

UCH-FC
Mag-Q
A958
C.1



FACULTAD DE CIENCIAS BASICAS Y FARMACEUTICAS

"PRODUCCION CICLOTRONICA DE RADIONUCLIDOS PARA USO MEDICO
EMPLEO DE PROTONES DE ALTA ENERGIA EN BLANCOS DE RHODIO-103"

Tesis
Entregada a la
Universidad de Chile
en cumplimiento parcial de los requisitos
para optar al Grado de
Magister en Ciencias Químicas

por

MARIO AVILA SOBARZO

01-0206402

Enero, 1983

~
Dedicado a Sylvia y Carolina

AGRADECIMIENTOS

Debo agradecer al Programa de Radioisótopos del Crocker Nuclear Laboratory, de la Universidad de California, Davis, Estados Unidos, por el financiamiento del presente trabajo y estadía durante mi visita científica. A su Director Doctor Manuel C. Lagunas-Solar por sugerir y dirigir el presente trabajo, y por su entusiasmo en su desarrollo.

Agradezco también al Departamento de Física de la Facultad de Ciencias Básicas y Farmacéuticas de la Universidad de Chile.

Al grupo del programa de radioisótopo, Lennox Harris, Dan Shadoan, Frank Little, Paul C. Johnson y especialmente a Neal J. Navarro.

Agradezco también a Joel McCurdy, jefe de operaciones del ciclotrón por las irradiaciones realizadas.

Finalmente quisiera dar mi reconocimiento al personal administrativo del laboratorio, particularmente a su Director Dr. Thomas C. Cahill.

En parte, este trabajo fue financiado por el Departamento de Energía, de los Estados Unidos, contrato N^o 25046

Parte del presente trabajo ha sido presentado en el Fourth International Symposium on Radiopharmaceutical Chemistry, 23-27 August, Julic, Alemania. Y aceptado para su publicación en Agosto de 1982, bajo el nombre de "Cyclotron Production of No-Carrier-Added Ruthenium-97 by Proton Bombardment of Rhodium-103 Targets" en International Journal of Applied Radiation and Isotopes.

INDICE DE CONTENIDOS

RESUMEN1
I. INTRODUCCION.3
II. METODOS EXPERIMENTALES.6
III. PROCESOS RADIOQUIMICOS.	31
IV. ANALISIS DE LOS DATOS	44
V. RESULTADOS.	52
VI. ANALISIS DEL SISTEMA NO-EQUILIBRIO $^{101}_{\text{Pd}} \rightarrow ^{101\text{m}}_{\text{Rh}} \rightarrow ^{101}_{\text{Ru}}$ 87	
VII. DISCUSION	93
VIII. CONCLUSION.128
IX. REFERENCIAS130

INDICE DE FIGURAS

Figura 1.	Blanco para ^{103}Rh metálico.	16
Figura 2.	Linea del Haz # 0 (Beam Line 0, BL0).	16
Figura 3.	Blanco para $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$	18
Figura 4.	Curvas de Eficiencia del detector Ge(Li).	27
Figura 5.	Montaje Experimental para el Conteo de los Discos de ^{103}Rh	29
Figura 6.	Disolución Electrolítica de ^{103}Rh	36
Figura 7.	Proceso Radioquímico.	42
Figura 8.	Sistema de Extracción	43
Figura 9.	Sistema de Destilación.	43
Figura 10.	Niveles de Decaimiento para ^{97}Ru	54
Figura 11.	Niveles de Decaimiento para ^{100}Pd	54
Figura 12.	Niveles de Decaimiento para ^{101}Pd	54
Figura 13.	Niveles de Decaimiento para ^{101}Rh	54
Figura 14.	Niveles de Decaimiento para $^{101\text{m}}\text{Rh}$	54
Figura 15.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{97}Ru	70
Figura 16.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{95}Tc	71
Figura 17.	Sección Eficaz y Rendimiento para $^{95\text{m}}\text{Tc}$	72
Figura 18.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{96}Tc	73
Figura 19.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{98}Pd	74
Figura 20.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{99}Pd	75

Figura 21.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{100}Pd	76
Figura 22.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{101}Pd	77
Figura 23.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{97}Rh	78
Figura 24.	Sección Eficaz y Rendimiento para $^{97\text{m}}\text{Rh}$	79
Figura 25.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{98}Rh	80
Figura 26.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{99}Rh	81
Figura 27.	Sección Eficaz y Rendimiento para $^{99\text{m}}\text{Rh}$	82
Figura 28.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{100}Rh	83
Figura 29.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{101}Rh	84
Figura 30.	Sección Eficaz y Rendimiento para $^{101\text{m}}\text{Rh}$	85
Figura 31.	Sección Eficaz y Rendimiento para ^{102}Rh	86
Figura 32.	Estado de No-Equilibrio entre $^{101}\text{Pd} \rightarrow ^{101\text{m}}\text{Rh} \rightarrow ^{101}\text{Ru}$	92
Figura 33.	Blanco de Rodio en Solución (45,5 MeV).	96
Figura 34.	Blanco de Rodio en Solución (67,1 MeV).	96
Figura 35.	Estructura de Pd(II)dimetilgloximato	111
Figura 36.	Espectro de ^{97}Ru en ETOH a 67,1 MeV	116
Figura 37.	Espectro de ^{97}Ru en ETOH a 45,5 MeV	116
Figura 38.	Espectro de ^{97}Ru	117
Figura 39.	Espectro de $^{101\text{m}}\text{Rh}$	118
Figura 40.	Espectro de ^{101}Pd	119

Figura 41.	Estructura de la Molécula de BEDTA.120
Figura 42.	Radiocromatograma para ^{97}Ru a pH 4-5.124
Figura 43.	Radiocromatograma ^{97}Ru -BEDTA a 1 h autoclave.124
Figura 44.	Radiocromatograma ^{97}Ru -BEDTA a 3 h autoclave.124
Figura 45.	Radiocromatograma ^{97}Ru -BEDTA a 6 h autoclave.124
Figura 46.	Radiocromatograma ^{97}Ru -BEDTA a 7 h autoclave.125
Figura 47.	Radiocromatograma ^{100}Pd a pH 4-5.125
Figura 48.	Radiocromatograma ^{100}Pd -BEDTA a 1 h autoclave125
Figura 49.	Radiocromatograma ^{100}Pd -BEDTA a 3 h autoclave125
Figura 50.	Radiocromatograma ^{100}Pd -BEDTA a 6 h autoclave126
Figura 51.	Radiocromatograma ^{100}Pd -BEDTA a 7 h autoclave126
Figura 52.	Radiocromatograma $^{101\text{m}}\text{Rh}$ a pH 4-5126
Figura 53.	Radiocromatograma $^{101\text{m}}\text{Rh}$ -BEDTA a 1 h autoclave.126
Figura 54.	Radiocromatograma $^{101\text{m}}\text{Rh}$ -BEDTA a 3 h autoclave.127
Figura 55.	Radiocromatograma $^{101\text{m}}\text{Rh}$ -BEDTA a 6 h autoclave.127
Figura 56.	Radiocromatograma $^{101\text{m}}\text{Rh}$ -BEDTA a 7 h autoclave.127

INDICE DE TABLAS

Tabla 1.	Penetración a Distintas Energías de H^+ para Rh, Cl, O e H. . .	12
Tabla 2.	Penetración de H^+ por Disco de ^{103}Rh y Degradación Energética .	14
Tabla 3.	Condiciones de la Irradiación	21
Tabla 4.	Energías y Emisiones por s del Standard Mixto Empleado para la Determinación de la Eficiencia del Detector Ge(Li)	24
Tabla 5.	Resultados de la Regresión Lineal	25
Tabla 6.	Ecuaciones para la Eficiencia a Distintas Distancias.	26
Tabla 7.	Resultado del Proceso Electrolítico para la Disolución de ^{103}Rh	37
Tabla 8.	Características Físicas de los Radionuclidos Identificados. . .	53
Tabla 9.	Rendimiento para ^{97}Ru	55
Tabla 10.	Rendimiento para ^{95}Tc	55
Tabla 11.	Rendimiento para ^{95m}Tc	56
Tabla 12.	Rendimiento para ^{96}Tc	56
Tabla 13.	Rendimiento para ^{98}Pd	57
Tabla 14.	Rendimiento para ^{99}Pd	57
Tabla 15.	Rendimiento para ^{100}Pd	58
Tabla 16.	Rendimiento para ^{101}Pd	59
Tabla 17.	Rendimiento para ^{97}Rh	60
Tabla 18.	Rendimiento para ^{97m}Rh	60
Tabla 19.	Rendimiento para ^{98}Rh	60
Tabla 20.	Rendimiento para ^{99}Rh	61

Tabla 21.	Rendimiento para ^{99m}Rh .	61
Tabla 22.	Rendimiento para ^{100}Rh .	62
Tabla 23.	Rendimiento para ^{101}Rh .	63
Tabla 24.	Rendimiento para ^{101m}Rh .	64
Tabla 25.	Rendimiento para ^{102}Rh .	65
Tabla 26.	Seccion Eficaz para ^{97}Ru .	66
Tabla 27.	Secciones Eficaces para ^{95}Tc , ^{95m}Tc y ^{96}Tc .	66
Tabla 28.	Secciones Eficaces para ^{98}Pd , ^{99}Pd , ^{100}Pd y ^{101}Pd .	67
Tabla 29.	Secciones Eficaces para ^{97}Rh , ^{97m}Rh , ^{98}Rh , ^{99}Rh , ^{99m}Rh , ^{100}Rh , ^{101}Rh , ^{101m}Rh y ^{102}Rh .	68
Tabla 30.	Estado de No-Equilibrio entre ^{101}Pd y ^{101m}Rh .	91
Tabla 31.	Valores de Q (MeV) y E_{umbral} (MeV) para los Posibles Canales de Reacción para ^{97}Ru .	.94
Tabla 32.	Rendimiento Acumulativo a EOB y 32,7 h.	.105
Tabla 33.	Actividades Obtenidas al Irradier $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ con Protones de 45,5 MeV.	.107
Tabla 34.	Resultados Preliminares para la Marcación de BEDTA.	.126

RESUMEN

En el presente estudio se han desarrollado blancos y procesos radioquímicos para la producción simultánea de ^{97}Ru , ^{100}Pd y $^{101\text{m}}\text{Rh}$ libre de portadores (no-carrier-added, NCA). Se encontraron rendimientos de 1,36 mCi/ μAh para ^{97}Ru (2,88 d; 216 keV, 86%; 324 keV, 11%); 4,37 mCi/ μAh para ^{100}Pd (3,63 d; 126 keV, 17%) y 5,72 mCi/ μAh para $^{101\text{m}}\text{Rh}$ (4,26 d; 307 keV, 87%; 545 keV, 6%). Estos radionuclidos son de interés por su posible uso en procedimientos de diagnóstico en medicina nuclear.

