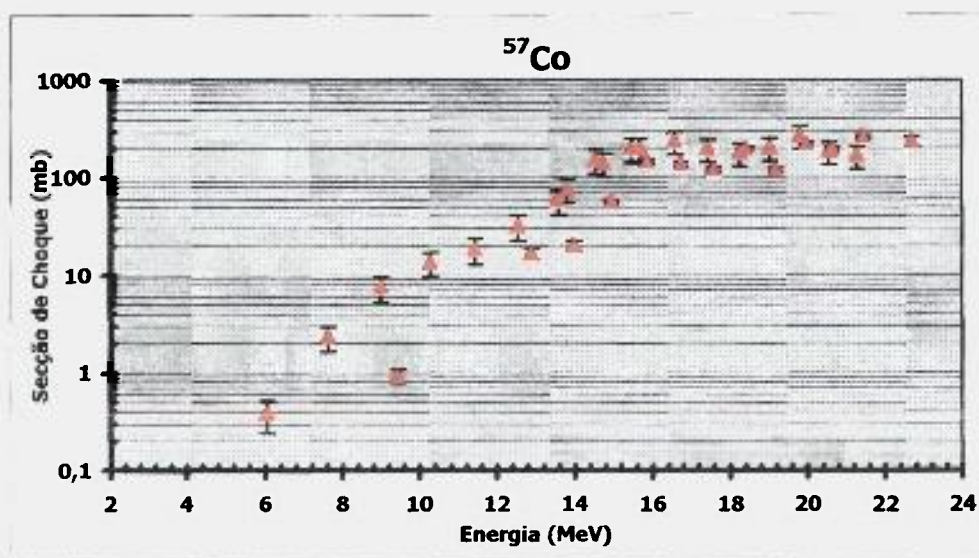
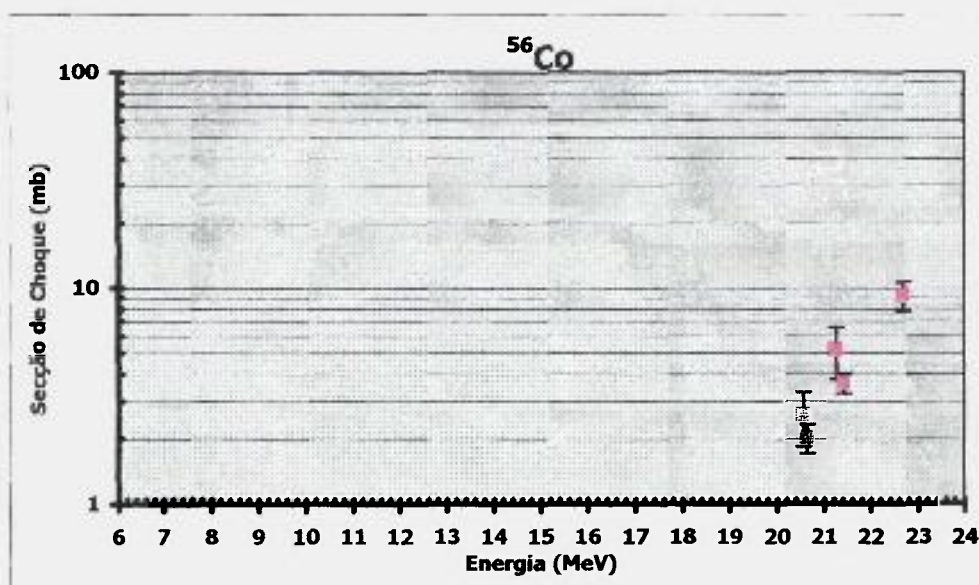
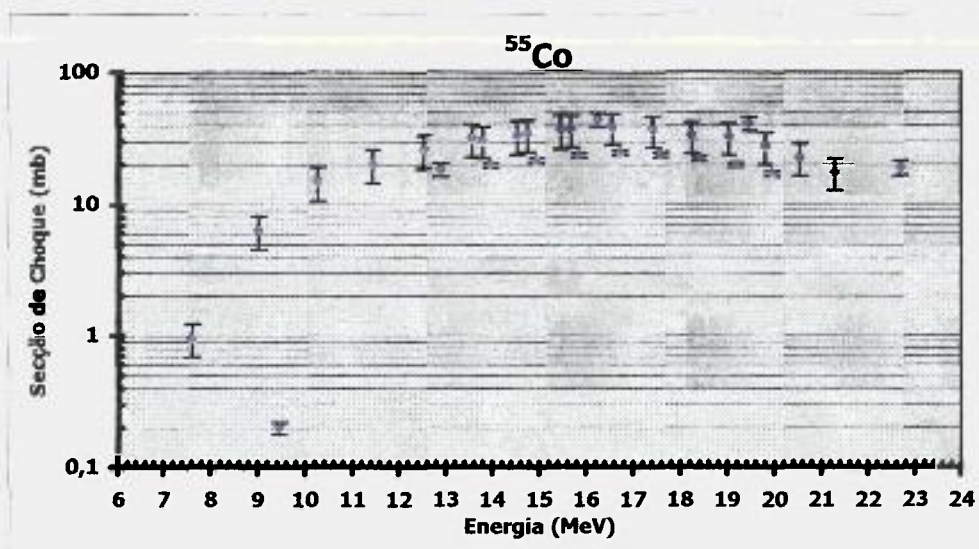


Figura 4.1: Funções de Excitação de reações nucleares induzidas por prótons em  $^{nat}\text{Ni}$ , para a produção de  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$  e  $^{57}\text{Co}$ , de acordo com os valores da Tabela 4.1.

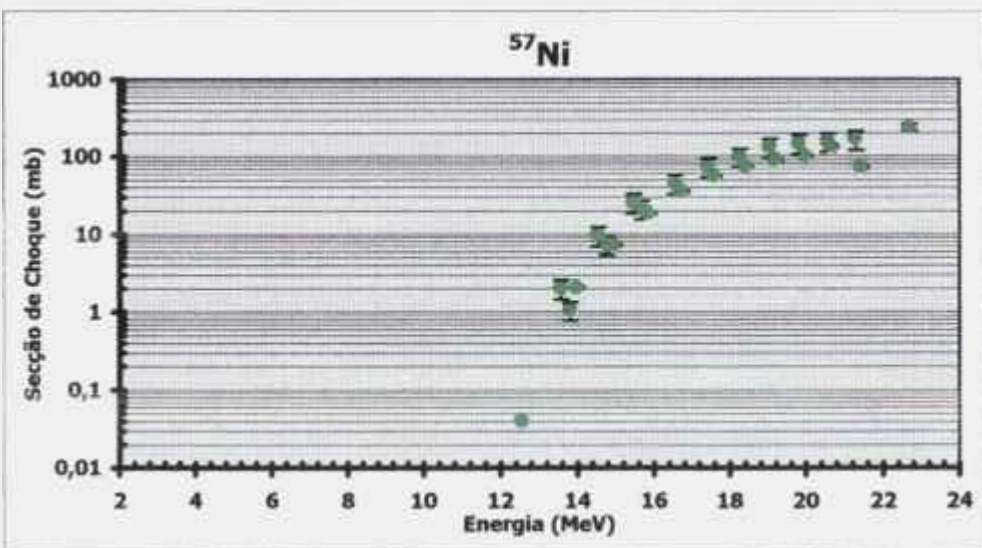
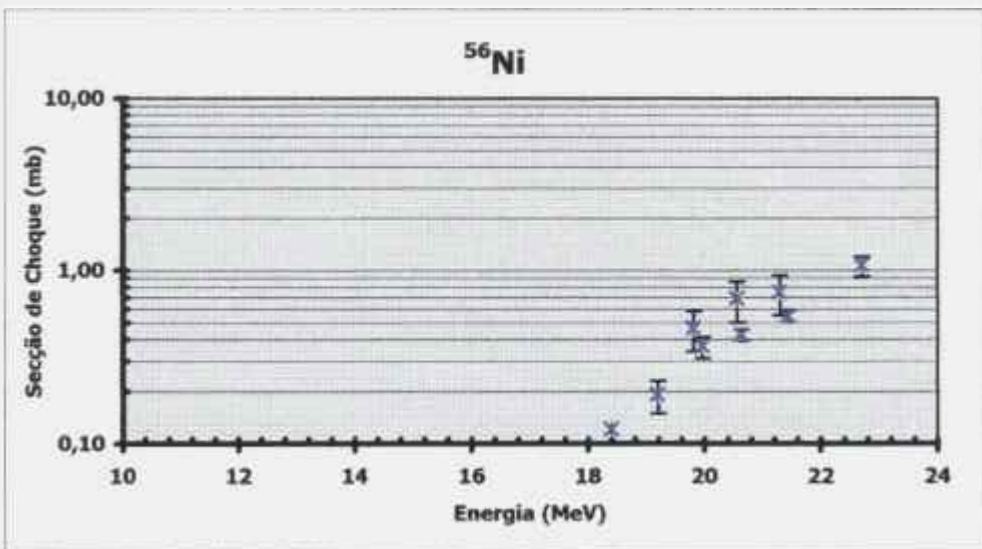
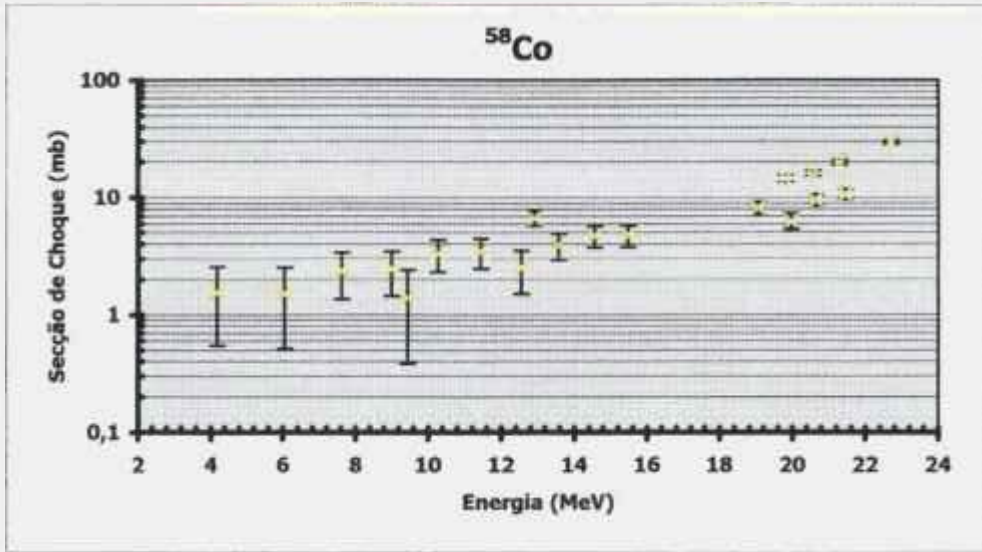


Figura 4.2: Funções de Excitação de reações nucleares induzidas por prótons em  $^{nat}\text{Ni}$ , para a produção de  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$  e, de acordo com os valores da Tabela 4.1.

