

# REAÇÕES NUCLEARES INDUZIDAS POR PRÓTONS EM NÍQUEL NATURAL, PARA A PRODUÇÃO DE $^{57}\text{Co}$ , NO CÍCLOTRON DO IPEN

Liliane Landini Mota Santos e João Alberto Osso Júnior

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

## RESUMO

Este trabalho descreve a utilização de Níquel natural, em medidas de funções de excitação, isto é, seção de choque versus energia ( $\sigma \times E$ ), para a produção de  $^{57}\text{Co}$  e dos radionuclídeos  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ , determinados através das reações nucleares do tipo  $^{nat}\text{Ni}(p,x)$ . Folhas de Níquel natural de 99,98 % de pureza foram usadas como alvos, junto com folhas de Cobre de 99,99+ % de pureza (ambas da Goodfellow Metals) e Alumínio naturais, adotando, deste modo, a técnica de empilhamento de folhas, já bastante conhecida. O alumínio serviu como degradador da energia do feixe de prótons. As pilhas de alvos foram irradiadas na linha de feixe externo n<sup>o</sup> 4 (que possui sistema de varredura), do Ciclotron CV-28 do IPEN-CNEN/SP, na região de 4-23 MeV de energia, com correntes de feixe média de 1,5  $\mu\text{A}$  em tempos de até 17 min. As análises radioativas dos alvos foram feitas por Espectroscopia Gama, utilizando-se um detector de Ge(HP).

## I. INTRODUÇÃO

No ciclotron CV-28, compacto, de energia variável, da *The Cyclotron Corporation* (TCC), instalado no IPEN-CNEN/SP é possível acelerar prótons de 2 a 24 MeV de energia. Sendo assim, torna-se viável a produção de vários radioisótopos, adotando este equipamento. O  $^{57}\text{Co}$  é um deles. Ele é um radionuclídeo que possui uma meia-vida de 271,3 dias e que decai por captura eletrônica para o  $^{57}\text{Fe}$ . Neste decaimento, há a emissão de raios  $\gamma$  de energias de 14,4 keV (abundância de 7,8 %), 122,56 keV (84,8 %), 136 keV (11,4 %) e 690 keV (0,2 %), além do raio-X característico da camada K do Fe, com energia de 6,5 keV (48 %). Estas propriedades físicas de decaimento permitem que ele seja amplamente utilizado como:

- (a) fonte de calibração de detectores de raios-X e raios  $\gamma$ : Ge(Li), Ge(HP) e NaI(Tl);
- (b) fonte de calibração de detectores de poço (calibradores de radioisótopos), aplicados em centros de Medicina Nuclear, nos centros de Produção de Radioisótopos, nos Institutos de Pesquisas e Universidades do Brasil;
- (c) fonte de calibração e de controle de qualidade dos detectores usados em diagnóstico na Medicina Nuclear, isto é, câmaras de cintilação (No Brasil, o controle de qualidade destas câmaras é feito, hoje em dia, de forma precária com  $^{99m}\text{Tc}$ . Porém, o ideal é o  $^{57}\text{Co}$ );

(d) fonte radioativa na técnica de Espectroscopia Mössbauer, que é bem estabelecida em Física e Química.

Além destas utilizações, pode-se citar também sua aplicação como radiofármaco, em Medicina Nuclear: vitamina B12 e Radiobleomicina, marcados com  $^{57}\text{Co}$ , para o diagnóstico de Anemia.

A produção de  $^{57}\text{Co}$  pode ser feita tanto em ciclotrons, como em reatores nucleares. Contudo, os primeiros são utilizados em escala maior que os segundos. É possível empregar prótons, deuteron,  $^3\text{He}^{++}$  e partículas alfa para produzir  $^{57}\text{Co}$ , nas irradiações em ciclotron (todas estas 4 partículas capazes de serem aceleradas no do IPEN). Das que utilizam prótons, como  $\text{Co}+p$ ,  $\text{Fe}+p$  e  $\text{Ni}+p$ , o primeiro método gera quantidades menores de impurezas radionuclídicas, mas há necessidade de se ter energia mínima de 40 MeV, a qual não é possível adotar no Ciclotron do IPEN, que acelera somente prótons, atualmente, com energia máxima (nominal) de 24 MeV, como dito anteriormente. Sendo assim, a irradiação de Ni com prótons, que é o método que gera o maior rendimento de produção de  $^{57}\text{Co}$ , é o mais adequado para produzir este radioisótopo no Instituto.