Reacciones inducidas con haces de protones de 67,5 MeV del ciclotrón del Crocker Nuclear Laboratory (CNL), fueron estudiadas en el rango de 67,5 a 15 MeV. Rendimientos (mCi/ μAh o $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$) fueron medidos para todas los radionuclidos generados. Igualmente se determinaron los rendimientos acumulativos al fin de la irradiación (end-of-bombardment, EOB) y se calcularon las secciones eficaces de reacción.

Un proceso radioquímico conducente a la separación de "no-carrier-added" ^{97}Ru , ^{100}Pd y $^{101\text{m}}\text{Rh}$ de alta pureza radionuclídica, de un blanco de ^{103}Rh , ha sido desarrollado.

Se reportan estudios preliminares para la marcación del ácido benzil-etilen-di-amin-tetraacético (BEDTA). Marcar dicha especie química es la etapa previa a la incorporación de los radionuclidos en fragmentos de anticuerpos (monoclonal antibody fragments, FAB)

I.- INTRODUCCION

Los medios para la producción de radionuclidos de uso médico han sido desarrollados considerablemente en los últimos años. Este desarrollo ha sido principalmente dirigido hacia el empleo de blancos enriquecidos por nuclidos estables. El empleo de ciclotrones para la producción de radionuclidos deficientes en neutrones, permite la obtención de actividades específicas en el rango de Ci/g o mCi/mg. Lo anterior es debido a dos características de estas máquinas: 1) la posibilidad de irradiaciones de gran intensidad de corriente y, 2) la versatilidad para fijar la energía del haz de partículas utilizado con las que el blanco es irradiado.

Uno de los mayores campos de aplicación actual de los radionuclidos se encuentra en la medicina nuclear. En dicha área, tanto en diagnóstico clínico como en usos en radioterapia, pero en su mayoría en la investigación básica. Las emisiones gamas resultantes de los procesos nucleares de un radionuclido son utilizadas como trazadores biológicos. Una droga marcada, al ser administrada a un paciente, es asimilada por los diferentes órganos del cuerpo. Posteriormente es degradada por mecanismos bioquímicos y, finalmente catabolizada.

Luego que la droga marcada es metabolizada, su detección es efectuada usualmente con un sistema de centelleo. No debe extrañar entonces, dado el siempre creciente número de radiofármacos con distintas afinidades biológicas, la presencia de mapeadores ("scanners") en hospitales y centros médicos.

En 1931 Collier y Kraus⁽¹⁾ demostraron que disoluciones de ciertos metales de transición (Cu, Pb, Cr, Mn, Fe) y algunos del grupo del platino (tales como Ru, Rh y Os) presentan determinada actividad bioquímica, en sus formas químicas de óxidos, amins y haluros.

Rosemberg y Van Camp^(2,3,5) en 1969 demostraron la utilidad y posible aplicación de los compuestos de platino como drogas anticancer. Este descubrimiento despertó enorme interés en la investigación de una nueva clase de agentes antitumores: los complejos metálicos de coordinación.

La aplicación de los complejos metálicos de transición, para el tratamiento quimioterapéutico del cancer, empieza a desarrollarse durante la década de 1960. Significativa fue la contribución de Mayhew et al⁽⁴⁾, al determinar la diferencia de actividad terapéutica (anticancer) de los complejos de Ru [Ru(Phen)₂(acac)]Cl y [Ru(Phen)₃Cl₂].

En 1977 otros complejos de Ru y Rh fueron ensayados por Giraldi et al.⁽⁶⁾ Los complejos estudiados fueron acetilacetato - 1,5 ciclootadieno-rodio(I) [RhacacDOC]⁰ y el cis-di-cloro, tetra-kis-dimetilsulfoxido-Ru(II), cis-Ru(II)(DMSO)₄-Cl₂. Estos autores concluyeron que la eficacia terapéutica de los complejos de Rh o Ru es mejor o igual que la encontrada al usar como agente anticancer el complejo cis-dicloro-diamino-platino(II).

La literatura científica da cuenta de parámetros físicos de producción como rendimientos y secciones eficaces para la producción de ^{101m}Rh (7,10). Para el caso de ⁹⁷Ru varios autores señalan su producción ya sea por la

utilización de reactores o aceleradores. Subramaniam y McAfee⁽¹¹⁾ informan de la producción de ^{97}Ru via $^{96}\text{Ru}(n,\gamma)^{97}\text{Ru}$ y su empleo como trazador. Otros autores⁽¹²⁻¹⁶⁾ han utilizado reacciones como $\text{Mo}(\text{nat})(^3\text{He},\text{xn})^{97}\text{Ru}$ y $\text{Mo}(\text{nat})(^4\text{He},\text{xn})^{97}\text{Ru}$.

El presente estudio tiene por propósito desarrollar las técnicas de ciclotrón para la producción de radionuclidos sobre la base de una irradiación de blancos de Rh, con protones de 67,5 MeV.

Asi mismo, se medirán las secciones eficaces para las reacciones del tipo $^{103}\text{Rh}(p,\text{xn})$, $^{103}\text{Rh}(p,\text{xpn})$ u otros canales de reacción energéticamente posibles.

Es también materia de este estudio, el desarrollar procesos radioquímicos conducentes a la purificación de radionuclidos de Pd, Rh, Ru u otros producidos en el blanco de Rh.

Se desarrollarán los procesos de control analítico para la cuantificación de rendimientos (mCi/ μAh), pureza radionuclídica(?) y pureza radioquímica.

Finalmente, y debido a las propiedades de decaimiento (i.e, vida media, energía de las emisiones, etc.) como a las propiedades radioquímicas, el presente trabajo fue orientado primordialmente a la producción de ^{97}Ru , ^{100}Pd y $^{101\text{m}}\text{Rh}$.

II METODO EXPERIMENTAL

^{103}Rh metálico

1) Preparación del blanco

Las láminas de ^{103}Rh que constituyeron el blanco para este estudio fueron de alta pureza (99,999%, basado en el contenido metálico) (ALFA Products. Thiokol / Ventron Division. Danvers, Mass. número de catálogo 0,0281).

Un soporte de Al fue fabricado para contener el conjunto de 41 láminas de ^{103}Rh el cual, a su vez, fue acoplado por medio de 3 pernos a una pieza de Al que sirve tanto, para detener totalmente el haz de protones, como copa de Faraday. El blanco es conocido por el nombre de Westinghouse Target. Posee doble colimación de grafito (diámetro interno 0,47 cm.) y un imán toroidal para deflechar los electrones que, por el barrido electrónico del haz, puedan dispersarse como consecuencia de la interacción entre el haz de protones y los colimadores de grafito. Un esquema del blanco se presenta en la Figura 1.

El blanco se instaló en el extremo de una de las zonas experimentales del ciclotrón conocidas como BL0 (beam line 0), (ver Figura 2).

Las laminas metalicas de ^{103}Rh fueron cortadas en discos. Obtuvimos así un total de 49 discos de 0,62 cm. de diámetro y 0,0127 cm. de grosor. Se escogieron las 41 mejores (seleccionadas por aspecto físico tales como perfección en el corte, estado de los cantos, planaridad etc.).

2) Limpieza de los discos de ^{103}Rh

Escogidas las 41 hojas de ^{103}Rh que conformaron el blanco, estas fueron lavadas primero con H_2O destilada y dejadas durante una noche en 15 ml de HCl 2 N, lavadas nuevamente tres veces con 20 ml de H_2O destilada y secadas cuidadosamente en estufa. Desde el momento de la selección hasta su montaje para conteo los discos fueron manejados con guantes para prevenir la incorporación de polvo, grasa etc. Tanto la pieza que contuvo al blanco como aquella que sirvió de copa de Faraday fueron cuidadosamente limpiadas, para tal efecto fueron tratadas dos veces con CH_3COCH_3 y dejadas secar a temperatura ambiente.

3) Identificación de los discos de ^{103}Rh

Las 41 hojas de ^{103}Rh fueron numeradas para su posterior identificación, ello fue logrado usando una aguja y observándolas a través de un microscopio. De esta forma se obtuvieron 41 hojas identificables, con superficie y bordes apropiados para su montaje, irradiación y posterior análisis de las actividades producidas.

4) $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

Aún y a pesar de las excelentes características físicas del ^{103}Rh metálico laminado, se preparó un blanco de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ con el propósito de comparar rendimientos. Para tal efecto se preparó una pastilla de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ (peso molecular 263,309 g/mol) con 0,279 g de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$.

5) Preparación de la Pastilla de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

En esta ocasión, el soporte de Al que contiene la sal de rodio es similar en su forma al soporte que contuvo al ^{103}Rh metálico. Esta pieza de Al posee una abertura circular de 0,63 cm de diámetro y un grosor de 0,32 cm.

La preparación fue llevada a cabo en la forma siguiente: el soporte de Al fue cubierto en su parte posterior por una delgada lámina de Al de 0,0025 cm empleando cinta adhesiva. El blanco fue llenado con $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ y entonces por medio de una prensa manual del taller mecánico del CNL se procedió a comprimir la sal de rodio. Esta operación fue repetida las veces necesarias hasta obtener que la totalidad del volumen, de la pieza de Al, quedara lleno de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

La cantidad de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ en el blanco fue determinada por la manera usual; es decir, por diferencia de pesada.

Peso del blanco de Al = 1,84 \pm 0,01 g

Peso del blanco con la pastilla de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ = 2,12 \pm 0,01 g

Peso de la pastilla de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ = 0,28 \pm 0,01 g

Esto permitió hacer, para este experimento, una estimación de la densidad del $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ en la fabricación del blanco. Esta fue de:

$$0,28 \pm 3,5\% \text{ g} / 0,10 \pm 10\% \text{ cm}^3 = 2,80 \pm 11\% \text{ g/cm}^3$$

debe hacerse notar que el Handbook of Physics and Chemistry, edición 63, del año 1982-1983 no publica la densidad del $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

6a) Cálculo del grosor del blanco

La penetración de protones en Rh para el intervalo de energía comprendido entre 15 y 70 MeV se encuentra en la Tabla 1. El rango de energía cubierto en este estudio abarcó desde 15 a 67,5 MeV. Fue necesario entonces, conociendo la penetración de protones en Rh, calcular el grosor del blanco para una degradación energética del haz entre 67,5 a 15 MeV.

Esto fue calculado por interpolación entre la penetración de los protones en ^{103}Rh a dos energías conocidas y tabuladas.

$$\begin{aligned}\text{Degradación energética del haz} &= (67,5 - 15,0) \text{ MeV} \\ &= 52,5 \text{ MeV.}\end{aligned}$$

Estos 52,5 MeV fueron depositados por el haz a travez del blanco.

Por interpolación lineal se obtuvo la penetración de protones en Rh a 67,5 MeV. La Tabla 1 entrega valores de la penetración 65 y 70 MeV. A partir de dichos datos la penetración de los protones a 67,5 MeV resulta ser de $6,844 \text{ g/cm}^2$.

