

BR9024075

ISSN 0101-3084



**CNEN/SP**

**ipen** Instituto de Pesquisas  
Energéticas e Nucleares

OBTENÇÃO DE COBRE-64 COM ATIVIDADE ESPECÍFICA.  
ALTA UTILIZANDO O PROCESSO SZILARD-CHALMERS

Casé NAKANISHI e Constância Pagano Conçalves da SILVA

IPEN-PUB... 290

PUBLICAÇÃO IPEN 290

FEVEREIRO/1990

SÃO PAULO

**OBTENÇÃO DE COBRE-64 COM ATIVIDADE ESPECÍFICA ALTA  
UTILIZANDO O PROCESSO SZILARD-CHALMERS**

**Casuf NAKANISHI e Constância Pagano Gonçalves da SILVA**

**DEPARTAMENTO DE PROCESSAMENTO**

**CNEN/SP  
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES  
SÃO PAULO - BRASIL**

Série PUBLICAÇÃO IPEN

*INIS Categories and Descriptors*

**B13.10**

**COPPER 64  
SZILARD-CHALMERS REACTION  
HEAT TREATMENTS**

---

**IPEN - Doc - 3544**

Aprovado para publicação em 26/12/89.

Nota: A redação, ortografia, conceitos e revisão final são de responsabilidade do(s) autor(es).

OBTEÇÃO DE COBRE-64 COM ATIVIDADE ESPECÍFICA ALTA UTILIZANDO  
O PROCESSO SZILARD-CHALMERS.\*

Casué NAKANISHI e Constância Pagano Gonçalves da SILVA

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR - SP  
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES  
Caixa Postal 11049 - Pinheiros  
05499 - São Paulo - BRASIL

RESUMO

O uso de radioisótopos com alta atividade específica é de grande importância nos estudos de distribuição de substâncias radioativas em seres vivos. Nos países que possuem reatores de baixo fluxo de nêutrons, a produção de cobre-64 com alta atividade específica é realizada utilizando-se o processo de ruptura de ligações químicas induzidas por transformações nucleares (n, $\gamma$ ) conhecida como processo de Szilard-Chalmers. Neste trabalho, realizaram-se experimentos irradiando o composto bis-[N-benzoil-fenilhidroxilaminato]cobre(II) no Reator Nuclear IEA-R<sub>1</sub>, em fluxo de nêutrons térmicos de  $5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s.}$ , utilizando-se a mostras sem e com tratamento térmico antes e/ou depois da irradiação. Quando se irradiaram amostras sem pré-aquecimento e com recozimento térmico por 6,5 horas obteve-se uma atividade específica em torno de 3.900 MBq/mg Cu, 21 hs após a irradiação. Os resultados obtidos neste trabalho, mostram ser este composto viável à obtenção de cobre-64, com alta atividade específica. A sua aplicabilidade dependerá da otimização do método e da preparação do radiocobre na forma adequada para uso médico.

---

(\*) Trabalho a ser apresentado no 39 Congresso Geral de Energia Nuclear a ser realizado de 22 a 27.04.1990 - Rio de Janeiro - RJ - ABEN.

PREPARATION OF CU-64 OF HIGH SPECIFIC ACTIVITY BY THE  
SZILARD-CHALMERS PROCESS.\*

Casuê NAKANISHI e Constância Pagano Gonçalves da SILVA

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR - SP  
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES  
Caixa Postal 11049 - Pinheiros  
05499 - São Paulo - BRASIL