A Tabela 4.2 mostra os dados obtidos por outros autores e os deste trabalho.

**Tabela 4.2: Comparação da produção de  $^{57}\text{Co}$ , através de reações de Ni com prótons <sup>(a)</sup>.**

Reação	Energia (MeV)	Rendimento (kBq/ $\mu\text{A.h}$ )	$\sigma_{\text{máx}}$ (mb) - E (MeV)	Referência (Ano)
	Até 19	—	400 - 19	Kaufman (1960)
	Até 40	—	?	Ewart (1964)
	23	111 a 185	—	Gillette (1965)
	Até 20	—	<68 - 20 ( $^{57}\text{Ni}$ )	Barrandon et al (1975)
	Até 51	—	>250 - <30	Brinkman et al (1977)
	9,2 - 12,5	39,78	—	Watanabe et al (1979)
Ni + p	—	?	—	Gureev et al (1981)
	24	1073 <sup>(b)</sup>	—	Osso Jr. (1987)
	7,9 - 29,6	—	454 - 24 <sup>(b)</sup>	Tarkányi et al (1991)
	18 - 20	370 <sup>(c)</sup>	—	Rylov et al (1995)
	14 - 44	—	178 - 26,5 ( $^{57}\text{Ni}$ )	Sonck et al (1998)
	13 - 23	1400,08 <sup>(b)(d)</sup>	488 - 26	Reimer et al (1998)
	13 - 23	370 <sup>(c)</sup>	—	Spellerberg et al (1998)
	23 - 4	487,29 <sup>(e)</sup>	264,37 - 19,81	Este trabalho (2000)

(a) Alvos naturais e metálicos, exceto quando citado outro tipo.

(b) Via dir.+ind.

(c) Ni enriquecido

(d) Alvo:  $^{58}\text{Ni}$  (99,87%)

(e) Alvo grosso; Via dir.+ind.; 11,31dias após o *EOB*

Por esta Tabela, observa-se que o pico da Função de Excitação para o  $^{57}\text{Co}$  é próximo do valor de Kaufman <sup>(54)</sup>, embora o valor absoluto seja diferente.

Uma comparação com os valores de literatura <sup>(62, 63, 81)</sup> para as funções de excitação experimentais, pode ser vista nas Figuras 4.3 e 4.4, que mostram uma boa concordância entre os dados obtidos neste trabalho, principalmente na forma das curvas e em alguns casos com os valores absolutos.

A Figura 4.5 mostra os valores calculados por Blann <sup>(71)</sup>, que utilizou o código *ALICE*, para a determinação das funções de excitação de reações induzidas por prótons em Ni natural. Nesta figura, os dados gerados correspondem às linhas contínuas e são comparados com outros dados (linhas pontilhadas e tracejadas). Em relação aos valores experimentais das figuras anteriores, o código *ALICE* fornece uma boa estimativa destas funções, tanto na forma das curvas, como em alguns casos predizendo valores absolutos próximos dos experimentais. O único caso em que se observa uma diferença na forma é para o  $^{58}\text{Co}$ .

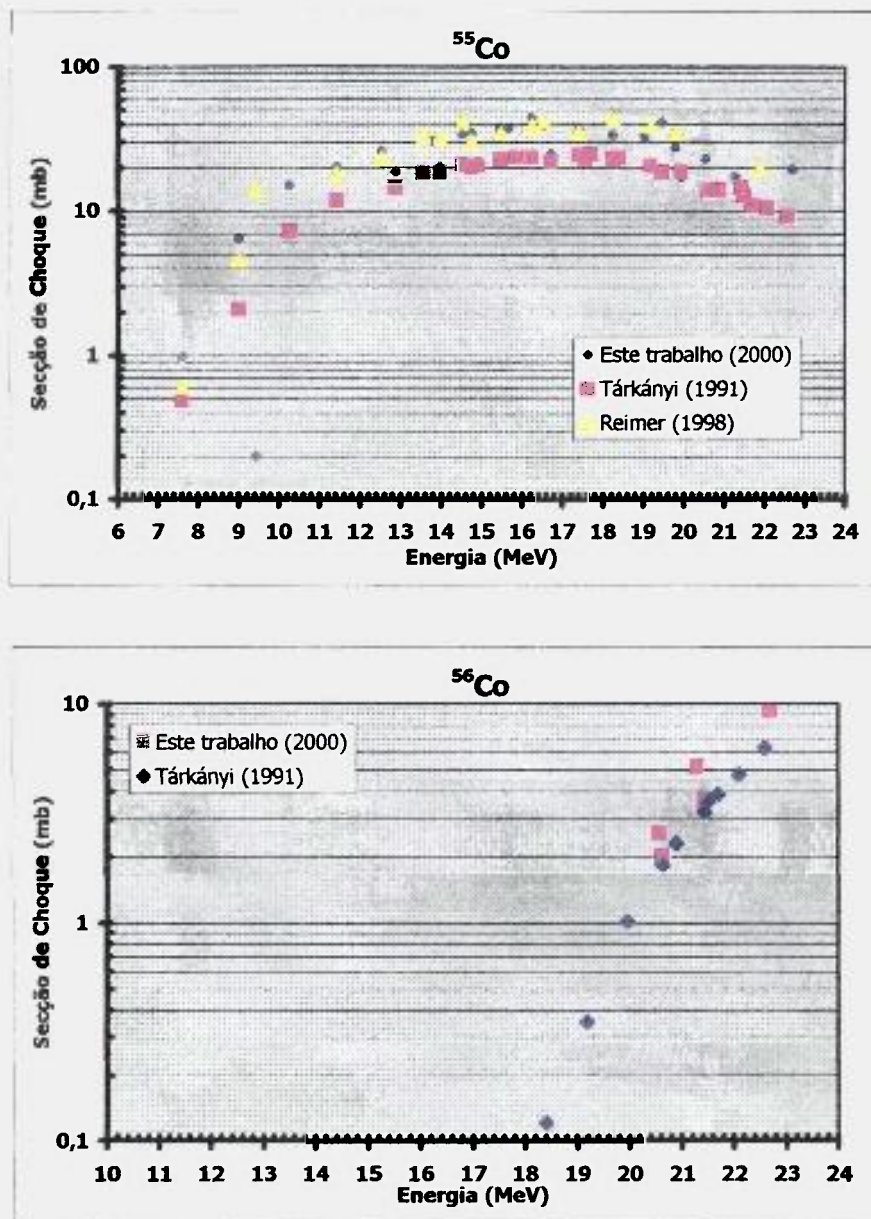


Figura 4.3: Comparação dos valores de literatura com os dados obtidos neste trabalho, das funções de excitação em Ni com prótons, para a produção de  $^{55}\text{Co}$  e  $^{56}\text{Co}$ .

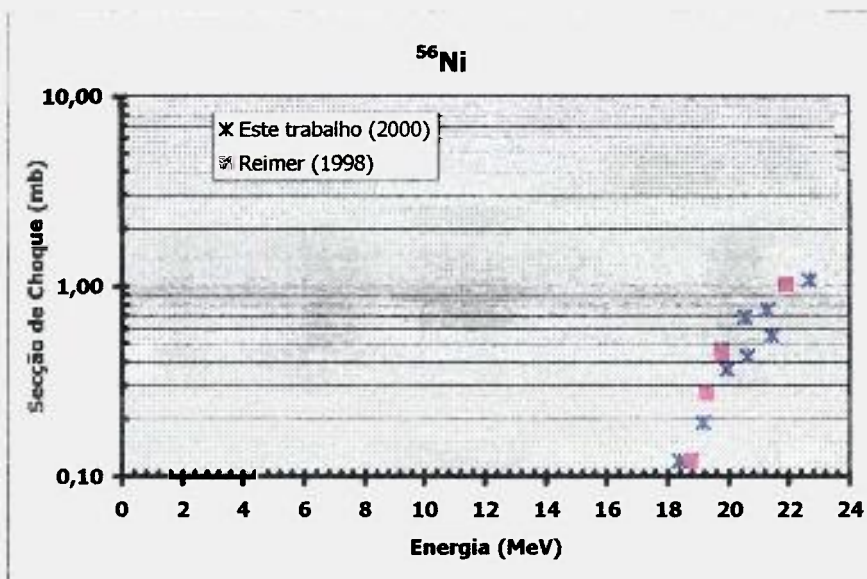
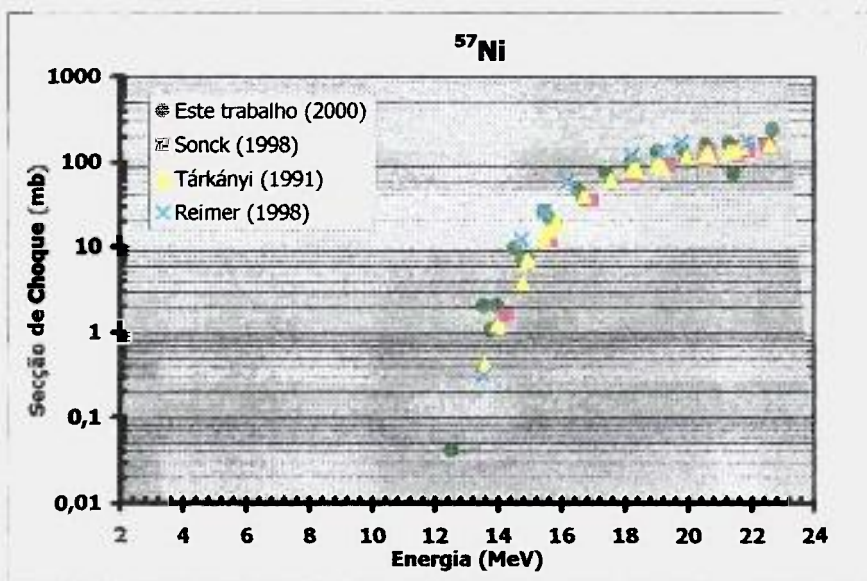
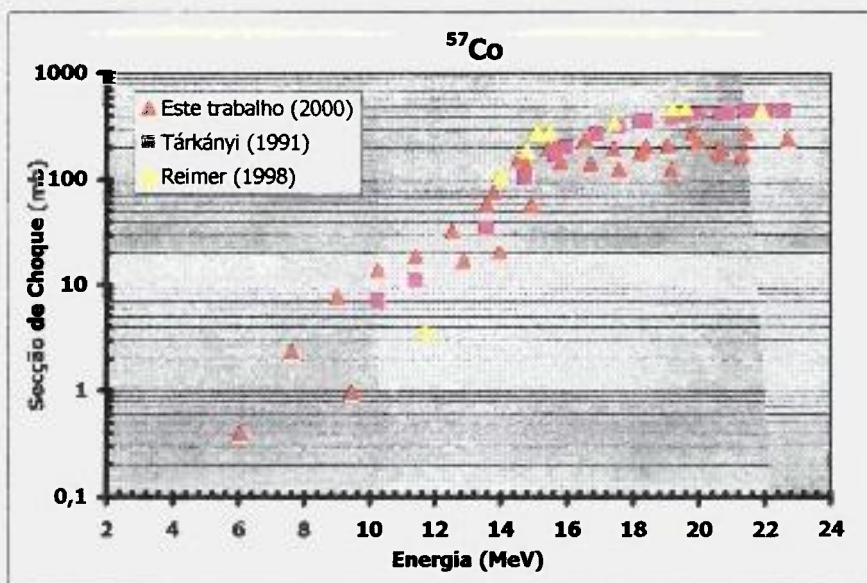


Figura 4.4: Comparação dos valores de literatura com os dados obtidos neste trabalho, das funções de excitação em Ni com prótons, para a produção de  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Ni}$  e  $^{56}\text{Ni}$ .