El haz incidió en el blanco con una energía de 67,5 MeV y salió con 15 MeV. La distancia de ^{103}Rh que el haz debe cruzar, resulta ser la diferencia entre el rango de la energía incidente, menos la energía de salida dividido por la densidad del ^{103}Rh . Es decir, 0,51 cm.

6b) Numero de Discos de ^{103}Rh que Componen el Blanco Metálico

Los discos de ^{103}Rh metálico tienen un espesor de 0,0127 cm por lo que el número de discos de ^{103}Rh necesarios para una deposición de energía de 52,50 MeV resultó ser:

$$0,5103 / 0,0127 = 40$$

El blanco fue construido con 41 discos. La Tabla 2 resume la energía del haz de protones en cada disco del blanco.

Tabla 1, Penetración a diferentes energías de protones para Rh, Cl, O e H.

Energía (MeV)	Penetración (g/cm ²)				
	Rodio	Aluminio	Cloro	Oxígeno	Hidrógeno
15	0,5143	0,3448	0,3671	0,3015	0,1094
20	0,8379	0,5740	0,6088	0,5047	0,1859
22	0,9861	0,6799	0,7203	0,5989	0,2217
24	1,145	0,7937	0,8401	0,7002	0,2603
26	1,313	0,9153	0,9679	0,8086	0,3017
28	1,492	1,044	1,104	0,9238	0,3459
30	1,680	1,181	1,247	1,046	0,3928
32	1,878	1,325	1,389	1,174	0,4423
34	2,086	1,476	1,557	1,310	0,4946
36	2,303	1,635	1,723	1,451	0,5494
38	2,528	1,800	1,896	1,599	0,6068
40	2,763	1,972	2,077	1,754	0,6668
42	3,007	2,151	2,264	1,914	0,7293
44	3,259	2,337	2,459	2,081	0,7943
46	3,520	2,530	2,661	2,254	0,8617
48	3,789	2,729	2,869	2,433	0,9316
50	4,067	2,934			
55	4,797	3,476			
60	5,577	4,057			
65	6,406	4,675			
70	7,282	5,330			

6c) Cálculo de la Pérdida de Energía del Haz de protones en Al

Debe ser notado que la pérdida de energía que el haz de protones tiene en el trozo de Al de 0,0025 cm. de grosor ha sido despreciada (véase sellado del blanco, sección 8). En efecto, esta fue de tan solo 100 keV. La pérdida de energía en la lámina de Al esta contenida dentro del error experimental de la energía del haz (67,5 +0,5 MeV).

6d) Cálculo de la Degradación Energética del Haz por Disco de ^{103}Rh

Por un análisis similar se construyó la Tabla 2 que resume la pérdida de energía, asumiendo una pérdida de energía dE/dx lineal para el centro geométrico de cada una de los discos de ^{103}Rh irradiados.



Tabla 2 Penetración de protones por disco de ^{103}Rh y degradación energética

Disco #	Energía (MeV)			ΔE	Penetración a energía promedio (g/cm ²)
	incidente	salida	promedio		
1	67,5	66,6	67,1	0,9	6,7652
2	66,6	65,7	66,2	0,9	6,6076
3	65,7	64,8	65,3	0,9	6,4500
4	64,8	63,8	64,3	1,0	6,2924
5	63,8	62,9	63,4	0,9	6,1348
6	62,9	61,9	62,4	0,9	5,9772
7	61,9	61,0	61,5	0,9	5,8196
8	61,0	60,0	60,5	1,0	5,6620
9	60,0	59,0	59,5	1,0	5,5044
10	59,0	58,0	58,5	1,0	5,3468
11	58,0	57,0	57,5	1,0	5,1892
12	57,0	56,0	56,5	1,0	5,0316
13	56,0	55,0	55,5	1,0	4,8740
14	55,0	53,9	54,4	1,1	4,7164
15	53,9	52,8	53,4	1,1	4,5588
16	52,8	51,7	52,3	1,1	4,4012
17	51,7	50,7	51,2	1,0	4,2436
18	50,7	49,6	50,1	1,1	4,0860
19	49,6	48,5	49,0	1,1	3,9284
20	48,5	47,3	47,9	1,2	3,7708
21	47,3	46,2	46,7	1,1	3,6132
22	46,2	45,0	45,5	1,2	3,4556
23	45,0	43,8	44,3	1,2	3,2980
24	43,8	42,5	43,1	1,2	3,1404
25	42,5	41,3	41,9	1,2	2,9828
26	41,3	40,0	40,5	1,3	2,8252
27	40,0	38,6	40,5	1,4	2,6676
28	38,6	37,3	39,2	1,3	2,5100
29	37,3	35,9	36,4	1,4	2,3524
30	35,9	34,5	36,4	1,4	2,1948
31	34,5	33,1	33,5	1,4	2,0372
32	33,1	31,6	32,0	1,5	1,8796
33	31,6	30,0	30,4	1,6	1,7220
34	30,0	28,3	28,8	1,7	1,5644
35	28,3	26,6	27,1	1,7	1,4068
36	26,6	24,8	25,3	1,8	1,2492
37	24,8	22,9	23,3	1,9	1,0916
38	22,9	20,9	21,3	2,0	0,9340
39	20,9	18,8	19,3	2,1	0,7764
40	18,8	16,7	17,2	2,1	0,6188
41	16,7	14,6	15,1	2,1	0,4612

7) Cálculo de la penetración de Protones en $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

El rango de energía considerado comprende desde 67,5 MeV hasta 36 MeV. La expresión utilizada para calcular el rango de protones en un compuesto multi-atómico como $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ esta dada por:

$$\text{Penetracion} = \sum R(i) \times (\%i)$$

$$= \sum (\text{rango de } \text{H}^+ \text{ en el elemento } i) \times (\% \text{ del elemento } i \text{ en el compuesto})$$

a) Penetración de protones en H: (véase Tabla 1)

$$\text{a } 67,5 \text{ MeV: } 1,7310 \text{ g/cm}^2$$

$$\text{a } 36,0 \text{ MeV: } 0,5494 \text{ g/cm}^2$$

$$\Delta E = 31,5 \text{ MeV} \Rightarrow \Delta R = 1,1876 \text{ g/cm}^2$$

b) Penetración de protones en O: (véase Tabla 1)

$$\text{a } 67,5 \text{ MeV: } 4,4790 \text{ g/cm}^2$$

$$\text{a } 36,0 \text{ MeV: } 1,451 \text{ g/cm}^2$$

$$\Delta E = 31,5 \text{ MeV} \Rightarrow \Delta R = 3,0280 \text{ g/cm}^2$$

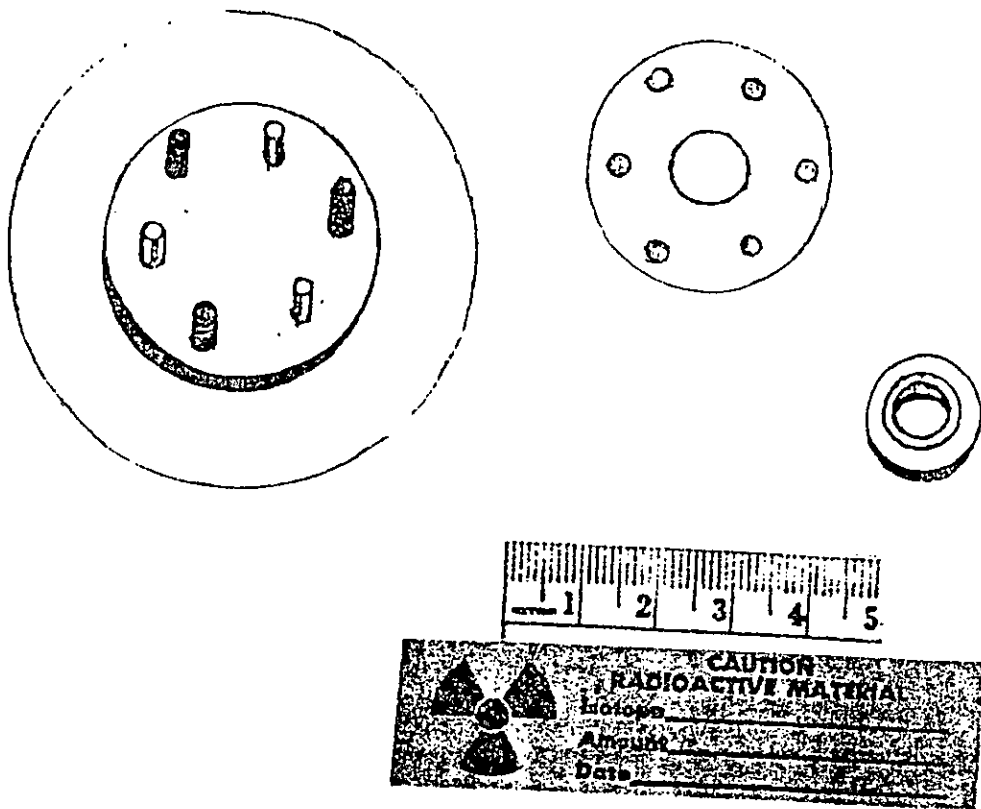


Figura 1 Blanco para ^{103}Rh (metálico)