ABSTRACT

The use of radioisotopes of high specific activity is of great importance in studies on distributions of radioactive substances in living beings. In countries where only low thermal neutron flux reactors are available the production of  $^{64}\text{Cu}$  of high specific activity is carried out by the Szilard-Chalmers process, which involves the breaking of the chemical bondings of the compounds. In this work experiments were carried out by irradiating the compound (bis-[N-benzoyl phenylhydroxylamine]copper(II) in IEA-R<sub>1</sub> nuclear reactor in a thermal neutron flux of  $5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2$ . Samples without and with thermal treatment before and/or after irradiation were tested. Samples without pre-heating and with thermal annealing were irradiated for 6,5 h and yields of  $^{64}\text{Cu}$  of about 3,900 MBq/mg Cu were obtained 21 h after the end of irradiation. The results in this work show the possibility of the preparation of  $^{64}\text{Cu}$  of high specific activity with that compound by the Szilard-Chalmers process. The feasibility of its production will depend on the optimization of the chemical processing and on the preparation of  $^{64}\text{Cu}$  in a suitable form for medical applications.

---

(\*) Paper to be presented on "III Congresso Geral de Energia Nuclear"  
from 22 to 27 April, 1990 - Rio de Janeiro - Brazil.

## INTRODUÇÃO

A partir dos estudos realizados por Szilard-Chalmers<sup>5</sup>, em 1934, nos quais separaram o isótopo radioativo  $^{129}\text{I}$ , na forma de iodeto após a infecção da reação nuclear  $^{127}\text{I}(n,\gamma)^{128}\text{I}$  no iodeto de metila, separações similares tem sido utilizadas para a preparação de vários outros isótopos radioativos com atividade específica alta.

O uso destes radioisótopos é importante nos estudos de distribuição de substâncias radioativas em seres vivos. Neste caso o radioisótopo deve ser administrado em quantidades extremamente pequenas para não afetar a fisiologia do animal ou vegetal sob estudo, nas deve possuir atividade suficiente para ser mensurável.

Assim, há cerca de 30 anos o  $^{51}\text{Cr}$  com atividade específica alta tem sido obtido por irradiação de cromato de potássio com nêutrons, procedendo-se em seguida a separação do  $^{51}\text{Cr(III)}$  da massa de  $^{52}\text{Cr(VI)}$  do alvo. Assim o  $^{51}\text{Cr}$  é usado na Medicina Nuclear para aplicações "in vivo" e na hidrologia.

Nesta maneira, também o cobre radioativo e outros radioisótopos com atividade específica alta podem ser obtidos rotineiramente, pela ruptura de ligações químicas induzidas por transformações nucleares, utilizando-se o conhecido Processo Szilard-Chalmers.

Esta técnica é importante para a produção de radioisótopos em países que possuem somente reatores de baixo fluxo de nêutrons, sendo que alguns deles ainda que dispõem de reatores de alto fluxo, utilizam este processo para a preparação de cobre-64 e cloro-36.

Dentre os radioisótopos de cobre, o cobre-64 por causa de sua meia vida curta (12,8 horas) é o mais utilizado nos estudos em enzimológicos hematológicos e das proteínas séricas do sangue, no estudo da doença de Wilson e na Medicina Experimental Tropical.

Na hidrometalurgia é utilizado nos estudos de minerais e investigações de processo de flotação, sendo também usado na indústria de alimentos.

O primeiro estudo visando a obtenção de cobre-64 por Processo Szilard-Chalmers foi em 1946 quando Duffield e Calvin<sup>1</sup> usaram o o-fenilnódialdimina-bis(salicilato) cobre(II) mas não obtiveram atividade específica alta apesar do rendimento de separação ter sido de 80%.

Posteriormente, em 1950 Herz e Goth<sup>2</sup> estudaram a ftalocianina de cobre e verificaram ser este composto promissor à separação de cobre-64 com alta atividade específica, o qual nos anos seguintes foi estudado exaustivamente, sendo atualmente o método adotado rotineiramente na Alemanha, França e Japão.

Para uso médico, a atividade específica do cobre-64 deve ser superior a 740 MBq/mg Cu sendo que nos países citados são obtidos o radiocobre com atividade específica em torno de 1850 MBq/mg Cu.

Recentemente, o usos de quelatos metálicos vem apresentando interesse crescente na produção de radioisótopos de atividade específica alta.