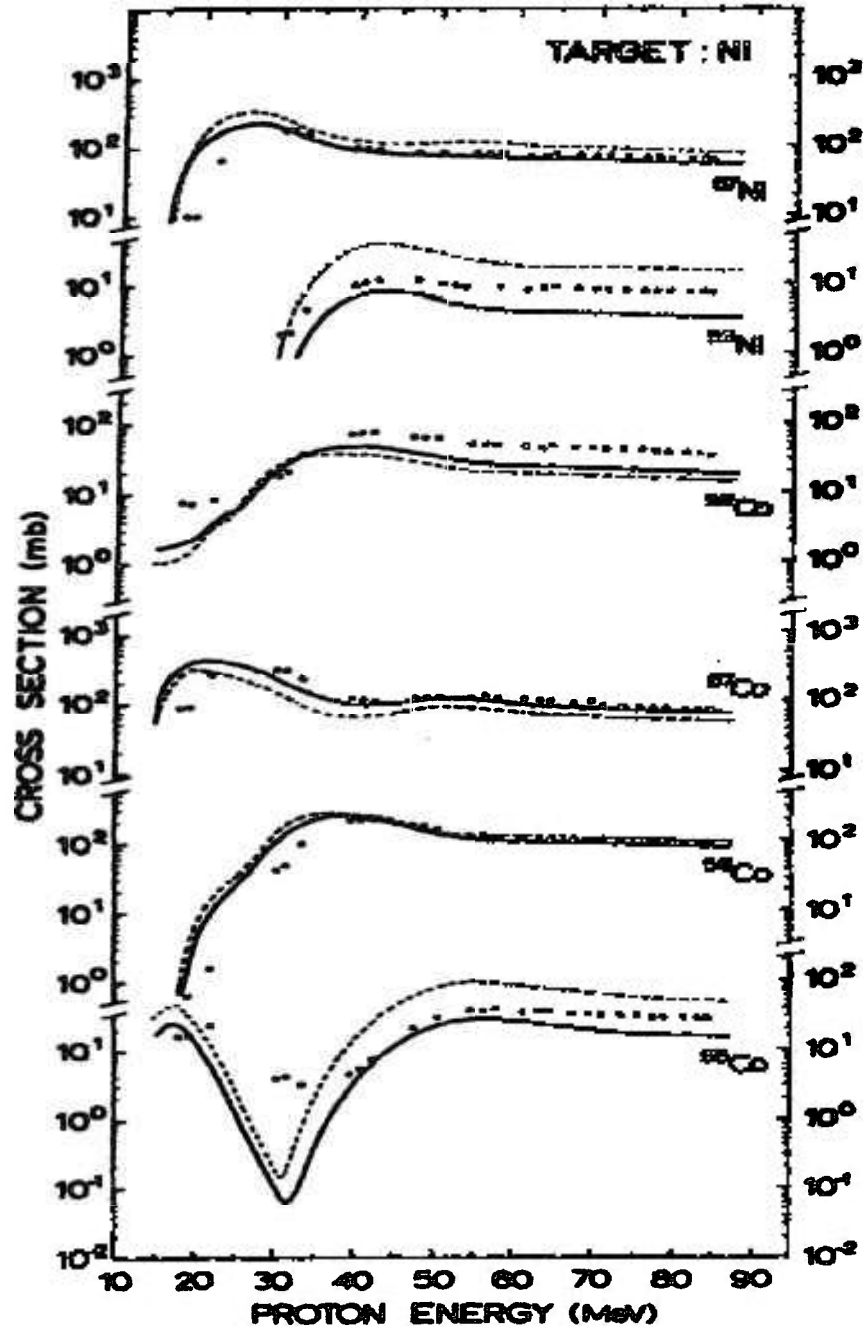


Figura 4.5: Funções de excitação de reações nucleares induzidas por prótons em  $^{nat}\text{Ni}$ , calculadas com o código *ALICE*, para a produção de  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Ni}$  e  $^{56}\text{Ni}$  (71).

## **4.2.2 Rendimentos de Alvo Grosso**

### **4.2.2.1 Experimentais**

Os mesmos radionuclídeos encontrados nas análises das irradiações de Ni, para medidas de funções de excitação, foram encontrados nas irradiações para medidas de rendimento de alvo grosso. A Tabela 4.3 mostra os rendimentos de produção experimentais médios de todos os radionuclídeos produzidos.

O rendimento de produção médio, de alvo grosso do  $^{57}\text{Co}$ , por meio da somatória das reações direta e indireta (isto é, esta última somente pelo decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ ), 11,31 dias (tempo no qual a atividade de  $^{57}\text{Co}$ , produzido por reação indireta, é máxima) após o *EOB*, é  $505,05 \pm 199,43 \text{ kBq}/\mu\text{A.h}$  ( $13,17 \pm 5,39 \mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ). Isto contribui para o aumento do nível de impurezas radionuclídicas. O rendimento de produção do  $^{57}\text{Co}$ , apenas por reação direta, é  $346,69 \pm 203,5 \text{ kBq}/\mu\text{A.h}$  ( $9,37 \pm 5,5 \mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ), no *EOB*. Os resultados obtidos para a produção de  $^{57}\text{Ni}$  são bastante reprodutivos. Contudo, verificou-se que o rendimento de produção de  $^{57}\text{Co}$ , para reação direta, diminuiu muito, até níveis de aproximadamente 50%, mantendo-se as mesmas condições experimentais. Por isto, foram realizadas irradiações com folhas de Cu, separadamente, para monitoração de corrente de feixe e energia. Isto reduziu os erros experimentais, pois de acordo com os resultados das análises, verificou-se que a energia do feixe de prótons era menor, o que justifica esta queda nos valores dos rendimentos de produção.

Comparando-se os valores obtidos com os da Tabela 4.2, verifica-se a discordância entre os vários trabalhos em literatura. Os valores encontrados com alvo enriquecido <sup>(61, 63, 64)</sup> estão abaixo do esperado. Os trabalhos mais antigos mostram valores muito baixos, provavelmente em virtude da instrumentação utilizada.

**Tabela 4.3: Rendimentos de produção experimentais médios, dos radionuclídeos formados nas irradiações de  $^{nat}\text{Ni}$  com prótons, corrigidos para o *EOB*.**

Radionuclídeo	$R_{\text{direta}}$ (kBq/ $\mu\text{Ah}$ )	$R_{\text{indireta}}$ (kBq/ $\mu\text{Ah}$ )	$R_{\text{dir+ind}}$ (kBq/ $\mu\text{Ah}$ )
$^{55}\text{Co}$	24200,96 ± 3754,39	—	0,37 ± 0,74
$^{56}\text{Co}$	6,29 ± 1,48	1,11 ± 0,37	6,66 ± 1,48
$^{57}\text{Co}$	346,69 ± 203,50	150,59 ± 29,60	487,29 ± 199,43
$^{58}\text{Co}$	25,53 ± 5,55	—	22,94 ± 5,18
$^{56}\text{Ni}$	17,39 ± 3,33	—	4,81 ± 1,11
$^{57}\text{Ni}$	28004,93 ± 5523,36	—	150,59 ± 29,60

+11,31 dias após o *EOB*, que é o tempo no qual a atividade de  $^{57}\text{Co}$  é máxima, produzido somente pelo decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ .

#### 4.2.2.2 Teóricos

Nas figuras 4.6 e 4.7 são mostrados os rendimentos de produção teóricos, obtidos utilizando-se a expressão (3.9).

Na comparação dos valores teóricos e experimentais obtidos neste trabalho, observa-se um desvio muito grande, que também já foi verificado por outros autores, como pode ser visto na Tabela 4.2.

#### 4.2.3 Medidas de Corrente e Energia do Feixe

Nas irradiações feitas com folhas de Cu natural, as análises mostraram a presença de  $^{65}\text{Zn}$  ( $t_{1/2}=5856\text{h}$ ;  $E_{\gamma}=1115,55\text{keV}$  - 50,75%) e  $^{62}\text{Zn}$  ( $t_{1/2}=9,257\text{h}$ ;  $E_{\gamma}=596,63\text{keV}$  - 25,70%), como era esperado. Baseando-se nas relações de Kopecký<sup>(78)</sup>, verificou-se que os desvios relativos percentuais entre as correntes de feixe médias, obtidas pelo integrador de carga do Cíclotron e as correntes determinadas pelas análises das atividades induzidas nas folhas, ficaram entre: 35,1% e 41,7%, para a irradiação com menor tempo de duração e 10,1% e 20,5%, para as irradiações com tempos maiores. Isto pode ser justificado por ocorrerem erros maiores nas contagens líquidas e das medidas de corrente do Cíclotron, para a primeira que para as segundas.