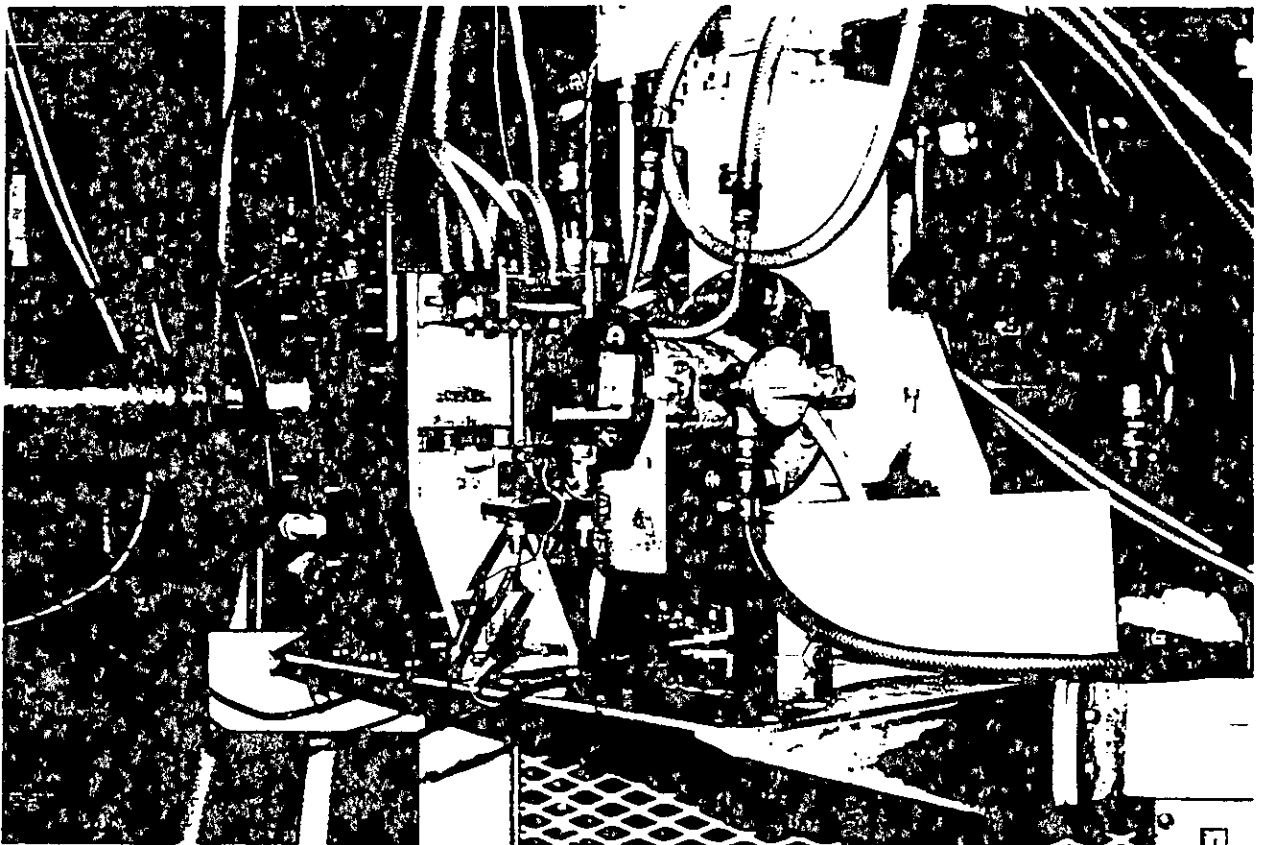


Figura 2 Línea de Haz 0 (BLO)

c) Penetración de protones en Cl: (véase Tabla 1)

$$\text{a } 67,5 \text{ MeV: } 5,2460 \text{ g/cm}^2$$

$$\text{a } 36,0 \text{ MeV: } 1,7230 \text{ g/cm}^2$$

$$\Delta E = 31,5 \text{ MeV} \Rightarrow \Delta R = 3,5230 \text{ g/cm}^2$$

d) Penetración de protones en Rh: (véase Tabla 1)

$$\text{a } 67,5 \text{ MeV: } 6,844 \text{ g/cm}^2$$

$$\text{a } 36,0 \text{ MeV: } 2,303 \text{ g/cm}^2$$

$$\Delta E = 31,5 \text{ MeV} \Rightarrow \Delta R = 4,510 \text{ g/cm}^2$$

Con los pesos atómicos de 102,905 g/mol, 35,455 g/mol, 15,999g/mol y 1.008 g/mol para Rh, Cl, O e H respectivamente el peso molecular de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ resulta ser 263,309 g/mol. De manera que la penetración de protones en $\text{RhCl}_3 \times 3 \text{H}_2\text{O}$ es:

$$\begin{aligned} \text{Penetración} = & R(\text{Rh}) \left(\text{Rh} / \text{RhCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O} \right) + R(\text{Cl}) \left(3 \times \text{Cl} / \text{RhCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O} \right) \\ & + R(\text{H}) \left(6 \times \text{H} / \text{RhCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O} \right) + R(\text{O}) \left(3 \times \text{O} / \text{RhCl}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O} \right) \end{aligned}$$

Es decir, la penetración es de 3,777 g/cm²

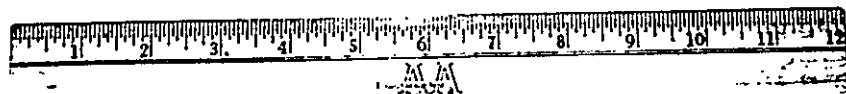
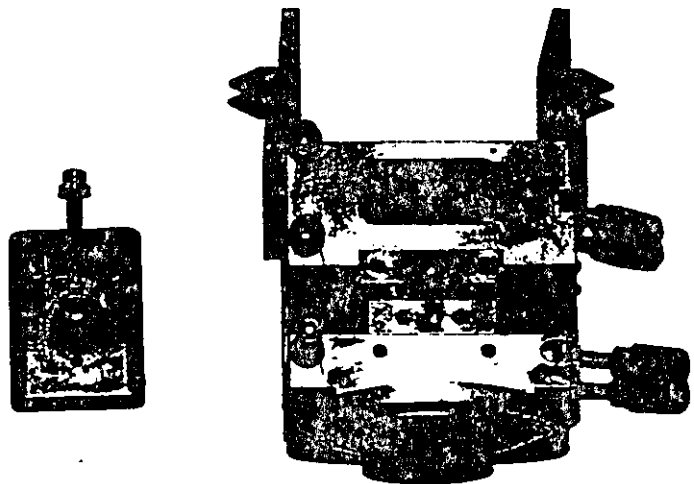
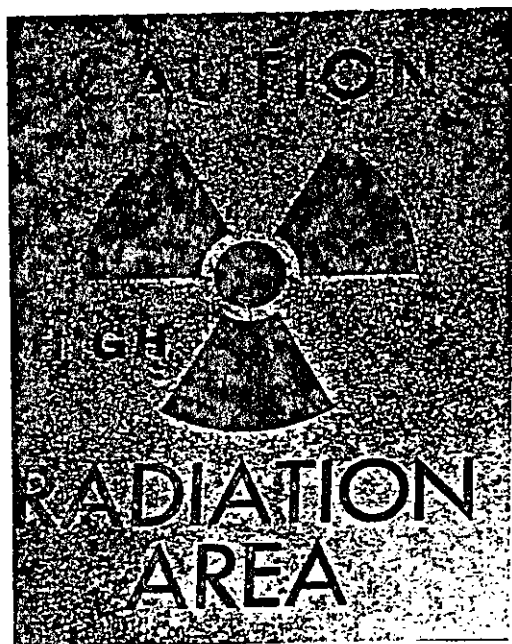


Figura 3 Blanco para $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

8) Sellado de los blancos de ^{103}Rh (metálico) y $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

Un trozo de Al de $0,0025$ cm. de espesor fue fijado por sus bordes con cinta adhesiva en el frente del blanco, dejando el centro óptico del blanco libre. Las 41 hojas de ^{103}Rh fueron colocadas de tal manera que el haz de mayor energía incidió en el centro del disco #1; el disco final y el que recibió la menor energía fue el #41. En la parte posterior del soporte de las hojas fue emplazado un trozo de ^{103}Rh de $0,0025$ cm. de espesor, fijado también con cinta adhesiva.

Se obtuvo así para ^{103}Rh metálico y $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ un blanco cilíndrico, sellado, independiente para su manipulación de la copa de Faraday.

9) Centrados de los blancos de ^{103}Rh metálico y $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

El haz de protones es sintonizado electrónicamente, para obtener una energía de 67,5 MeV y una deseada intensidad de corriente en el blanco. Esto significa diferentes condiciones de los parámetros del ciclotrón para distintas irradiaciones. Es necesario determinar experimentalmente, y para cada irradiación, el lugar preciso del blanco donde el haz de protones incidirá. El empleo de un blanco de papel en lugar del blanco de ^{103}Rh metálico o $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ permite obtener la certeza de un buen centrado. El blanco de papel se monta en lugar del blanco real, pegado a la pieza de aluminio que actúa como copa de Faraday, y es expuesto al haz. Luego de unos minutos es retirado y por inspección tanto visual (un punto quemado) como con un contador (aumento de actividad) se identifica el lugar de incidencia real del haz. En estos experimentos el diámetro del punto quemado del blanco de papel contuvo al centro geométrico del blanco, por lo que se consideró que la alineación del haz era apropiada.

10) Irradiación de los blancos

La irradiación de los blancos fue llevada a cabo con el haz externo de protones de 67.5 MeV del ciclotrón isócrono de 76 pulgadas del Crocker Nuclear Laboratory (CNL), de la Universidad de California en Davis.

La energía del haz ha sido previamente determinada por parámetros del ciclotrón, los que han sido calibrados por experimentos como tiempo de vuelo de los neutrones (neutron-time-of-flight) y destellos gama (gamma-flash).

Las condiciones experimentales de la irradiación están resumidas en la tabla siguiente

Tabla 3 Condiciones de la irradiación

Blanco:	Rh metálico (stacked-foil method)	$\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$
Lugar:	Línea de haz $\text{N}^0 \text{ E}$ (BL0)	BL0
Partículas:	H^+	H^+
Energía del haz:	67,5 ($\pm 0,5$) MeV	67,5 ($\pm 0,5$) MeV
Intensidad del haz:	0,100 μA	0.050 μA
Carga colectada		
en copa de Faraday:	276 $\mu\text{Coulomb}$ (Farady cup)	88 $\mu\text{Coulomb}$
Tiempo de irradiación:	0,90 h	0,4 h

Cálculo de la eficiencia del detector Ge(Li) ORTEC modelo 8101-1224 S

Para la determinación de la eficiencia, se empleó un standard radioactivo, mixto y de geometría puntual. La energía y emisiones por segundo estan en la Tabla 4.

El standard mixto fue contado a diferentes distancias y por distintos tiempos de contaje. Un soporte fue construido para sostener el standard de manera que su centro se encontrara a diferentes distancias entre el detector y el standard, siempre en el eje óptico del detector.

Determinación de la eficiencia con standard mixto

Este standard contiene una variedad de rayos gama (véase Tabla 4) cubriendo un rango de energías comprendido entre 88 y 1836 keV. Dicho rango de energía cubre todas las emisiones principales de los posibles productos inducidos al irradiar los blancos de Rh con protones de 67,5 MeV.

Debe señalarse que en este caso, los diferentes radionuclidos con diferentes vidas medias, constituyentes del standard, permitieron la estimación de una eficiencia para el detector Ge(Li) de gran confiabilidad. La integración de los peaks han sido efectuados con un programa que ajusta una gaussiana a cada peak bajo análisis, restando una estimación estadística de la radiación del fondo determinada por el mismo programa (PGFITN). Dada la excelente con-

cordancia encontrada entre las eficiencias determinadas a partir del número de cuentas sobre la radiación del fondo, como a partir del área, los cálculos estan en relación al número de cuentas sobre la radiación del fondo, toda vez que físicamente esto interpreta el número de eventos ocurridos en el detector y no es un ajuste puramente estadístico.

Con ello se determinó, por un programa de regresión lineal, cual es la ecuación que satisface cada conjunto de eficiencias clasificadas por las distancias standard-detector. Esto se ha resumido en las tablas 5 y 6, las que incluyen, para cada caso, el valor de la pendiente, el intercepto y el coeficiente de regresión lineal r^2 .