Percebe-se, então, que a realização de estudos para a determinação das funções de excitação das reações nucleares em Ni com feixe de prótons, é de grande importância para estabelecer as condições ideais de

irradiação para a produção de  $^{57}\text{Co}$  e sua preparação posterior como fonte radioativa.

O objetivo deste trabalho foi determinar estas funções de excitação, incluindo-se as das principais impurezas radionuclídicas que acompanham este radioisótopo, quando obtido através da irradiação de Níquel natural.

## II. PARTE EXPERIMENTAL

As funções de excitação (secção de choque  $\times$  energia) foram determinadas pela técnica de folhas empilhadas, através das reações nucleares do tipo  $^{64}\text{Ni}(p,x)$ , para a produção de  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ . Folhas de Níquel natural ( $^{58}\text{Ni}$  - 68,27% de abundância;  $^{60}\text{Ni}$  - 26,10%;  $^{61}\text{Ni}$  - 1,13%;  $^{62}\text{Ni}$  - 3,59% e  $^{64}\text{Ni}$  - 0,91%) [1] de alta pureza (99,98%), com 50 a 80  $\mu\text{m}$  de espessura (Goodfellow Metals) e área de 15x15 mm foram usadas como alvos. No caso das folhas de 50  $\mu\text{m}$ , esta espessura foi fornecida pelo fabricante. Já para as outras, foi utilizado um laminador para a redução das espessuras, quando necessário. Folhas de Alumínio de espessuras variadas serviram como degradadores da energia do feixe de prótons. Adotadas como monitores auxiliares para os integradores de corrente de feixe (Gaiola de Faraday) instalados nos ciclotrons em geral, e para a energia do mesmo, folhas finas de Cobre natural ( $^{63}\text{Cu}$  - 69,17% e  $^{65}\text{Cu}$  - 30,83%) [1] são muito utilizadas, pois degradam muito pouco a energia das partículas incidentes. Tais folhas monitoras ajudam, portanto, na determinação da quantidade de feixe que realmente colide no alvo [2]. A pureza destas folhas era de 99,99% e as espessuras, 20 e 50  $\mu\text{m}$  (nominais do fabricante). A energia média eficaz do feixe de prótons, em cada folha da pilha, foi obtida usando a fórmula de alcance para partículas carregadas que atravessam a matéria [3], de acordo com a referência [4].

Todas as irradiações foram realizadas no Ciclotron isócrono, compacto, de energia variável, CV-28 do IPEN-CNEN/SP, na linha de feixe nº 4, a qual possui um sistema de varredura. O feixe foi desfocalizado em uma região de diâmetro de 8,5 mm, utilizando-se um colimador. A região de energia usada foi de 4 a 23 MeV; as correntes de feixe médias eram de até 1,5  $\mu\text{A}$  e os tempos de irradiação não passaram de 17 min.

Como a energia do feixe de prótons extraídos do ciclotron tinha alguma incerteza, as folhas de Cu natural ativadas foram analisadas pelos espectros de raios  $\gamma$  dos radionuclídeos monitores identificados,  $^{62}\text{Zn}$  ( $t_{1/2} = 9,3$  h;  $E_{\gamma} = 596,63$  keV - 25,70%) e  $^{65}\text{Zn}$  ( $t_{1/2} = 5856$  h;  $E_{\gamma} = 1115,55$  keV - 50,75%), produzidos pelas reações nucleares  $^{63}\text{Cu}(p,2n)^{62}\text{Zn}$  e  $^{65}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$ . Os resultados foram comparados com valores citados em literatura pela referência [5].

A radioatividade de cada amostra (alvo) irradiada foi determinada por Espectroscopia Gama (sem separação química), utilizando-se um detetor de Ge(HP) acoplado a um sistema de aquisição e tratamento de dados, que foram

processados, posteriormente, via microcomputador, através do programa Maestro II MCA (EG & Ortec), que realizou a análise dos picos de energia gama emitida pelos radionuclídeos. Este programa forneceu resultados satisfatórios em todos os casos de interesse analisados.