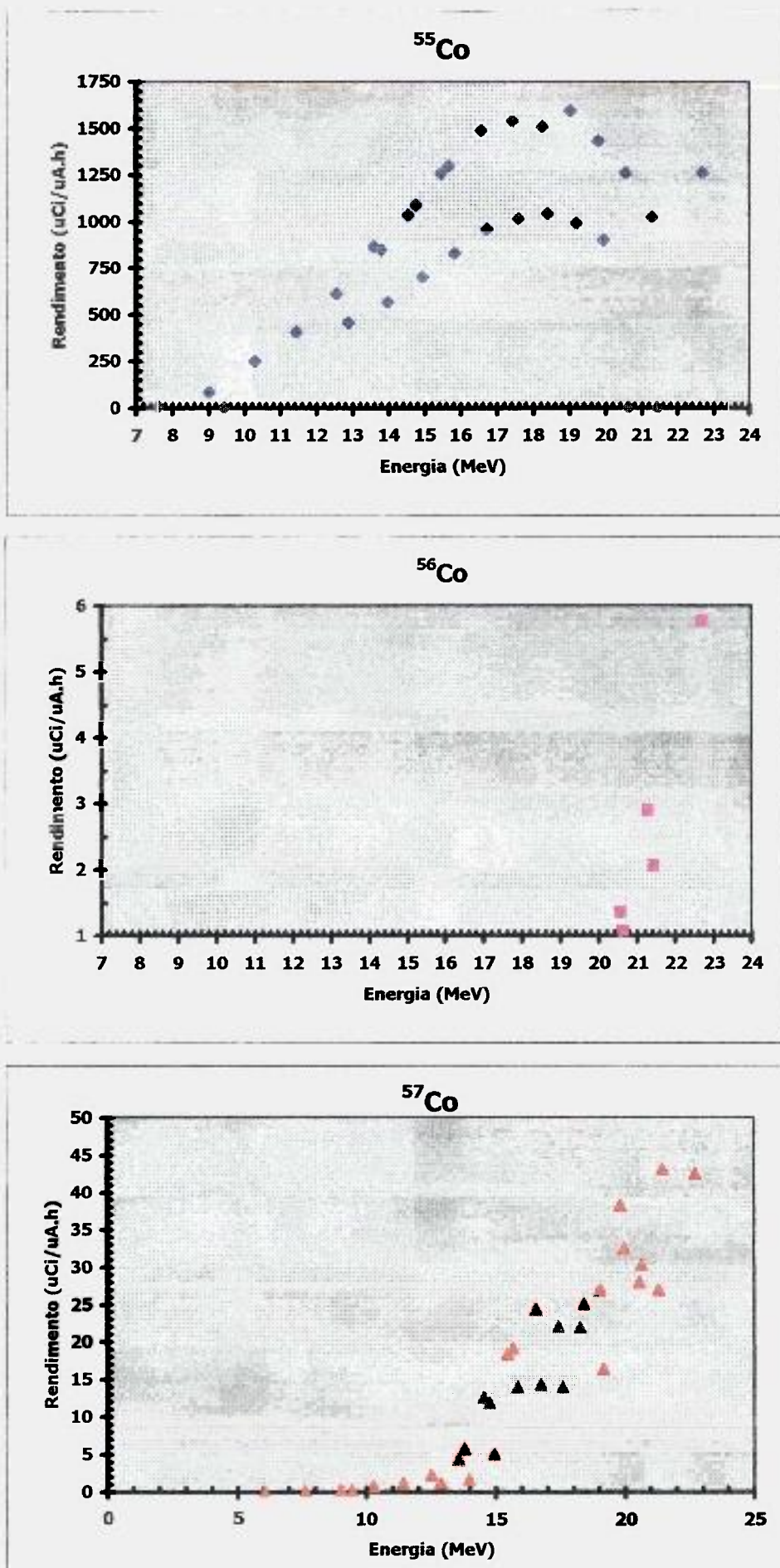


Figura 4.6: Rendimentos de produção teóricos obtidos para  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$  e  $^{57}\text{Co}$ , calculados pela expressão (3.9) e com as funções de excitação experimentais.

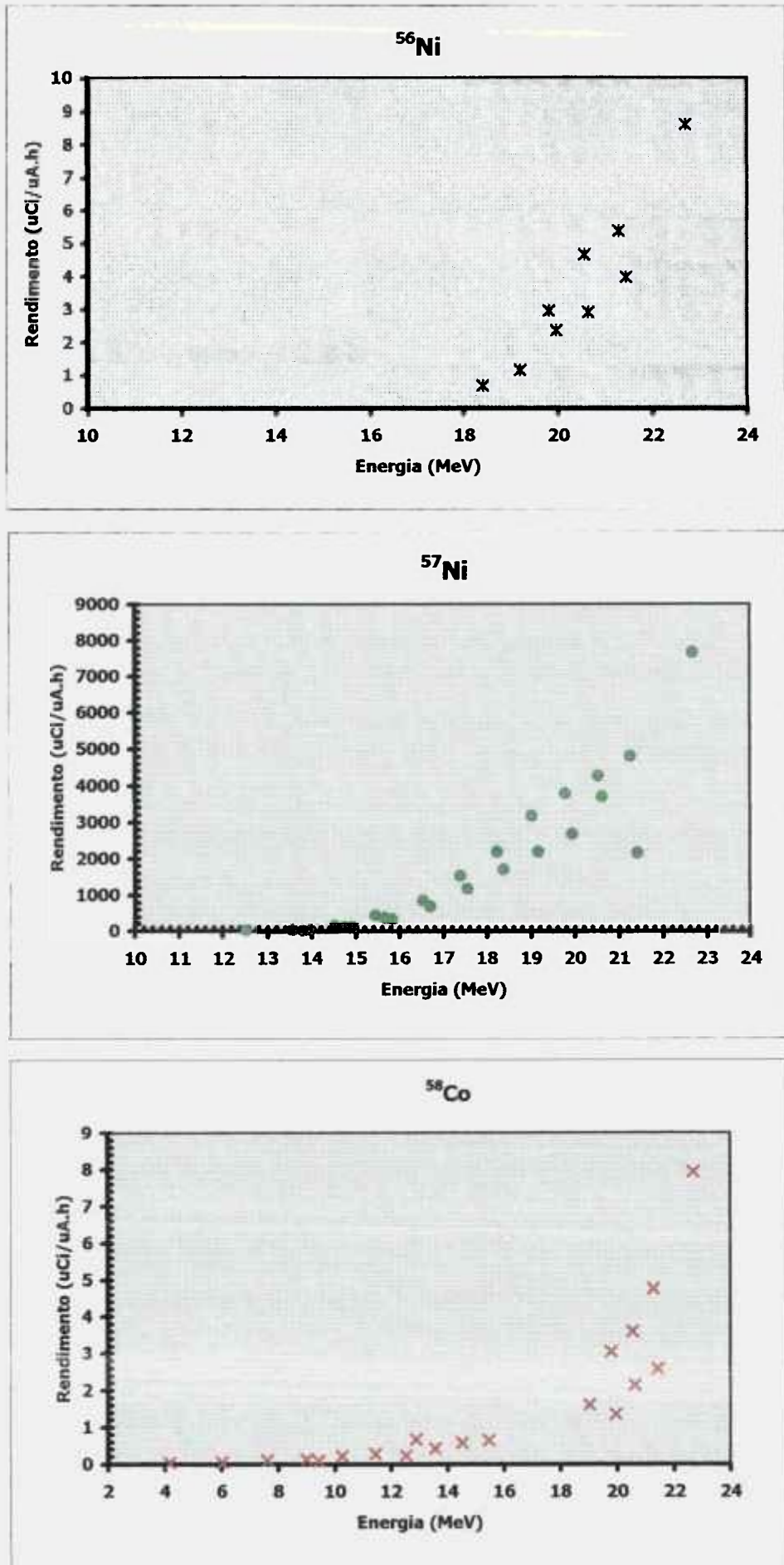


Figura 4.7: Rendimentos de produção teóricos obtidos para  $^{56}\text{Ni}$ ,  $^{57}\text{Ni}$  e  $^{58}\text{Co}$ , calculados pela expressão (3.9) e com as funções de excitação experimentais.

Usando-se os valores encontrados, calculou-se a energia real do feixe de prótons que era de 22,4MeV. O que se verifica, na prática, é que realmente a energia do Cíclotron é menor que a nominal (24MeV para prótons). Isto também era observado nas produções rotineiras de  $^{123}\text{I}$ , com este Cíclotron, nos quais os rendimentos de produção eram um pouco menores que aqueles obtidos com outros Cíclotrons do mesmo modelo de outros Institutos.

#### **4.2.4 Produção de Solução de $^{57}\text{CoCl}_2$**

##### **4.2.4.1 Irradiações de Ni**

Foram encontrados os mesmos radionuclídeos que aqueles produzidos nas irradiações para medidas de rendimento de alvo grosso e funções de excitação.

##### **4.2.4.2 Separação Química de Ni-Ni\*-Co\***

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

Na data da remessa do pedido havia, no total, 266,4MBq (7,2mCi) de Co, sendo enviados 6mCi com:  $^{57}\text{Co}$  - 97,58%;  $^{56}\text{Co}$  - 1,13% e  $^{58}\text{Co}$  - 1,29%. Das amostras coletadas para análise, a do eluído do Co era a mais importante, pois através dela verificou-se que o nível de Co presente estava em:  $^{57}\text{Co}$  - 97,70%;  $^{56}\text{Co}$  - 1,08% e  $^{58}\text{Co}$  - 1,22% (74dias após o *EOB*).

O rendimento de produção de  $^{57}\text{Co}$ , após a separação química, na data da remessa, era de 1,073MBq/ $\mu\text{A.h}$  (29 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ) 67dias após o *EOB*, mostrando ser um valor muito bom de acordo com Osso Jr. <sup>(60)</sup>.

A solução de  $^{57}\text{CoCl}_2$  de 222MBq (6mCi) fornecida mostrou a capacidade do Cíclotron CV-28 para esta produção. O uso desta solução como fonte, no *Centro de Medicina Nuclear*, foi apresentado por Dias Neto et al <sup>(79)</sup>. Neste estudo, foi avaliada a uniformidade do sistema de uma câmara de cintilação gama, com a fonte plana homogênea (*flood source*) e comparada com uma fonte comercial sólida de  $^{57}\text{Co}$  e uma fonte líquida de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  ( $t_{1/2}=6\text{h}$ ;  $E_\gamma=140,51\text{keV} - 85\%$ ). Os resultados mostraram a vantagem do uso da fonte plana homogênea de  $^{57}\text{Co}$ , além do custo ser menor.

#### 4.2.5 Produção de $^{57}\text{Co}$ e $^{109}\text{Cd}$

##### 4.2.5.1 Irradiações de Ni e Ag (alvo composto)

Os resultados obtidos nas contagens das folhas de Ni e Ag irradiadas são mostrados na Tabela 4.4. Foi verificada a presença de  $^{109}\text{Cd}$  ( $t_{1/2}=462,9\text{d}$ ;  $E_\gamma=88,03\text{keV} - 3,61\%$ ),  $^{107}\text{Cd}$  ( $t_{1/2}=6,5\text{h}$ ;  $E_\gamma=93,12\text{keV} - 4,79\%$ ) e  $^{106\text{m}}\text{Ag}$  ( $t_{1/2}=8,46\text{d}$ ;  $E_\gamma=450,6\text{keV} - 27,6\%$ ) nos alvos de Ag.