Tabla 4 Energías y emisiones por s del standard mixto empleado para la determinación de la eficiencia del detector Ge(Li).

Radionuclido	Energía (keV)	Vida media	Standard primario $\gamma_s^{-1} g^{-1}$	Este standard γ_s^{-1}	Error total (%)
^{109}Cd	88	463,9 d	$2,633 \times 10^4$	$2,457 \times 10^3$	5,2
^{57}Co	122	272,4 d	$2,267 \times 10^4$	$2,116 \times 10^3$	4,9
^{139}Ce	166	137,7 d	$2,629 \times 10^4$	$2,454 \times 10^4$	4,9
^{203}Hg	279	46,6 d	$7,510 \times 10^4$	$7,009 \times 10^3$	4,3
^{113}Sn	392	115,0 d	$5,241 \times 10^4$	$4,891 \times 10^3$	4,0
^{137}Cs	662	30,0 a	$7,421 \times 10^4$	$6,926 \times 10^3$	4,0
^{88}Y	898	106,7 d	$1,135 \times 10^5$	$1,059 \times 10^4$	4,0
^{60}Co	1173	5,3 a	$9,635 \times 10^4$	$8,992 \times 10^3$	4,0
^{60}Co	1332	5,3 a	$9,659 \times 10^4$	$9,015 \times 10^3$	4,0
^{88}Y	1836	106,7 d	$1,182 \times 10^5$	$1,103 \times 10^4$	4,0

Tabla 5 Resultados de la regresión lineal

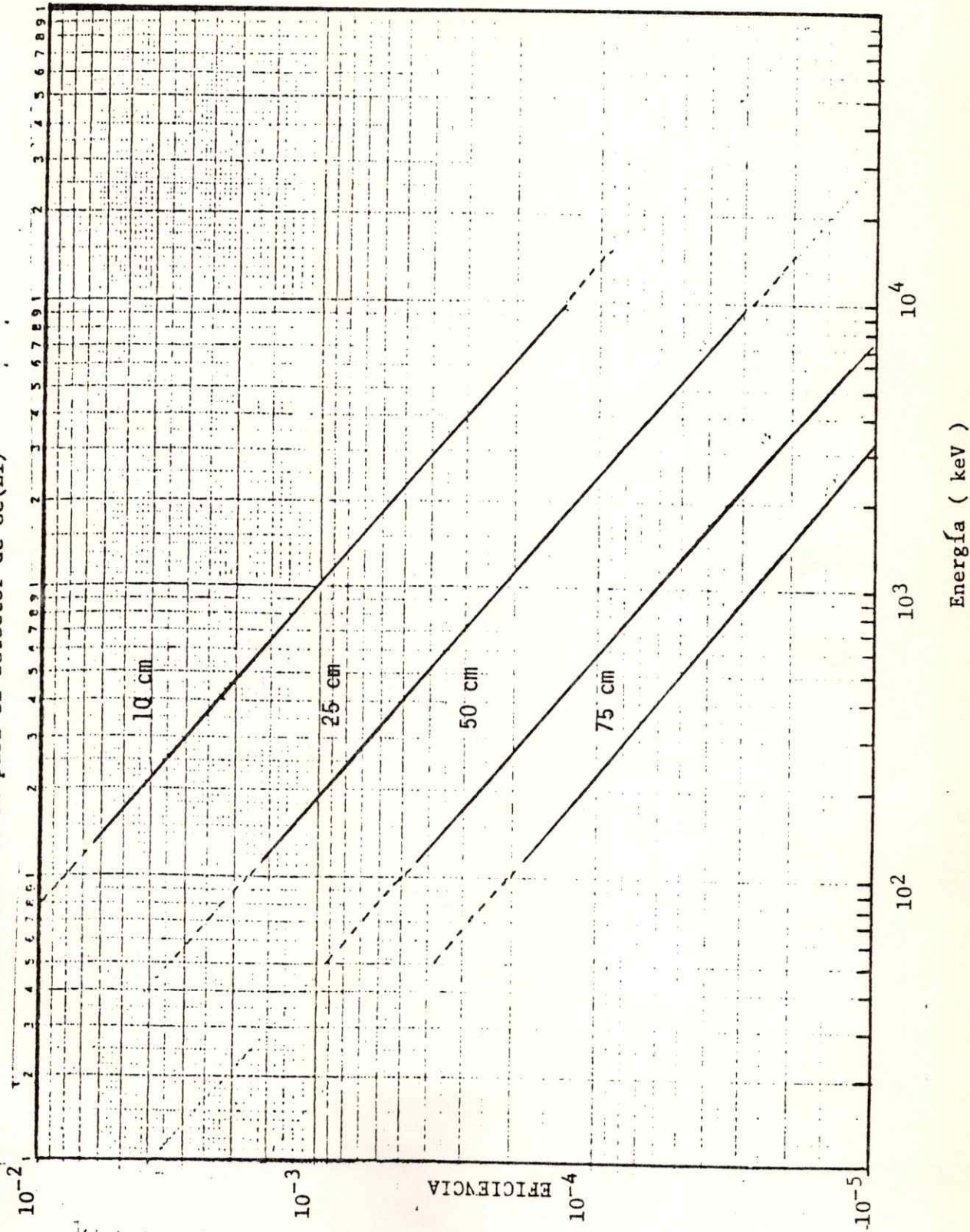
Energía (E) (keV)	log E	Logaritmo de la Eficiencia			
		10 (cm)	25 (cm)	50 (cm)	75 (cm)
88	4,4773	- 4,8652	- 6,3890	-----	-----
122	4,8040	- 4,9213	- 6,5157	- 7,7729	- 8,4589
166	5,1120	- 5,2103	- 7,0703	-----	-----
392	5,9713	- 5,9955	- 7,2089	- 8,6006	-----
662	6,4953	- 5,4956	- 8,0472	- 9,3157	-10,1519
1173	7,0673	- 7,0243	- 8,5685	- 9,7902	-10,6375
1332	7,1944	- 7,1562	- 8,6797	- 9,9654	-10,7710
1836	7,5153	- 7,4186	- 9,2103	-10,2046	-----
	$r^2 =$	0,9951	1,0000	0,9915	0,9988
	a =	- 0,7486	- 2,1631	- 3,4715	- 4,4704
	b =	- 0,8861	- 0,9060	- 0,8988	- 0,8744

Tabla 6 Ecuaciones para la eficiencia a distintas distancias

Distancia (cm)	a	- log(a)	Ecuacion	Ecuacion corregida
10	- 0,7486	0,4730	0,4730 E ^{-0,8861}	0,4730 E ^{-0,8903}
25	- 2,1631	0,1150	0,1150 E ^{-0,9060}	0,1150 E ^{-0,8903}
50	- 3,4715	0,0311	0,0311 E ^{-0,8988}	0,0311 E ^{-0,8903}
75	- 4,4704	0,0114	0,0114 E ^{-0,8704}	0,0114 E ^{-0,8903}

La pendiente negativa de las expresiones corregidas para la eficiencia del detector provienen de la media aritmética generada a partir de las ecuaciones para la eficiencia sin corregir, obtenidas para cada conjunto de distancias. La Figura 4 muestra la eficiencia del detector de Ge(Li) abarcando el rango de energías y distancias del presente estudio.

Figura 4 Curvas de eficiencia para el detector de Ge(Li)



Condiciones experimentales para el conteo de los discos de Rh

El montaje experimental para realizar el conteo tanto de los blancos, como los análisis de productos de cada fase de la separación radioquímica, consistió en un detector de Ge(Li) ORTEC modelo 8101-1224 S (bias 8 kV, polaridad positiva) provisto de un filtro de alto voltage (ORTEC modelo 119 - B) conectado a un amplificador espectroscópico (ORTEC modelo 452). Este detector fue acoplado a un analizador de pulsos de 4096 canales (Technical Measurement Corporation, TMC).

El detector fue cubierto por un blindaje de Pb de 10 cm de espesor (ladrillos de plomo de dimensiones 5 x 10 x 20 cm y de 11.35 Kg de peso).

La señal del detector es enviada hacia el multicanal (MCA) a través de un preamplificador y amplificador espectroscópico. La ganancia total fue ajustada de modo que 1024 canales correspondieran a un rango de 1 MeV, obteniéndose aproximadamente 1 keV por canal.

Un esquema del aparataje experimental de conteo aparece en la Figura 5.

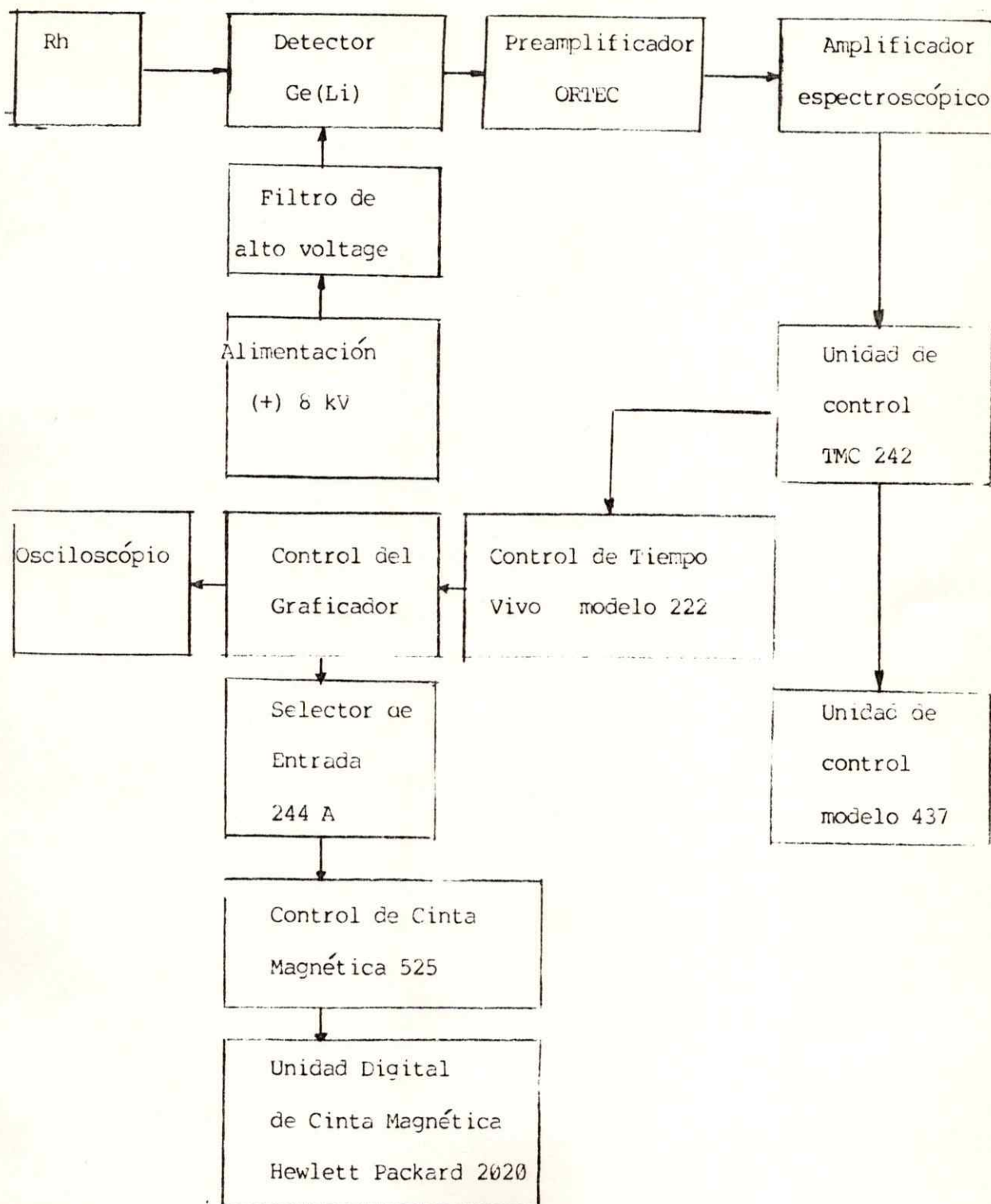


Figura 5 Montaje para el conteo de los blancos de Rh, y muestras del análisis del proceso radioquímico.