A distância de cada amostra ao detetor foi escolhida de tal modo que o tempo morto em cada medida fosse menor que 5%. As eficiências de contagem para as diferentes energias dos fótons emitidos pelos radionuclídeos com relação às distâncias, nas quais foram feitas as mesmas, foram determinadas por fontes calibradas fornecidas pelo Instituto de Física da USP (Universidade de São Paulo), o IFUSP:  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  e  $^{241}\text{Am}$ .

## III. RESULTADOS E DISCUSSÕES

Foram medidas 6 funções de excitação individuais para a produção de  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ . As características físicas de decaimento de cada um destes núclídeos analisados estão resumidas na Tabela 1 [6].

TABELA 1. Características de decaimento dos núclídeos observados

Nuclídeo	Meia-vida	$E_{\gamma}$ (keV)	$I_{\gamma}$ (%)
$^{55}\text{Co}$	17,54 h	931,10	75
		477,2	20,2
		1408,5	716,9
$^{56}\text{Co}$	78,76 d	846,77	99,9
		1037,8	14
		1238,28	66,1
		1771,4	15,7
$^{57}\text{Co}$	271,3 d	2598,46	17
		14,4	7,8
		122,56	84,8
		136,43	11,4
$^{58}\text{Co}$	70,78 d	690	0,2
		810,77	99,4
		863,6	0,69
		1674,80	0,53
$^{56}\text{Ni}$	6,1 d	511	30
		158,38	98,8
		749,95	49,5
		811,85	86
		269,85	40
$^{57}\text{Ni}$	36 h	480,70	41
		1562,50	12,5
		127,16	16,7
		1377,63	81,7
		1759,18	62,7

Como o Níquel natural possui 5 isótopos, geralmente é complicado indicar uma determinada reação nuclear em uma função de excitação, já que deve-se levar em consideração, também, a energia mínima para ocorrer cada uma delas. Assim, as reações neste trabalho são mostradas na forma de  $^{nat}\text{Ni}(p,x)$ , para aplicações práticas (assumindo, então, o alvo como sendo monoisotópico). Os resultados das seções de choque das reações em função das energias são mostrados na Tabela 2 e reproduzidos na Figura 1. Tais valores foram obtidos aplicando-se a fórmula de ativação.

TABELA 2. Funções de Excitação medidas em  $^{nat}\text{Ni}(p,x)$ .

$E_p$ MeV	$\sigma$ (mb)					
	$^{55}\text{Co}$	$^{56}\text{Co}$	$^{57}\text{Co}$	$^{58}\text{Co}$	$^{56}\text{Ni}$	$^{57}\text{Ni}$
21,44	---	2,48	177,6	2,79	0,371	49,35
20,64	---	1,38	133,0	2,48	0,287	90,8
19,96	11,63	---	151,2	1,64	0,244	69,33
19,19	13,62	---	81,65	---	0,129	60,91
18,40	15,39	---	134,3	---	0,079	50,81
17,58	16,21	---	81,14	---	---	37,93
16,73	16,74	---	90,97	---	---	23,91
15,85	15,97	---	97,09	---	---	12,52
15,47	18,07	---	95,59	8,998	---	12,55
14,94	14,89	---	38,41	---	---	4,93
14,54	16,53	---	73,2	0,886	---	4,72
13,98	13,53	---	35,12	---	---	1,39
13,57	15,67	---	28,05	0,734	---	0,988
12,54	12,78	---	16,39	0,467	---	0,017
11,44	9,91	---	9,62	0,648	---	---
10,27	7,33	---	6,52	0,62	---	---
9,01	3,13	---	3,67	0,457	---	---
7,62	0,472	---	1,31	0,443	---	---
6,05	---	---	0,18	0,284	---	---
4,18	---	---	---	0,289	---	---

Com relação à monitoração da intensidade da corrente de feixe prótons, o desvio relativo percentual entre o valor obtido no integrador de corrente do ciclotron e o obtido nas análises das folhas de cobre (pela presença de  $^{62}\text{Zn}$  e  $^{65}\text{Zn}$ ), ficou entre 10 e 11%.