**Tabela 4.4: Rendimentos de produção médios dos radionuclídeos formados, corrigidos para o EOB, em alvos de  $^{\text{nat}}\text{Ni}$  e  $^{\text{nat}}\text{Ag}$  irradiados com feixe de prótons.**

Reação	Radionuclídeo	$R_{\text{direta}}$ (kBq/ $\mu\text{Ah}$ )	$R_{\text{indireta}}^*$ (kBq/ $\mu\text{Ah}$ )	$R_{\text{dir+ind}}^*$ (kBq/ $\mu\text{Ah}$ )
$^{\text{nat}}\text{Ni} + \text{p}$	$^{55}\text{Co}$	$33411,00 \pm 4699,00$	—	$0,74 \pm 0,00$
	$^{56}\text{Co}$	$16,50 \pm 3,33$	$2,59 \pm 0,74$	$16,28 \pm 3,33$
	$^{57}\text{Co}$	$947,94 \pm 239,39$	$259,00 \pm 35,15$	$1179,93 \pm 221,63$
	$^{58}\text{Co}$	$37,00 \pm 8,51$	—	$33,30 \pm 7,40$
	$^{56}\text{Ni}$	$45,14 \pm 12,58$	—	$12,58 \pm 3,33$
	$^{57}\text{Ni}$	$48270,94 \pm 6609,31$	—	$259,74 \pm 35,52$
$^{\text{nat}}\text{Ag} + \text{p}$	$^{109}\text{Cd}$	$71,41 \pm 5,55$	—	—
	$^{107}\text{Cd}$	$150244,42 \pm 52832,30$	—	—
	$^{106\text{m}}\text{Ag}$	$0,37 \pm 0,00$	—	—

\* 11,31dias após o EOB, que é o tempo no qual a atividade de  $^{57}\text{Co}$  é máxima, produzido somente pelo decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ .

No caso do  $^{57}\text{Co}$ , este valor médio obtido, de  $1179,93 \pm 221,63\text{kBq}/\mu\text{Ah}$  ( $31,89 \pm 5,99\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ ), é considerado muito bom e pode ser comparado com os valores da Tabela 4.2. Este valor é superior ao obtido no rendimento de alvo grosso, deste trabalho (item 4.2.2) e compatível com o encontrado no preparo da

solução de  $^{57}\text{CoCl}_2$  (item 4.2.4). Isto demonstra a instabilidade do feixe de prótons do Cíclotron *CV-28* durante a realização deste trabalho.

Para o  $^{109}\text{Cd}$ , o rendimento de produção médio encontrado neste trabalho,  $71,41 \pm 5,55 \text{ kBq}/\mu\text{A.h}$  ( $1,93 \pm 0,15 \mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$ ) está em boa concordância com o obtido por Mengatti et al <sup>(26)</sup>.

#### **4.2.5.2 Separação Química de Ni e Ag (alvo composto)**

A separação química do alvo composto de Ni e Ag obteve bons resultados nos ensaios iniciais. O rendimento de separação de  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$  foi maior que 80% em 60mL de HCl 0,1N. A concentração de Ni e Cu no produto final foi de  $(1,57 \pm 4,46\%) \text{ ppm}$  e  $(9,80 \pm 1,33\%) \text{ ppm}$ , respectivamente. Com estes valores, calcularam-se os rendimentos de separação química de Ni e Cu, que foram de 99,99% e 99,95%, respectivamente. A eluição de Ni e Cu pode ser acompanhada pela coloração (verde para o Ni e amarela para o Cu). O Ni foi eluído com 50mL de HCl 8N, e Cu com mais 150mL do mesmo eluente. A eluição de Ag foi acompanhada pelo traçador  $^{106\text{m}}\text{Ag}$ , que foi eluído nos primeiros 150mL do eluente HCl 8N. Não foi detectada a  $^{106\text{m}}\text{Ag}$  na solução final contendo  $^{109}\text{Cd}$  e  $^{57}\text{Co}$ .

#### **4.3 Escolha das Melhores Condições para a Produção de $^{57}\text{Co}$**

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

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

Se forem consideradas as reações direta e indireta para a produção de  $^{57}\text{Co}$ , o nível de impurezas de  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$  é elevado, como é mostrado na Figura 4.8. No

tempo máximo de crescimento do  $^{57}\text{Co}$ , o nível destas impurezas é de cerca de 6%, caindo para cerca de 4% após 60 dias de decaimento. Caso a opção seja a produção via decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ , o nível destas impurezas é reduzido, como mostra a Figura 4.9.

Para estes cálculos, assumiu-se que:

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

Neste caso, 11,31 dias após a separação química, o nível de  $^{56}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$  é cerca de 1,8%, caindo para 1,4% após 60 dias, aplicando-se os valores de rendimento de alvo grosso.

Levando-se em consideração os valores obtidos nas irradiações com alvo composto, os dois casos discutidos são otimizados, como mostram as Figuras 4.10 e 4.11. O nível de impurezas é de 4,19%, após 11,31 dias de decaimento e de 3,07%, após 60 dias (Figura 4.10), na produção de  $^{57}\text{Co}$  pelas reações direta e indireta. Este nível é de 1,88% e 1,60%, após 11,31 e 60 dias de decaimento, respectivamente, para a produção de  $^{57}\text{Co}$  por reação direta (Figura 4.11).

A Figura 4.12 mostra um diagrama do método proposto para a produção do  $^{57}\text{Co}$  via decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ . Observa-se que a proposta é aproveitar o  $^{57}\text{Co}$  presente na fase de separação química junto com os isótopos de Co produzidos diretamente, após um tempo adequado de decaimento.

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

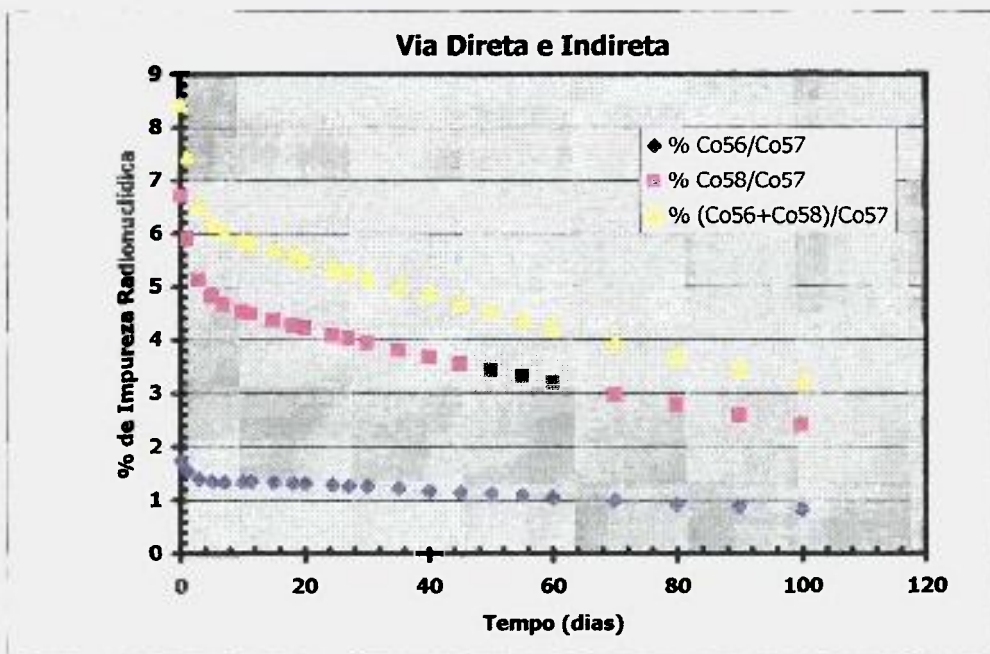


Figura 4.8: Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$  produzido direta e indiretamente, utilizando os valores experimentais obtidos para alvo grosso.

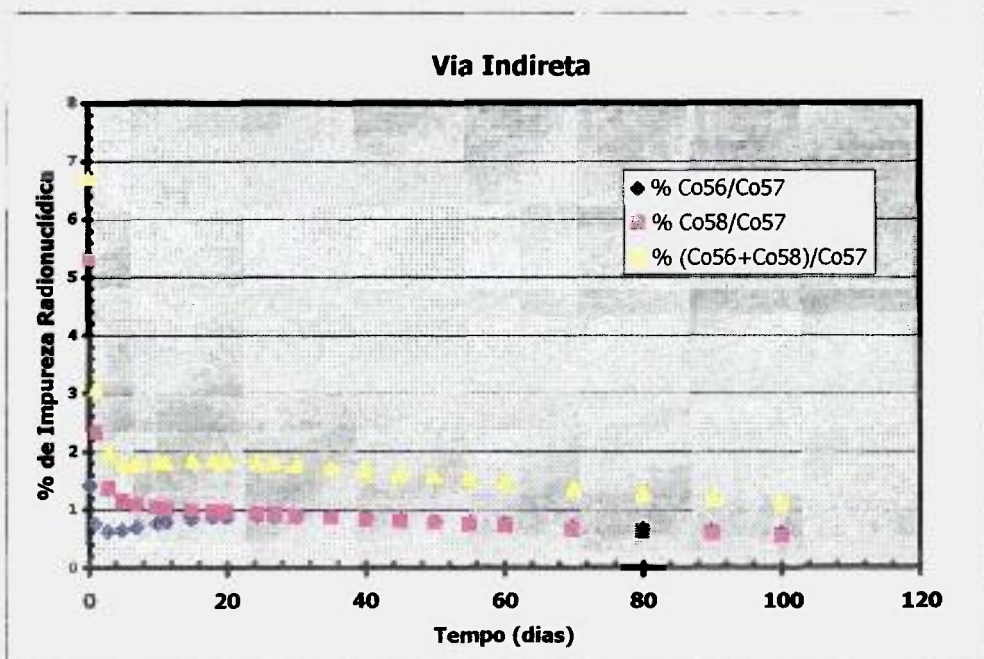


Figura 4.9: Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$  produzido indiretamente, utilizando os valores experimentais obtidos para alvo grosso.

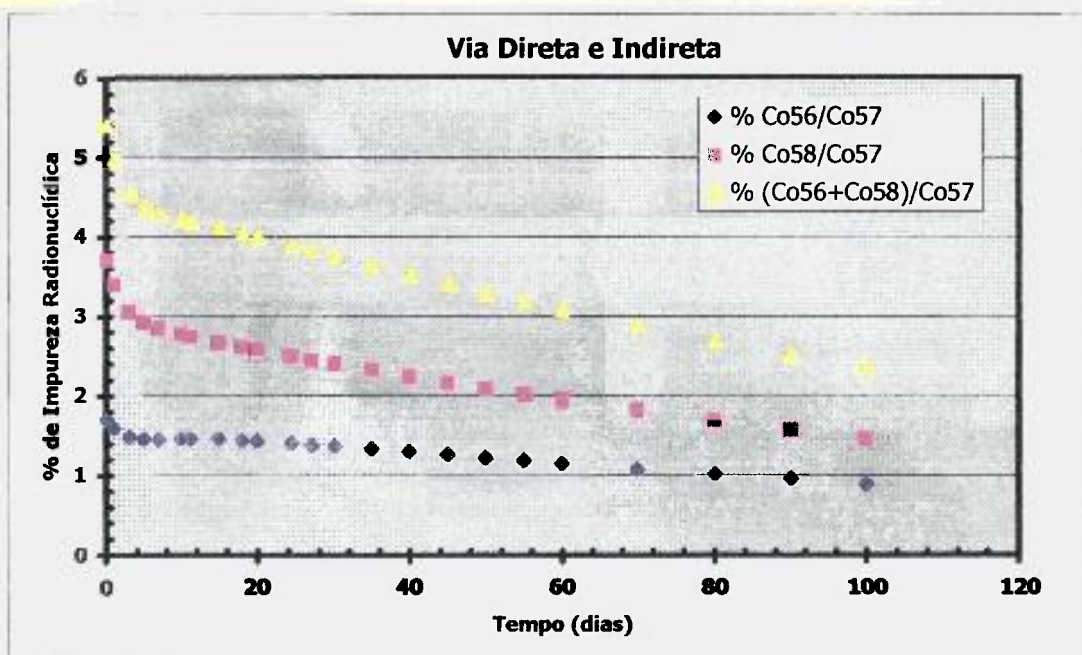


Figura 4.10: Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$  produzido direta e indiretamente, utilizando os valores experimentais obtidos para alvo composto.