Variaciones en el analizador de pulsos impiden que tales ajustes se mantengan por períodos de un día, por lo que es necesario hacer recalibraciones del sistema periódicamente.

Calibración de energía del analizador de pulsos

La calibración de energía del analizador de pulsos fue llevada a cabo usando los fotopicos de 159 keV generados por el decaimiento de ^{123}I (vida media 13.3 h) producido semanalmente en el CNL, y el de 662 keV de una fuente de ^{137}Cs (vida media 30 a).

III.- PROCESOS RADIOQUIMICOS

3.1 Disolución de ^{103}Rh (metálico)

El proceso radioquímico de un blanco irradiado se inicia, por lo general, con la disolución en algún solvente apropiado. Es importante entonces considerar las condiciones bajo las cuales la disolución del blanco será efectuada. El propósito de disolver un blanco como ^{103}Rh o $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ es permitir que las actividades producidas se encuentren en un medio que permita su aislación o purificación de otras actividades, en forma rápida y eficiente. Pero, también es necesario considerar el porcentaje de las pérdidas que inevitablemente se producirán a través de la separación radioquímica. La disolución de un blanco, es una de las etapas del proceso radioquímico en donde las posibilidades de pérdida de actividad son altas. En efecto, el tratamiento de un blanco por un ácido u otras especies químicas producirán reacciones con evolución de gases, formación de precipitados, aumento de temperatura en la mezcla de reacción, etc., fenómenos que pueden producir pérdidas de la actividad y que, por tanto, incidirán en un bajo rendimiento cuantitativo. A lo anterior debe agregarse la necesidad de utilizar sistemas de disolución que permitan, en lo posible, la mínima manipulación tanto del blanco radioactivo, como de las soluciones resultantes, en orden a evitar innecesarias exposiciones a la radiación de las personas involucradas en el proceso radioquímico. Por lo tanto el propósito de la disolución de un blanco de ^{103}Rh o $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ será la de configurar un método que permita una disolución rápida y eficaz, con un mínimo de posibilidades de pérdidas y una baja exposición a la radiación del personal involucrado.

^{103}Rh es uno de los metales mas escasos que se encuentran sobre la superficie de nuestro planeta - una parte en 10^9 en la corteza -. Esto ha incidido en que su comportamiento y características químicas y físicas no estén completamente estudiadas. La literatura científica no es abundante al respecto, si se compara con otros elementos quimicos. Los resultados publicados acerca de los métodos para disolver ^{103}Rh metálico pueden ser, en cierta extensión, cuestionables debido a un desconocimiento de la estructura de los posibles compuestos químicos formados en dicho proceso.

La característica más importante del ^{103}Rh metálico parece ser su alta resistencia al ataque de agentes químicos. ^{103}Rh metálico es resistente al ataque de ácidos, incluso si este es tratado con agua regia. Algunos informes indican que sólo es atacado químicamente por ácido sulfúrico concentrado a temperatura de ebullición. La velocidad de reacción en este caso es bastante baja, haciendo de dicho proceso un método no práctico para el propósito de este trabajo, tanto por las posibles pérdidas de radioactividad desde un sistema en ebullición abierto, como por las pérdidas del producto por decaimiento durante el tiempo necesario para una disolución total de un blanco de ^{103}Rh metálico.

a) Disolución de ^{103}Rh por métodos de fusión.

Otros autores indican⁽¹⁷⁾, que el método de fusión a altas temperaturas es el método más apropiado para disolver ^{103}Rh , obteniéndose como

producto sales de ^{103}Rh solubles en H_2O . El método más conocido es la fusión de ^{103}Rh con sulfato ácido de potasio (KHSO_4 , punto de fusión 214°C), o con piro-sulfato de potasio ($\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_7$ punto de fusión $> 300^\circ\text{C}$). En ambos casos el producto final es un sulfato de rodio, $\text{Rh}_2(\text{SO}_4)_3$, soluble en H_2O . Este método fue intentado con una hoja de ^{103}Rh (0.01 g y 0.5 cm^2 de área) y 5 g de KHSO_4 en un crisol de porcelana, a una temperatura aproximada de 500°C durante varias horas. El resultado fue una leve corrosión superficial de la hoja de ^{103}Rh . De esta manera, este método de fusión fue descartado.

Como alternativa al KHSO_4 , se intentó la fusión con una mezcla de NH_4NO_3 y NaOH (puntos de fusión 169.6 y 318.4°C , respectivamente) en una proporción 1:3. De manera análoga a la fusión anterior la mezcla de reacción y la hoja de ^{103}Rh (de similar peso y dimensiones) fueron depositadas en un crisol de porcelana. Esta vez para su calentamiento se utilizó la llama de un soplete de gas-oxígeno. Tanto el NH_4NO_3 como el NaOH funden inmediatamente. El líquido incoloro ebulle por un par de minutos transformándose en una masa densa y semitransparente. Luego de 10 min de calentamiento, la masa-producto obtenida se deja enfriar a temperatura ambiente. El producto es primero disuelto en H_2O y el residuo insoluble es tratado con ácido clorhídrico 12 M . La disolución no es total, pero sí lo bastante como para obtener, por simple observación visual o con un microscopio, evidencias de corrosión del blanco de ^{103}Rh , en menor grado que la corrosión producida por el tratamiento con KHSO_4 .

Varios autores, entre ellos Scott⁽¹⁸⁾, concuerdan en que la fusión con ácido fosfórico debería disolver ^{103}Rh metálico, pero el desconocimiento de la estructura de los posibles productos hace que este método sea descartado

para nuestros propósitos.

La fusión de ^{103}Rh con peróxido de sodio (Na_2O_2 , descompone a $>460^\circ\text{C}$) es la que produjo mejores resultados. En este caso la reacción es mejor conocida y el producto debería ser el sesquióxido de Rh de acuerdo a la reacción



La fusión es realizada con aproximadamente 1 g de peróxido de sodio y un trozo de Rh de 0.01 g y 0.5 cm² de área; la fusión al igual que en los otros casos es efectuada en un crisol de porcelana. La mezcla de reacción es mantenida en horno a 300 °C, hasta que se observa la formación de monóxido de sodio (Na_2O , punto de sublimación 1275 °C). La temperatura es elevada a 500 °C y mantenida por 2 h. El crisol es enfriado a temperatura ambiente y la masa gris/negra, obtenida como producto, es tratada con 5 mL de agua regia. El residuo obtenido muestra a la hoja de ^{103}Rh fuertemente atacada y cubierta por una capa de corrosión color café sucio debido a la presencia, en un gran porcentaje del producto final, del dióxido de rodio (RhO_2).

La fusión con peróxido de sodio, es el método que mejores resultados produjo desde el punto de vista químico. No se realizó un análisis cuantitativo del residuo ya que este proceso fue descartado, toda vez que las condiciones experimentales no eran las apropiadas (sistema abierto, salpicaduras potenciales, pérdidas por gasificación, innecesaria exposición etc.) para un proceso rutinario con radionuclidos.

b) Disolución Electrolítica de ^{103}Rh Metálico

Dado que los resultados obtenidos para la disolución de ^{103}Rh metálico por métodos químicos usuales para la disolución de un metal, no ofrecen las condiciones mínimas (tiempo empleado, pérdidas, exposición etc.) para un blanco radioactivo, se consideró la disolución electrolítica como la alternativa más viable.

La disolución de ^{103}Rh por medio de un proceso electrolítico fue publicado por Ku et al ⁽¹⁵⁾. Dichos autores informan que este método es la forma más exitosa y rápida para disolver totalmente un blanco de ^{103}Rh metálico. Debido a este informe y a comunicaciones privadas con los autores, se ensayó la disolución electrolítica de ^{103}Rh .

Determinación de las Condiciones Experimentales para la Disolución de ^{103}Rh

Varios experimentos fueron llevado a cabo en orden a determinar las mejores condiciones experimentales para la disolución de ^{103}Rh . Un esquema del montaje experimental es mostrado en la Figura 6. Los resultados estan resumidos en la Tabla 7.