Neste, trabalho realiza-se experimentos preliminares com o bis-[N-benzoil-N-fenilhidroxilaminato]cobre(II), tendo por objetivo verificar se este quelato é apropriado à obtenção de cobre-64 com atividade específica alta.

A escolha deste composto baseou-se nos resultados obtidos anteriormente quando se verificou que o mesmo é estável ao aquecimento e à radiação gama e que cerca de 30% de cobre-64 pode ser extraído da amostra irradiada.<sup>3</sup>

#### PARTE EXPERIMENTAL

Irradiaram-se amostras do complexo bis-[N-benzoil-N-fenilhidroxilaminato]cobre(II) sintetizado e caracterizado conforme descrito por Nakanishi e Silva. No Reator Nuclear IEA-R<sub>1</sub> (IPEN-CNEN/SP) em fluxo de nêutrons de  $5 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ , por uma hora e também por seis horas e trinta minutos. Separou-se a fração iônica de cobre duas horas e trinta minutos e 21 horas respectivamente após a irradiação, utilizando-se a técnica de extração por solvente e determinou-se a massa de cobre da fase aquosa por espectrofotometria.

Nos experimentos utilizaram-se amostras nas condições seguintes:

- a.) pré-aquecida a 140°C por cinco horas e após ativação neutrônica aquecida a 140°C por uma hora (recozimento térmico).
- b.) não pré-aquecida e com recozimento térmico a 140°C por uma hora.
- c.) não pré-aquecida e sem recozimento térmico.

## TRATAMENTO TÉRMICO

Nos experimentos do efeito do pré-aquecimento e do recozimento térmico aqueceram-se as amostras em tubos Pyrex mergulhados em um banho de óleo acoplado a um controlador de temperatura (PI-141-79/02 CP10 AIE) cuja estabilidade térmica foi de  $0,5^{\circ}\text{C}$ .

## IRRADIAÇÃO COM NÊUTRONS

Irradiaram-se as amostras no Reator Nuclear IEA-R<sub>1</sub> com fluxo de nêutrons de  $5 \times 10^{11} \text{ n.cm}^2/\text{s}$ . e dose gama de  $3,6 \times 10 \text{ Gy/h}$  à temperatura de  $30-35^{\circ}\text{C}$ .

## MEDIDAS DE RADIOATIVIDADE

Mediu-se a radioatividade da fração aquosa, fazendo-se as contagens no fotopico de  $511 \text{ keV}$  de cobre-64 na câmara de ionização Radioisotope Calibrator CRC-10BC, Capintec.

## SEPARAÇÃO DE COBRE POR EXTRAÇÃO POR SOLVENTE

Dez miligramas do composto de cobre (aquecidas e/ou não irradiadas com nêutrons foram dissolvidas em 25 mL de clorofórmio (Merck) e agitada com 25 mL de tampão acetato de sódio pH = 5,5, durante um minuto e deixou-se em repouso por quinze minutos até completa separação das fases. Lavou-se a fase orgânica com mais 25 mL de tampão acetato de sódio pH = 5,5, com agitação de um minuto e procedeu-se com anteriormente.

## DETERMINAÇÃO ESPECTROFOTOMÉTRICA DE COBRE

Determinou-se a massa de cobre presente na fração aquosa por método espectrofotométrico, utilizando-se como agente complexante o dietiltiliocarbamato de sódio adotando-se o procedimento descrito por

Fêz-se a leitura da fase orgânica em 435 nanômetros, utilizan



foi-se o espectrofotometro (UV-VIS Perkin-Elmer. Traçou-se a curva padrão e determinou-se a massa de cobre da fração aquosa por intrapolação.

#### MEDIDA DA ATIVIDADE ESPECÍFICA

Determinou-se a atividade específica do radiocobre recuado, na fração aquosa, pela relação entre a atividade de cobre-64 e sua massa.

$$\text{Atividade específica} = \frac{\text{atividade (MBq)}}{\text{massa (mq Cu)}}$$

Os valores obtidos estão na Tabela I.