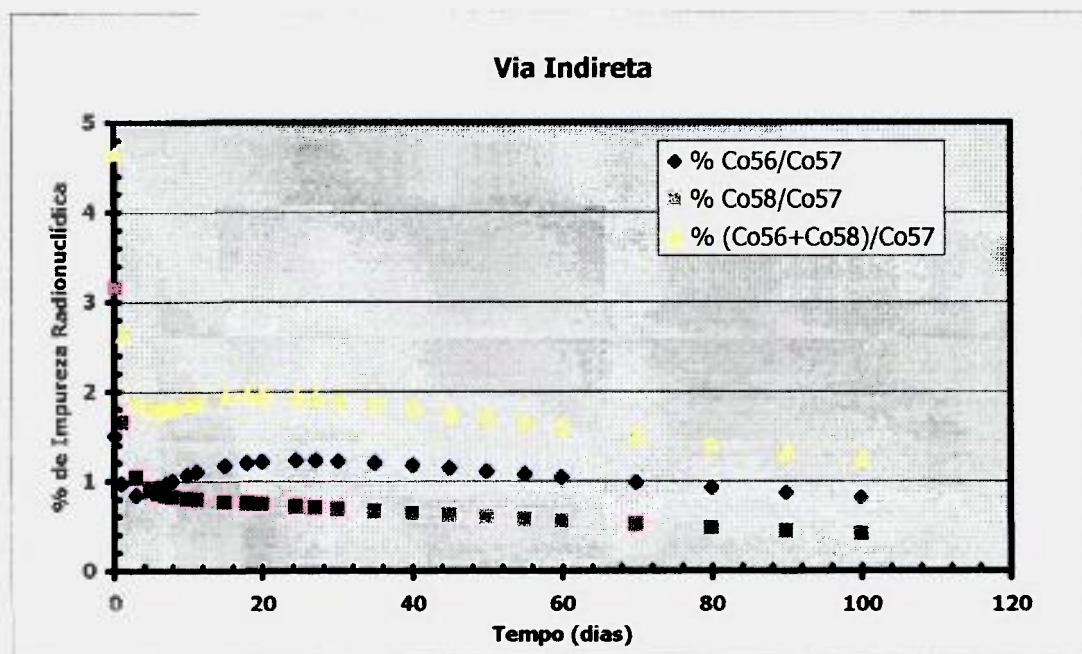


Figura 4.11: Nível de impurezas radionuclídicas no  $^{57}\text{Co}$  produzido indiretamente, utilizando os valores experimentais obtidos para alvo composto.

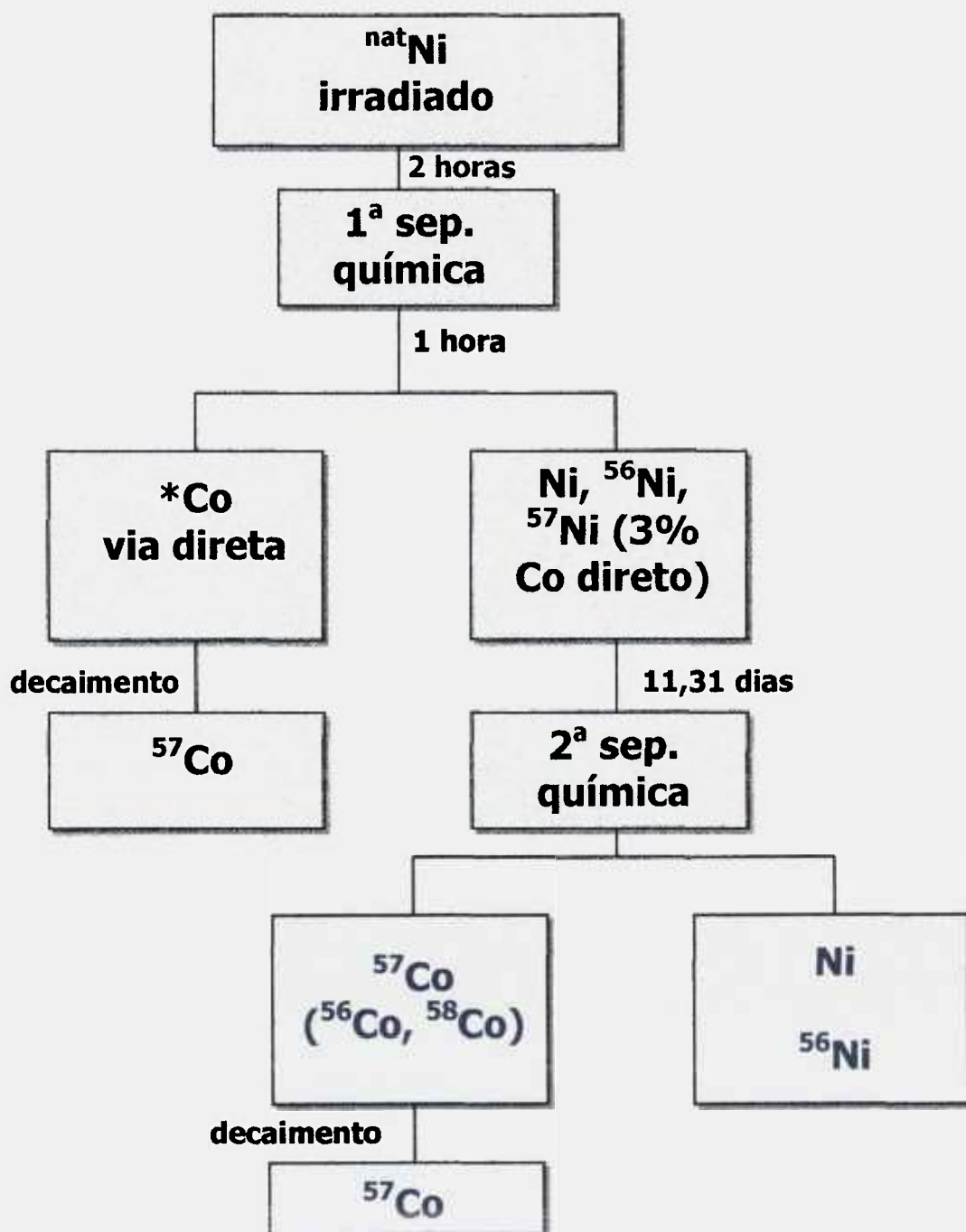


Figura 4.12: Diagrama do método proposto para a produção do  $^{57}\text{Co}$  via decaimento do  $^{57}\text{Ni}$ .

## **CAPÍTULO 5**

### **CONCLUSÕES**

Os objetivos propostos neste trabalho foram alcançados, apesar da interrupção das irradiações para pesquisa, no Cíclotron *CV-28*, durante a instalação do novo Cíclotron, o *Cyclone 30*.

Foram medidas as funções de excitação das reações de  $^{nat}\text{Ni}$  com prótons e estas foram comparadas com as existentes em literatura e as geradas pelo código *ALICE*. A concordância, em geral, foi boa, principalmente na forma das curvas, as quais mostram que a produção de  $^{56}\text{Co}$  direta ou indiretamente é favorecida por energias de prótons acima de 20MeV, enquanto que o  $^{58}\text{Co}$  é produzido em toda a faixa de energia estudada. Já a produção de  $^{57}\text{Co}$ , direta ou indiretamente, é favorecida com energias maiores que 14MeV. Com estes dados, foram calculados os rendimentos de produção teóricos, e nestas curvas especialmente, a de  $^{55}\text{Co}$ , observa-se uma flutuação dos dados, causadas principalmente pela instabilidade do feixe de prótons e aos erros na integração de corrente.

As medidas de rendimento de alvo grosso também sofreram desvios significativos pelos mesmos motivos, mas para o preparo da solução de  $^{57}\text{CoCl}_2$  e seu uso mostraram a viabilidade de produção de  $^{57}\text{Co}$  para este fim, mesmo no Cíclotron *CV-28*.

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

Os rendimentos de produção de  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$  obtidos nas irradiações dos alvos compostos de Ni e Ag, demonstraram a viabilidade de seu uso e conseqüente otimização do uso do feixe de prótons, diminuindo o tempo de irradiação para produção de  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$ , além dos respectivos custos. O desempenho da separação química mostra ser viável a preparação de uma fonte mista de  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$ .

Se for irradiado Ni com prótons de 30MeV, o rendimento de produção de  $^{57}\text{Co}$  será maior, tanto direta como indiretamente. A atividade total pode ser multiplicada por pelo menos um fator de 5, porque ele pode acelerar feixes com correntes de pelo menos 100 $\mu\text{A}$ . Além disso, há a possibilidade de estudar a irradiação de Co com prótons, que fornece  $^{57}\text{Co}$  com pureza radionuclídica maior.

Quanto aos custos da produção de  $^{57}\text{Co}$ , uma fonte importada de  $^{57}\text{CoCl}_2$  custa U\$359.00 (trezentos e cinquenta e nove dólares) o mCi (37MBq), em HCl 0,1N. <sup>(82)</sup>. Portanto, fica difícil fazer uma estimativa no IPEN, porque a produção rotineira só pode ser feita utilizando-se o *Cyclone 30* e ainda não houve oportunidade de se irradiar Ni neste acelerador. O uso de  $^{58}\text{Ni}$  enriquecido (99,93% - custo: U\$1.02/mg)<sup>(83)</sup> aumentaria o rendimento de produção de  $^{57}\text{Co}$  em cerca de 30%, reduziria muito o nível de impureza de  $^{58}\text{Co}$ , mas aumentaria também a de  $^{56}\text{Co}$ . Além disso, haveria necessidade de recuperação de Ni após a separação química para tornar o processo economicamente viável. Como comparação, o mg do alvo natural de Ni é de aproximadamente U\$0.02 <sup>(84)</sup>.