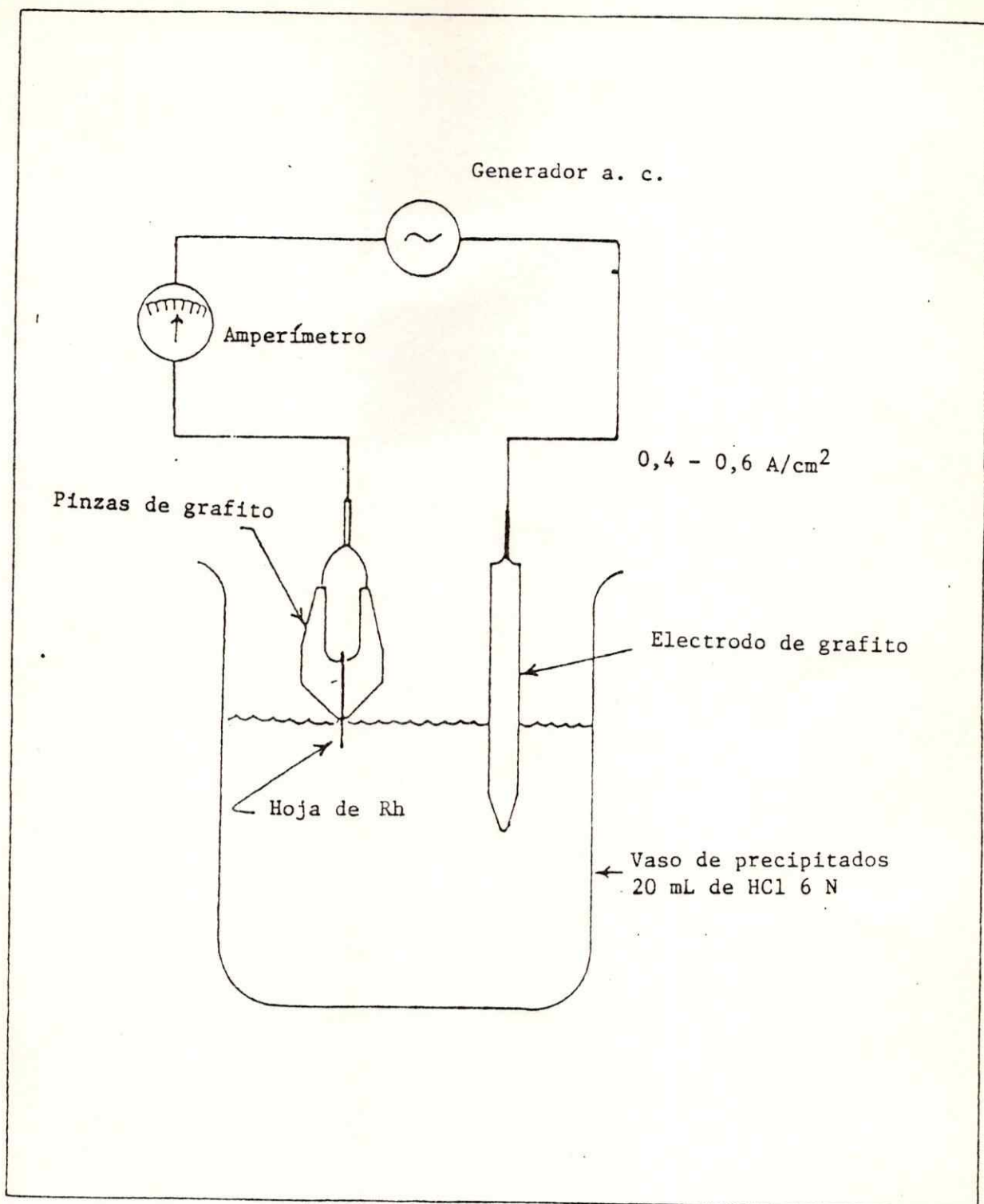


Figura 6. Disolución electrolítica de ^{103}Rh metálico

Tabla 7 Resultado de la disolución electrolítica en HCl 6N de ^{103}Rh *

Experimento	Area (cm^2)	t (min)	Intensidad (A)	Masa (g)	Masa Final (g)	Disolución (g/h)	Densidad de Corriente (A/cm^2)
1	0.25	35	0.1	0.011	~ 0.000	0.018	0.4
2	0.50	35	0.2	0.017	0.004	0.022	0.4
3	0.75	50	0.3	0.030	0.002	0.033	0.4
4	1.00	55	0.4	0.038	0.002	0.039	0.4
5	0.75	50	0.6	0.028	0.007	0.025	0.8
6	1.00	50	0.8	0.040	0.005	0.042	0.8

* Basado en mediciones experimentales obtenidas por Paul C. Johnson. Associated Western Universities, Summer 1981 Fellow

Es fácil deducir de los valores para la tasa de electrodisolución (g/h) en HCl 6 N, que un aumento de la corriente aplicada (A) no muestra una significativa aceleración en la pérdida de masa, por ionización, en una hoja de ^{103}Rh . Fue observado, por el contrario, que un incremento en la corriente aumenta la cantidad de fragmentación de la lámina de ^{103}Rh . Fragmentación que tiende a ocurrir hacia el fin de la electrodisolución. Es así como a 0.1 A (hoja N° 1) la cantidad de fragmentación es casi imperceptible, mientras que con una intensidad de 0.8 A (hoja N° 6) la tasa de fragmentación es máxima, quedando como residuo, en la celda electrolítica fragmentos de 0.01 a 0.02 cm^2 e incluso trozos de la hoja de ^{103}Rh de ~0.05 cm^2 .

La distancia entre los electrodos es una variable que en todos los expe-

rimentos se mantuvo constante (2.5 cm) y no se hicieron intentos de medir la disolución de ^{103}Rh variando la separación entre estos dada la geometría y tamaño de los electrodos de grafito. Cabe esperar que una distancia menor acelerare la disolución.

Debe hacerse notar que el volumen de HCl 6 N empleado fue de 20 mL. A medida que la electrodisolución progresa el electrolito se calienta, la pérdida de volumen de HCl proviene tanto de la evaporación como, y en mayor grado, de la liberación de gas de la solución. Fue necesario entonces agregar cada cierto tiempo alícuotas de HCl para mantener el volumen original.

3.2 Procesos radioquímicos para ^{103}Rh (metálico) y $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

A.- ^{103}Rh (metálico)

1.- Disolución de la lámina de ^{103}Rh (metálico) electrolíticamente en 20 ml de HCl 6N, con una corriente de 0,4 a 0,6 A/cm².

2.- Evaporación a sequedad de la solución. Debe ser evitada, por efecto de la temperatura, la oxidación del complejo de ^{103}Rh color rojo.

3.- Redisolución del complejo de ^{103}Rh en 5 a 10 mL de H₂O desionizada y libre de pirógenos. La solución resultante debe tener pH inferior a 5 y de color rojo.

4.- Adición de aproximadamente 3 a 5 gotas de glioximato de sodio (Na-DMG) al 10%. Formación de la forma ácida del H-DMG insoluble en H₂O.

5.- Separación de los radionuclidos de Pd, sin la necesidad de agregar Pd natural (no-carrier-added). Extracción de los radionuclidos de Pd contenidas en la forma ácida del H-DMG, con una mezcla de cloroformo y H₂O (3:1), mas 1 mL de H₂SO₄ (concentrado). La fase orgánica contiene a los radionuclidos de Pd, la fase acuosa contiene a los radionuclidos de Ru y Rh directamente producido.

La fase orgánica es almacenada por 32.7 h para la obtención de $^{101\text{m}}\text{Rh}$, indirectamente producido, por decaimiento de ^{101}Pd .

6.- Destilación de la fase acuosa obtenida en la extracción. La mezcla a destilar está compuesta por H₂O destilada, HClO₄ (70%) y H₂SO₄ concentrado. La proporción en volumen es de 3:2:5 para 1 mL de actividad. El destilado es recogido en CH₃COCH₃ a 0 °C. El destilado contiene los radionuclidos de ⁹⁷Ru, mientras que el agua-madre contiene los radionuclidos de Rh directamente producido.

Preparación de las actividades obtenidas para la marcación de moléculas.

El objeto es colocar a los radionuclidos en un medio que sirva de punto de partida para futuros experimentos.

a.- Actividad de ⁹⁷Ru.

Evaporación, evitando exceso de temperatura o calentamientos localizados el CH₃COCH₃ que contiene a los radionuclidos de ⁹⁷Ru.

Redisolución en HCl 0.1 N u otro solvente apropiado.

b.- Actividades de ^{101m}Rh y ¹⁰⁰Pd.

Evapora la solución orgánica obtenida de la extracción con cloroformo. Luego de 32.7 h esta fase contiene actividades de ¹⁰⁰Pd y ^{101m}Rh proveniente del decaimiento de ¹⁰¹Pd.

Reextracción de las actividades de ^{100}Pd en cloroformo con H-DMG. La fase orgánica de esta reextracción contiene a las actividades de ^{100}Pd que no han decaído. La fase acuosa contiene a la actividad de $^{101\text{m}}\text{Rh}$ indirectamente producido por decaimiento de ^{101}Pd .

Evaporación a sequedad, lentamente, de la fase acuosa.

Redisolución de la actividad de $^{101\text{m}}\text{Rh}$ en HCl 0.1 N u otro solvente.

Evaporación del cloroformo a temperatura ambiente, o en su defecto, utilizando una corriente de aire o He.

El residuo es lavado con 5 mL de HNO_3 concentrado y en caliente. La solución es mantenida a temperatura de ebullición por alrededor de 10 min. Cuando la solución alcance un volumen aproximado de 1 mL, término de evaporar a temperatura ambiente.

Finalmente, lávese el vaso de precipitados con la menor cantidad posible de HCl 0,1N u otro solvente apropiado.

B.- $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

Disuélvase el blanco en 5 a 10 mL de HCl 6 N.

Evapórese a sequedad.

Repita todos los pasos, a partir del punto 2, como si se tratara de ^{103}Rh metálico.

Un esquema en bloques del proceso radioquímico conducente a la producción de ^{97}Ru , ^{100}Pd y $^{101\text{m}}\text{Rh}$ (NCA) se encuentra en la Figura 7