#### RESULTADOS E DISCUSSÃO

Dos resultados apresentados na Tabela I, verificou-se que a atividade específica aumentou quando o tempo de irradiação com nêutrons de uma hora passou para seis horas e trinta minutos. O valor obtido de 876,16 MBq/mg Cu da amostra sem aquecimento e sem recozimento térmico, com tempo de irradiação de seis horas e trinta minutos, considerando o tempo de espera de 21 horas corresponderia a 2620,19 MBq/mg Cu se este tempo fosse de duas horas e trinta minutos.

Verificou-se também que o tratamento térmico após a ativação neutrônica (recozimento térmico) melhora o rendimento de obtenção de  $^{64}\text{Cu}$ . A atividade específica aumentou de um fator aproximadamente de dois e de cinco quando o tempo de irradiação foi de uma hora e de seis horas e trinta minutos respectivamente.

Quando a amostra foi submetida a um aquecimento de  $140^{\circ}\text{C}$  por cinco horas antes da irradiação neutrônica e de  $140^{\circ}\text{C}$  por uma hora após a ativação, a atividade específica é aproximadamente igual a da amostra quando esta não foi submetida a algum tratamento térmico e aproximadamente diminui para metade, quando comparada com a amostra sem pré-aquecimento térmico e com recozimento térmico a  $140^{\circ}\text{C}$  durante uma hora.

#### CONCLUSÃO

Dos resultados apresentados na Tabela I verifica-se ser viável o uso do bis-[N-benzoil-N-fenilhidordilaminato]cobre(II) para obten

TABELA I - ATIVIDADE ESPECÍFICA DO  $^{64}\text{Cu}$  OBTIDO POR IRRADIAÇÃO DO  
 BIS-[N-BENZOIL-N-FENILHIDROXILAMINATO] COBRE (II).

Amostras	Tempo de Irradiação (horas)	Tempo de Espera (horas)	Atividade Específica MBq/mg Cu
Sem pré-aquecimento e sem recozimento térmico	1,0	2,5	1.124,8
Sem pré-aquecimento e com recozimento térmico	1,0	2,5	2.231,1
Pré-aquecida a 140°C (5h) com recozimento térmico	1,0	2,5	1.317,2
Sem pré-aquecimento e sem recozimento térmico	6,5	21,0	876,16
Sem pré-aquecimento e com recozimento térmico	6,5	21,0	3.981,2

Recozimento Térmico em temperatura de 140°C durante 1 hora

ção de cobre-64 com atividade específica alta para uso médico. A sua aplicabilidade na produção rotineira dependerá de um estudo de otimização do método, quanto ao tratamento da amostra alvo, do tempo de irradiação e a preparação do radiocobre na forma adequada para uso médico.

**REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS:**

1. DUFFIELD, R.B.; & CALVIN, M. Preparation of high specific induced radioactivity by neutron bombardment of metal chelate compounds. J.Am.Chem.Soc., 68: 1129, 1946.
2. HERR, W. & GOETTE, H. Preparation of practically carrier-free radiocopper  $^{64}\text{Cu}$  with high activity from Cu-phthalocyanine. Denver, Colo. Rocky Flats Plant, sem data (RFP-trans. 131).
3. NAKANISHI, C. & SILVA, C.P.G. Efeito do pré-aquecimento e da pré-irradiação gama no recozimento térmico do bis-(N-benzoil-N-fenil-hidrodilaminato) Cobre (II). São Paulo, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, outubro/1988. (Publicação IPEN-224)
4. JARDIM, G.S. Determinação quantitativa de cobre em solos e em rochas pelo método espectrofotométrico Parte I. Identificação e dosagem de cobre em solos: Eclst. Quim. 7, 5-12, 1982.
5. SZILARD, L., & CHALMER, T.A. Chemical separation of radioactive element from its bombarded isotope in the Fermi effect. Nature, 134: 462, 1934.