Uma fonte importada de  $^{109}\text{Cd}$  (em HCl 1M) custa U\$65.00/mCi <sup>(83)</sup>. O preço da Ag enriquecida em  $^{109}\text{Ag}$  a 99,42% é de U\$3.95 por mg <sup>(84)</sup> e aumentaria o rendimento de produção do  $^{109}\text{Cd}$  em torno de 50%. Como em todo caso no qual se utiliza alvo enriquecido, seria necessário realizar a recuperação da Ag após a separação química, enquanto um alvo de Ag natural custa aproximadamente U\$0.08 o mg <sup>(84)</sup>.

**REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS**

1. BROWNE, E.; FIRESTONE, R.B. **Table of Radioactive Isotopes**. Virginia S. Shirley (Ed.) – John Wiley and Sons. 8<sup>th</sup> Edition, New York, 1996.
2. GOETZ, L.; SABBIONI, E.; MARAFANTE, E.; BIRATTARI, C. BONARDI, M. Cyclotron production of  $^{107}\text{Cd}$ ,  $^{109}\text{Cd}$  for use in metallobiochemistry of heavy metal pollution. **Radiochem. Radioanal. Letters**, **45(1)**, 51-60, 1980.
3. SAWHNEY, K.J.S.; TIWARI, M.K.; SINGH, A.K.; NANDEDKAR, R.V. The energy dispersive X-ray fluorescence spectrometer at CAT, Indore. Proc. in... 6<sup>th</sup> National Seminar on X-Ray Spectroscopy and Allied Areas 97, New Delhi, 17-19 November 1997, p.130-133.
4. IPL Medical Products. <http://isotopeproducts.com/medprod.html>
5. MDS Nordion. <http://www.mds.nordion.com/business/products/uses/html>
6. HARVARD MEDICAL WEB.  
<http://www.med.harvard.edu/JPNM/physics/isotopes/Co/Co57/uses.html>
7. BRINGHAM, D.; HARRISON, J.D.; PHIPPS, A.W. Biokinetics and dosimetry of Chromium, Cobalt, Hydrogen, Iron and Zinc radionuclides in male reproductive tissues of the rat. **Int. J. Radiat. Biol.** **72(2)**, 235-248, 1997.
8. CHOPPIN, G.; RYDBERG, J.; LILJENZIN, J.O. **Radiochemistry and Nuclear Chemistry**. London – Butterworth, 1995. p.388; p.513; p.5; p.35.
9. HELUS, F. **Radionuclides Production**. Florida, CRC Press, 1983. v.2, p.13; p.104.

10. OSSO Jr., J.A.  **$^{77}\text{Br}$  Isotope Production for Medical Use.** Manchester, England, 1986. Doctor of Philosophy - Faculty of Science, University of Manchester.
11. SANTOS, L.L.M. **Desenvolvimento de Sistema de Irradiação de Água Natural para a produção de  $^{18}\text{F}$  no Cíclotron do IPEN.** São Paulo, 1994. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
12. THE CYCLOTRON CORPORATION. **Instruction and Service Manual for the Cyclotron Corporation's - Model CV-28 Cyclotron- Ser.Nº604,** São Paulo, 1976 (TCC Ins-26).
13. INSTITUT NATIONAL DE RECHERCHE EN INFORMATIQUE ET AUTOMATIQUE. <http://www.inria.fr/epidaure/personnel/bondiau/bondiau.html>
14. ARAUJO, S.G. **Otimização do Sistema de Alvo Interno do Cíclotron CV-28 do IPEN.** São Paulo, 1996. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
15. QAIM, S.M. Target Development for Medical Radioisotope Production at a Cyclotron. **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A282:289-95,** 1989.
16. RAYUDU, G.V.S. **Radiotracers for Medical Applications.** Boca raton, Florida, CRC Press, 1983. v.1, p.32, Chapter 2 – Commercial Production of Radioisotopes for Nuclear Medicine (LAMB, J.F. AND KRAMER, H.H.)
17. UNIVERSITY OF SHEFFIELD. <http://www.shef.ac.uk/uni/academic/A-C/chem/web-elements/nofr-hist/periodic-table.html> (Out/1997).

18. SEELMANN-EGGEBERT, W.; PFENNIG, G.; MÜNZEL, H.; NEBENIUS, H.K. **Chart of Nuclides**. Auflage, 1981. Institut für Radiochimie.
19. KRASNOV, N.N.; SEVASTJANOV, YU. G. Production of Cadmium-109 in Nuclear Reactors by Neutron Irradiation of Silver. **Int. J. Appl. Radiat. Isot.** **30**, 783-784, 1979.
20. BEDA, A.G.; DAVYDOV, A.V.; LYAKHOV, A.V.; SHCHEKIN, K.I. Production of  $^{109}\text{Cd}$  by Irradiating  $^{107}\text{Ag}$  with Reactor Neutrons. **Sov. Atom. Energy** **47(2)**, 626-629, 1979.
21. OSSO Jr., J.A. Comunicação Pessoal.
22. STRELOW, F.W.E. Improved Separation of Cadmium-109 from Silver Cyclotron Targets by Anion-Exchange Chromatography in Nitric Acid-Hydrobromic Acid Mixtures. **Analytica Chimica Acta**: **97**, 87-91, 1978.
23. TERRY, J.W. Production of Radioisotopes in the ORNL 86-inch Cyclotron. **IEEE Transactions on Nuclear Science**, **NS-28(2)**, 1597-1598, 1981.
24. SMITH-JONES, P.M.; STRELOW, F.W.E.; HAASBROEK, F.J.; BÖHMER, R.G. Production of Carrier Free  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{57}\text{Co}$  and  $^{54}\text{Mn}$  from a Composite Cyclotron Target of Enriched Silver-109 and Iron-56. **Appl. Radiat. Isot.**, **39(10)**, 1073-1078, 1988.
25. NORTIER, F.M.; MILLS, S.J.; STEYN, G.F. Excitation functions for the Production of  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{109}\text{In}$  and  $^{109}\text{Sn}$  in Proton Bombardment of Indium up to 200MeV. **Appl. Radiat. Isot.**, **42(11)**, 1105-1107, 1991.

26. MENGATTI, J.; SCAMBATTI, E.M.; SUMIYA, J.B.; SCIANI, V.; OSSO Jr., J.A. Separação Química do  $^{109}\text{Cd}$  da Prata Irradiada com Prótons em Cíclotron. **ANAIS do IV CGEN**, Rio de Janeiro, 5 a 9 de Julho, 1992. Vol.1., p. 145-6.
27. ZAIDI, J.H.; KARIM, H.M.A.; ARIF, M.; QURESHI, I.H.; QAIM, S.M. Measurement of Fission Neutron Spectrum Averaged Cross Sections of Some Threshold Reactions on Nickel: Small Scale Production of  $^{57}\text{Co}$  in a Nuclear Reactor. **Radiochim. Acta**, **60**:169-72, 1993.
28. WILLIAMS, I.R.; FULMER, C.B. Excitation Functions for Radioactive Isotopes Produced by Protons below 60 MeV on Al, Fe and Cu. **Phys. Rev.**, **162(4)**:1055-61, 1967.
29. GRÜTTER, A. Excitation Functions for Radioactive Isotopes Produced by Proton Bombardment of Cu and Al in the Energy Range of 16 to 70 MeV. **Nucl. Phys.**, **A383**:98-108, 1982.
30. MILLS, S.J.; STEYN, G.F.; NORTIER, F.M. Experimental and Theoretical Excitation Functions of Radionuclides Produced in Proton Bombardment of Copper up to 200 MeV. **Appl. Radiat. Isot.**, **43(8)**:1019-30, 1992.
31. WATANABE, M.; NAKAHARA, H.; MURAKAMI, Y.  $^3\text{He}$  Bombardment of Manganese for the Production of  $^{55}\text{Co}$ . **Int. J. Appl. Radiat. Isot.**, **30**:625-30, 1979.
32. DAS, M.K.; RAMAMOORTHY, N.; SARKAR, B.R.; MANI, R.S. Studies on the Feasibility of Production of  $^{57}\text{Co}$  by Alpha Bombardment of Mn and Ni Targets. **J. Radioanal. Nucl. Chem.**, **111(2)**: 469-75, 1987.

33. HAZAN, J.P.; BLANN, M. Excitation Functions, Recoil Ranges, and Statistical Theory Analysis of Reactions Induced in  $^{56}\text{Fe}$  with 6-29 MeV  $^3\text{He}$  Ions. **Phys. Rev.**, **137(5B)**: 1202-13, 1965.
34. KRASNOV, N.N.; DMITRIYEV, P.P.; KONSTANTINOV, I.O.; KONJAKIN, N.A.; PONOMAREV, A.A.; OGNEV, A.A.; ROMANCHEKO, A.E.; TUYEV, V.M. Radioisotope Production in the I. Ph. P.E. Cyclotron. **Proc. in... Conf. Uses of Cyclotron in Chemistry Metallurgy and Biology**. p.159 - Butterworths, London, 1970.
35. SHARMA, H.; ZWEIT, J.; SMITH, A.M.; DOWNEY, S. Production of Cobalt-55, a Short-lived Positron Emitting Radiolabel for Bleomycin. **Appl. Radiat. Isot.** **37(2)**: 105- 9, 1986.
36. YANG, J.X.; YU, Y.G.; DU, H.S.; CHEN, X.L. Preparation of  $^{57}\text{Co}$  Standard Solution and its Activity Measurement. **Radioanal. Nucl. Chem.** **205 (1)**, 157-166, 1996.
37. TAKÁCS, S.; SZELECSÉNYI, F.; TÁRKÁNYI, F. The use of cross section data for monitoring charged particle beam parameters. **Proc. in... Cyclotrons and Their Applications 98**, Caen, 14-19 June 1998, p.246-249.
38. SINGH, N.L.; SHAH, D.J.; PATEL, H.B. Investigation of  $(\alpha, xnyp)$  reactions on Fe-56. **Canadian Journal of Physics**, **76 (10)**, 785-791, 1998.
39. TAKÁCS, S.; VASVÁRY, L.; TÁRKÁNYI, F. Remeasurement and Compilation of excitation function of proton induced reactions on iron for activation techniques. **Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.** **B89**, 88-94, 1994.