Os rendimentos de produção para alvo grosso total estão sendo determinados, paralelamente, ao estudo destas funções de excitação. Os resultados obtidos até agora são satisfatórios e indicam uma concordância muito boa com trabalhos realizados por outros pesquisadores.

#### IV. CONCLUSÕES

As observações de seções de choque medidas, para esta primeira série de dados, de reações nucleares induzidas por prótons em Ni, mostram resultados mais

significativos para  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ . Estes possuem meia-vida mais curta que os radionuclídeos  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$  e  $^{58}\text{Co}$ . Como continuação deste trabalho, serão feitas irradiações com tempos de duração maiores (em torno de uma hora), para evitar esta inconsistência nos dados obtidos em irradiações com tempos curtos, para estes três últimos radionuclídeos citados, como pode ser visto na Tabela 1 e Figura 1.

Por este motivo, não foi feita comparação com dados de literatura para nenhum destes elementos.

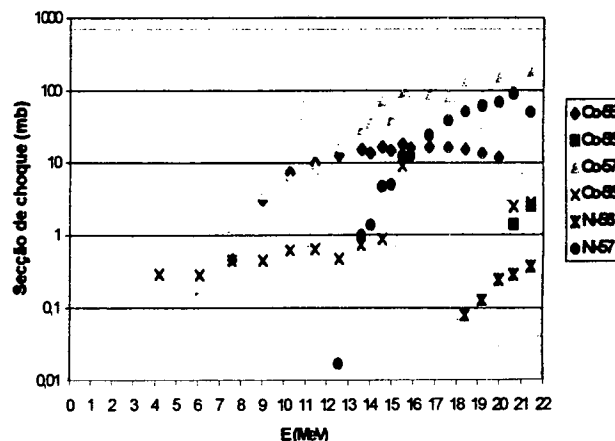


Figura 1. Funções de Excitação experimentais obtidas a partir de reações nucleares do tipo  $^{nat}\text{Ni}(p,x)$ .

#### REFERÊNCIAS

- [1] SEELMANN-EGGEBERT, W.; PFENNIG, G.; MUNZEL, H. and KLEWE-NEBENIUS, H. *Karlsruher Nuklidkarte*, Auflage, 1981.
- [2] GREENE, M.W. and LEBOWITZ, E., *Proton Reactions with Copper for Auxiliary Cyclotron Beam Monitoring*, International Journal of Applied Radiation and Isotopes, vol.23, p. 342-344, 1972.
- [3] KAUFMAN, S., *Reactions of Protons with  $^{58}\text{Ni}$  and  $^{60}\text{Ni}$* , Physical Review, vol. 117, p. 1532-1538, 1960.
- [4] JANNI, J.F. *Proton Range - Energy Tables 1 keV - 10 GeV*, Atomic Data and Nuclear Data Tables, vol.27, Nos.4/5, 1982.
- [5] 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*, International Journal of Applied Radiation and Isotopes, vol. 36, p. 657-661, 1985.
- [6] REUS, U.; WESTMEIER, W. *Catalog of Gamma Rays from Radioactive Decay*, Atomic Data and Nuclear Data Tables, vol.29, No.2, p. 193-406, 1983.

## ABSTRACT

This paper describes the utilization of natural Niquel, in measurements of excitation functions, i.e., cross section versus energy ( $\sigma \times E$ ), for the production of  $^{57}\text{Co}$  and the radionuclides  $^{55}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{56}\text{Ni}$  e  $^{57}\text{Ni}$ , determined through the nuclear reactions  $^{nat}\text{Ni}(p,x)$ . Natural niquel foils of 99.98% purity were used as targets, together with natural Copper foils of 99.99+% purity (both from Goodfellow Metals Ltd.) and natural Aluminium foils, using in this way, the well known stacked foil technique. The Aluminium foils were used as beam energy degrader. The targets stacks were irradiated at the external beam line number 4 (that has a wobbling system) of the Cyclotron CV-28 of IPEN-CNEN/SP, in the energy region of 4-23 MeV, average beam currents of 1.5  $\mu\text{A}$  and irradiation times up to 17 min. The radioactive analysis of targets were made by Gama Spectroscopy, using a HPGe detector.