40. SHARP, R.A.; DIAMOND, R.M.; WILKINSON G. Nuclear Reactions of Cobalt with Protons 0 to 100 MeV Energy. **Phys. Rev.**, **101(5)**:1493-1504, 1956.
41. MICHEL, R.; BRINKMANN, G.; WEIGEL, H.; HERR, W. Measurement and Hybrid-Model Analysis of Proton Induced Reactions with V, Fe and Co. **Nucl. Phys. A322**, 40-60, 1979.
42. JOHNSON, P.; LAGUNAS-SOLAR, M.C.; AVILA, M.J. The Indirect Production of No-Carrier-Added  $^{57}\text{Co}$  via the  $^{59}\text{Co}(p,n)^{57}\text{Ni} \rightarrow ^{57}\text{Co}$  Reaction. **Int. J. Appl. Radiat. Isot.**, **35(5)**:371-6, 1984.
43. MICHEL, R.; PEIFFER, F.; STÜCK, R. Measurement and Hybrid-Model Analysis of Integral Excitation Functions for Proton-Induced Reactions on Vanadium, Manganese and Cobalt up to 200MeV. **Nucl. Phys. A441**, 617-639, 1985.
44. ZAITSEVA, N.G.; DEPTULA, C.; KNOTEK, O.; KIM SEN KHAN; MIKOLAEWSKI, S.; MIKEÉ, P.; RURARZ, E.; KHALKIN, V.A.; KONOV, V.A.; POPINENKOVA, L.M. Cross Sections for the 100MeV Proton-Induced Nuclear Reactions and Yields of some Radionuclides Used in Nuclear Medicine. **Radiochim. Acta** **54**, 57-72, 1991.
45. LAGUNAS-SOLAR, M.C.; HAFF, R.P. Theoretical and Experimental Excitation Functions for Protons Induced Nuclear Reactions on Z=10 to Z=82 Target Nuclides. **Radiochim. Acta** **60**, 57-67, 1993.
46. ZWEIT, J.; CARNOCHAN, P.; GOODALL, R.; OTT, R.J. Excitation Functions of Proton Induced Reactions on Cobalt: Production of No-Carrier-Added Nickel-57, a Positron Emitting Label for Doxorubicin. **Appl. Radiat. Isot.**, **44(12)**, 1411-1416, 1993.

47. TANAKA, S. J. **Phys. Soc. Japan**, **15**:2159, 1960.
48. HOUCK, F.S.; MILLER, J.M. Reactions of Alpha Particles with Iron-54 and Nickel-58. **Phys. Rev.**, **123(1)**:231-40, 1961.
49. BLANN, M.; MERKEL, G. **Nucl. Phys.**, **52**:673, 1964.
50. MURAMATSU, H.; SHIRAI, E.; NAKAHARA, H.; MURAKAMI, Y. Alpha Particle Bombardment of Natural Nickel Target for the Production of  $^{61}\text{Cu}$ . **Int. J. Appl. Radiat. Isot.**, **29**:611-4, 1978.
51. TAKÁCS, S.; TÁRKÁNYI, F.; KOVÁCS, Z. "Excitation Function of alpha-particle induced reactions on natural nickel". **Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B113**, 424-428, 1996.
52. ZWEIT, J.; SMITH, A.M.; DOWNEY, S.; SHARMA, H.L. Excitation Functions for Deuteron Induced Reactions in Natural Nickel: Production of No Carrier Added  $^{64}\text{Cu}$  from Enriched  $^{64}\text{Ni}$  Targets for Positron Emission Tomography. **Appl. Radiat. Isot.**, **42(2)**:193-7, 1991.
53. TAKÁCS, S.; TÁRKÁNYI, F.; FESSLER, A.; ALFASSI, B. QAIM, S.M. Excitation Functions of  $^3\text{He}$ -Particle Induced Nuclear Reactions on Natural Ni with Special Reference to the Monitoring of Beam Energy and Intensity. **Appl. Radiat. Isot.**, **46(4)**, 249-253, 1995.
54. KAUFMAN, S. Reactions of Protons with  $^{58}\text{Ni}$  and  $^{60}\text{Ni}$ . **Phys. Rev.**, **117(6)**:1532-8, 1960.
55. EWART, H.A.; BLANN, M. Private Communication, University of Rochester, 1964.

56. GILLETTE, J.H. Review of Radioisotope Program, 1964. **ORNL-3802 UC-23** (May, 1965).
57. BARRANDON, J.N., DEBRON, J.R.; KOHN, A.; SPEAR, R.H. Étude du Dosage de Ti, V, Cr, Fe, Ni, Cu et Zn par Activation avec des Protons D'Energie Limitée a 20 MeV. **Nucl. Instrum. Meth.**, **127**:269-78, 1975.
58. BRINKMAN, G.A.; HELMER, J.; LINDNER, L. Nickel and Copper Foils as Monitors for Cyclotron Beam Intensities. **Radiochem. Radioanal. Letters**, **28(1)**:9-20, 1977.
59. GUREEV, E.S.; ISLAMOV, T.; USACHENKO, V.S.; MAMATKAZINA, A.Kh. Carrier Free Preparation of Cobalt-57. **Radiokhimiya**, **23(1)**:158-63, 1981.
60. OSSO Jr., J.A. Produção de Fontes de Calibração para Detetores de Raios-X:  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{57}\text{Co}$  e  $^{109}\text{Cd}$ . **ANAIS da X Reunião de Trabalhos em Física Nuclear**, 26 a 30 de agosto, 1987, Caxambu, MG. p.57-8.
61. RYLOV, A.A.; GULAMOV, I.R.; PORTYANKO, A.P.; YULDASHEV, B.S. A Fast Method for Producing Super-Pure Radionuclide  $^{57}\text{Co}$  at the classical 1.5 Meter Cyclotron of the Institute of Nuclear Physics Ac.Sc.RUZ. **Proc. in...** 14<sup>th</sup> International Conference of Cyclotrons and Their Applications, Cape Town, South Africa, 8-13 October 1995. (Ed. John Cornell) p. 556-558.
62. SONCK, M.; HERMANNE, A.; SZELECSÉNYI, F.; TAKÁCS, S.; TARKÁNYI. Study of the  $^{nat}\text{Ni}(p,x)^{57}\text{Ni}$  Process up to 44MeV for Monitor Purposes. **Appl. Radiat. Isot.** **12**, 1533-1536, 1998.

63. REIMER, P.; QAIM, S.M. Excitation Functions of proton induced reactions on highly enriched  $^{58}\text{Ni}$  with special relevance to the production of  $^{55}\text{Co}$  and  $^{57}\text{Co}$ . **Radiochim. Acta** **80**, 113-120, 1998.
64. SPELLERBERG, S.; REIMER, P.; BLESSING, G.; COENEN, H.H.; QAIM, S.M. Production of  $^{55}\text{Co}$  and  $^{57}\text{Co}$  via Proton Induced Reactions on Highly Enriched  $^{58}\text{Ni}$ . **Appl. Radiat. Isot.** **12**, 1519-1522, 1998.
65. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Handbook on Nuclear Activation Data. **Technical Reports Series 273**, IAEA, Viena, Austria, 1987. Chap.3-1: NOWOTNY, R.; UHL, M. p.441-477.
66. OSSO Jr., J.A. **Produção de  $^{111}\text{In}$  para Diagnóstico em Medicina Nuclear**. Rio de Janeiro, 1982. Dissertação (Mestrado) – Universidade Federal do Rio de Janeiro.
67. KELLER, K.A.; LANGE, J.; MÜNZEL, H. Estimation of Unknown Excitation Functions and Thick Target Yields for p, d,  $^3\text{He}$  and Alpha Reactions. Landolt-Börnstein New Series Group I, Vol.5c, Springer-Verlag, Berlin (West), 1973.
68. QAIM, S.M. Nuclear Data Relevant to Cyclotron produced short-lived Medical Radioisotopes. **Radiochim. Acta** **30**, 147-162, 1982.
69. ZHUANG, Y. The Evaluation and Calculation on Charged Particle Nuclear Data for Medical Radioisotope Production. **Proc. in...** International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Trieste, 1997. Conference Proceedings of Italian Physical Society, vol.59.

70. KURENKOV, N.V.; LUNEV, V.P.; SHUBIN, YU.N. Evaluation of calculation methods for excitation functions for the production of radioisotopes of iodine, thallium and other elements. **Appl. Rad. Isot.** **50**, 541-549, 1999.
71. BLANN, M. Calculation of Excitation Functions with Code ALICE. LAWRENCE LIVERMORE NATIONAL LABORATORY, **UCRL-95918**, 1987.
72. CAI, C.H.; SHEN, Q.B.; YU, Z.Q. CCRMN – A Program for Calculating Complex reactions of a Medium-Heavy Nucleus with Six Light Particles. Computer Code Abstract. **Nucl. Sci. Eng.** **126**, p.127-129, 1997.
73. CLAYTON, C.G. Some Comments on the Development of Radiation and Radioisotope Measurement Applications in Industry. **Appl. Radiat. Isot.** **41(10/11)**, 917-934, 1990.
74. PARREIRA, P.S.; NASCIMENTO FILHO, V.F. Caracterização de Fosfatos e Fosfogesso por Fluorescência de Raios-X com Fontes Radioativas de  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{109}\text{Cd}$ . **Anais do VII CGEN em CD-ROM**, Belo Horizonte (MG), 31 de Agosto a 3 de Setembro de 1999. 5p.
75. DIMOV, G.I. Use of Hydrogen negative ions in particle accelerators. **Rev. Sci. Instrum.** **67 (10)**, 3393-3404, 1996.
76. Atomic Data and Nuclear Data Table - Atomic Mass Table – Part I, p.175-214, 1977.
77. JANNI, J.F. Proton Range – Energy Tables, 1keV-1GeV – Part.2. **Atomic Data and Nuclear Data Tables**, **27(4/5)**, p.341-529, 1982.

78. KOPECKÝ, P. Proton Beam Monitoring via the  $\text{Cu}(p,x)^{58}\text{Co}$ ,  $^{63}\text{Cu}(p,2n)^{62}\text{Zn}$  and  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$  Reactions in Copper. **Int. J. Appl. Radiat. Isot.** **36(8)**:657-661, 1985.
79. DIAS-NETO, A; SILVA, C.P.G.; OSSO Jr., J.A.; SOKOLE, E. A new refillable Cobalt-57 flood phantom to measure camera uniformity. **Proc. in...** XV Congresso da Associação Latino Americana de Sociedades de Biologia e Medicina Nuclear, Lima, Peru, 1997.
80. OSSO Jr., J.A. Produção de Fontes de Calibração e/ou Traçadores Radioativos com o Cíclotron CV-28. **Proc. in...** III ENAN, vol.II, 1995. Águas de Lindóia, SP, Brasil. p. 1034-1036.
81. TARKÁNYI, F.; SZELECSÉNYI, F.; KOPÉCKÝI, P. Excitation Functions of Proton Induced Nuclear Reactions on Natural Nickel for Monitoring Beam Energy and Intensity. **Appl. Radiat. Isot.** **42(6)**, p.513-517, 1991.
82. AMERICAN RADIOLABELED CHEMICALS INC. <http://arc-inc.com> (Dez/1999).
83. Oak Ridge National Laboratory. Isotope Distribution Office. <http://www.ornl.gov/isotopes/catalog.htm> (Mai/2000).
84. Goodfellow. <http://www.goodfellow.com> (Jun/2000).