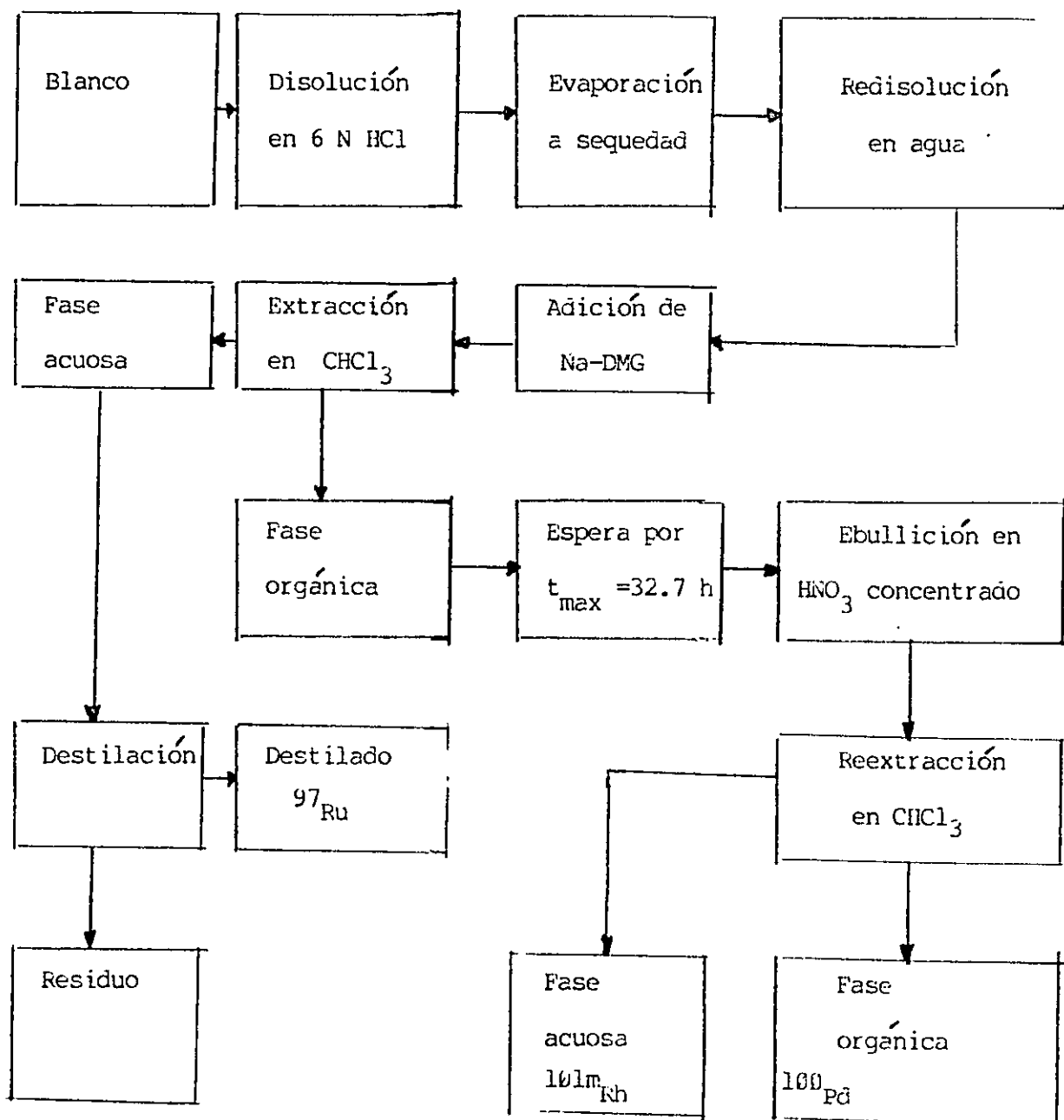


Figura 7. Diagrama en bloques del proceso radioquímico para la obtención de ⁹⁷Ru, ¹⁰⁰Pd y ^{101m}Rh libre de portadores (NCA).

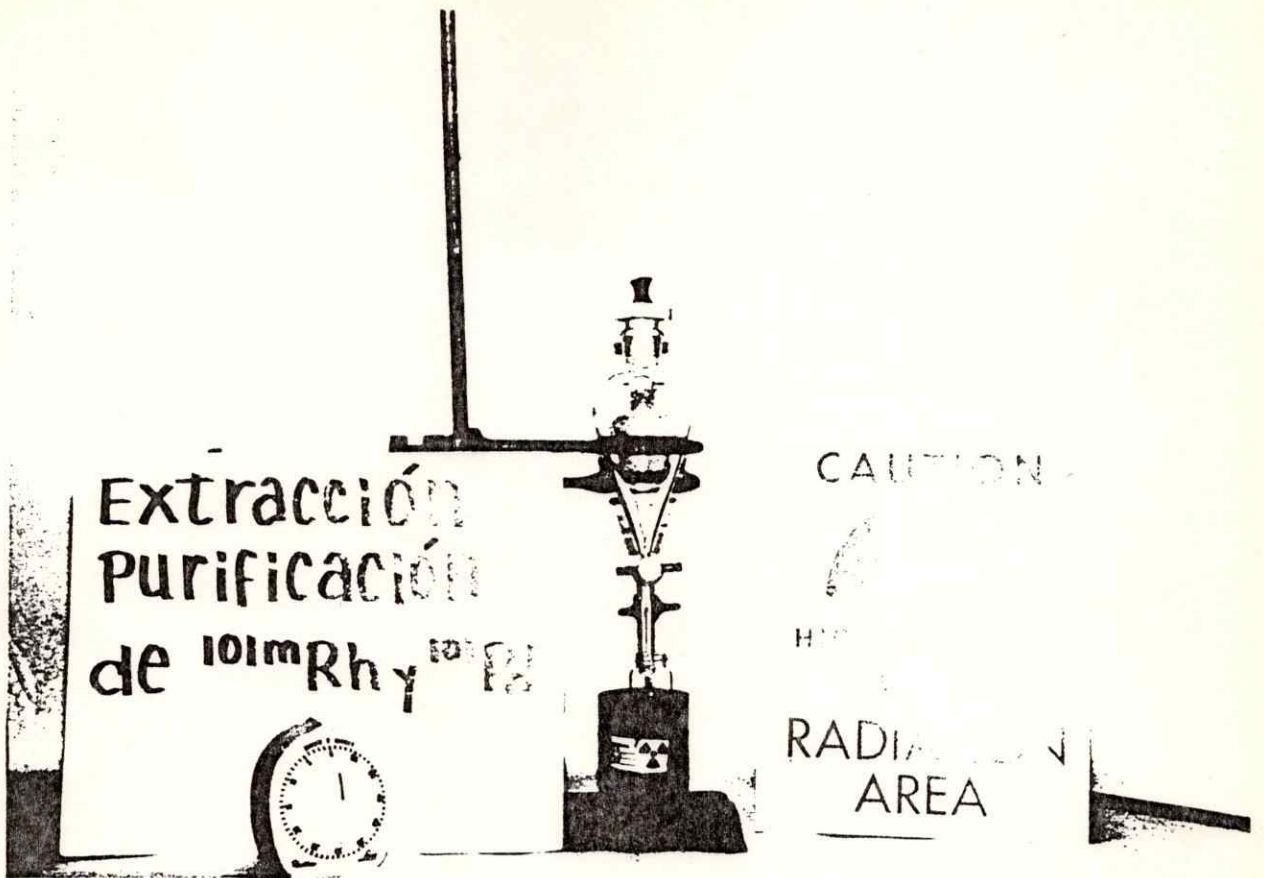


Figura 8 Sistema de extracción

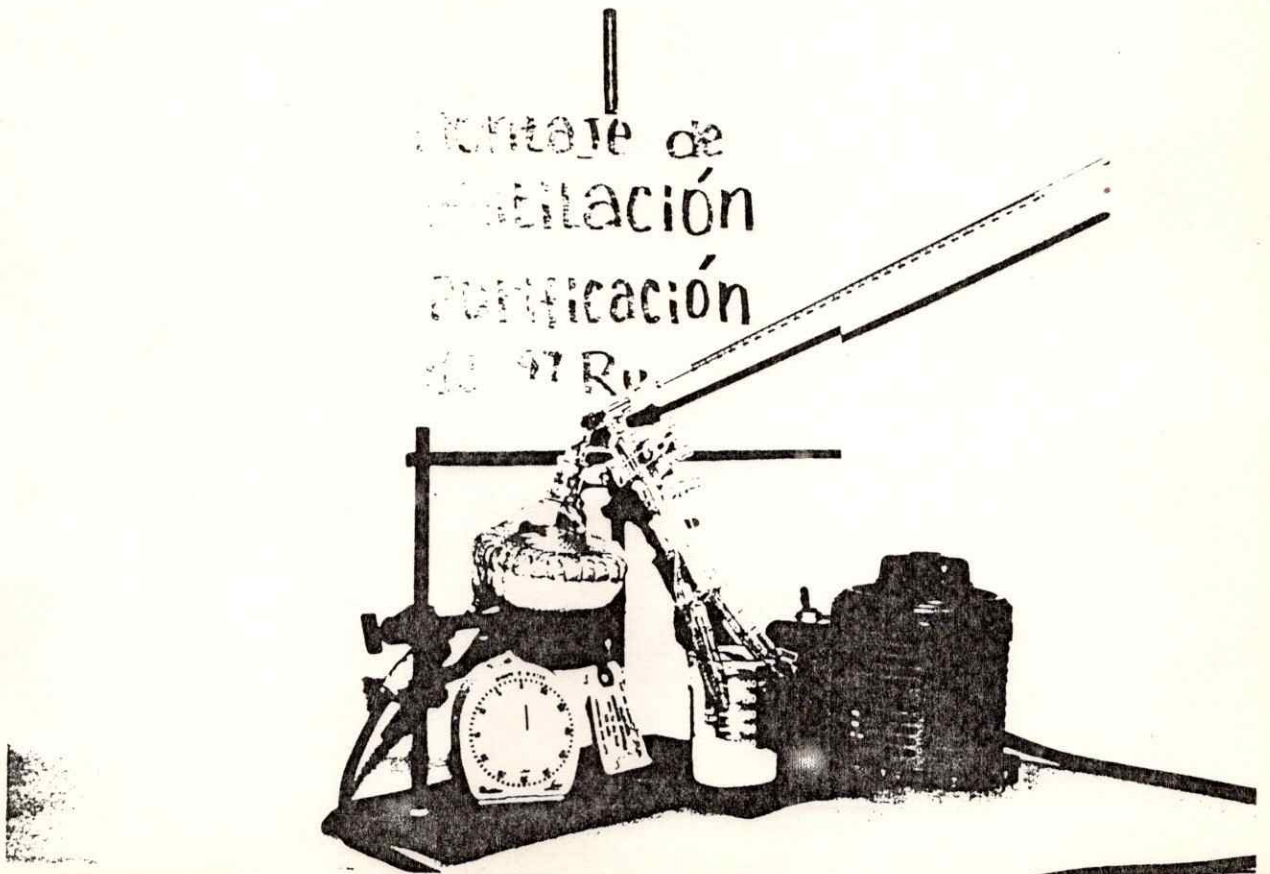


Figura 9 Sistema de destilación

IV.- ANALISIS DE LOS DATOS.

Calculo del Rendimiento (mCi/uAh o uCi/uAh)

El resultado del análisis de la espectroscopía gama, realizado a tiempo de conteo, es la integral del área encerrada por el fotopico en cuestión. Esto es, los radionuclidos como consecuencia de sus características nucleares emiten rayos gama. Es la identificación de estos rayos gama lo que permite dilucidar los radionuclidos producidos. Cuantos de ellos son generados en el blanco, en un tiempo dado, como el tiempo de irradiación, y bajo condiciones experimentales pre-establecidas es una variable necesaria para determinar el rendimiento del radionuclido producido.

Los datos iniciales estan contenidos en los espectros obtenidos para cada uno de los 41 discos de ^{103}Rh que conformaron el blanco. Los espectros, almacenados en cinta magnética, fueron introducidos a un computador PDP 15/40 el cual mediante un programa (PGFITN) asocia una gaussiana a un fotopico previamente individualizado. La radiación de fondo ha sido estimada, ajustando un fondo lineal, directamente sobre el espectro desde un periférico inteligente. Se obtiene de esta forma el área de cada fotopico como cuentas sobre la radiación de fondo.

Tiempo de Conteo

El tiempo de conteo, es el intervalo durante el cual cada uno de los discos de ^{103}Rh es colocado secuencialmente a una distancia pre-seleccionada para que el sistema de detección, a través del detector, acumule eventos o cuentas. El número de cuentas (es decir, el número de rayos gama detectados)

aumenta si el tiempo de conteo es incrementado. La probabilidad que un núcleo radioactivo determinado decaiga y emita un fotón es directamente proporcional a la duración del intervalo de tiempo durante el cual es contado.

Eficiencia del Detector

La eficiencia del detector de Ge(Li), usado para la espectroscopía gama, depende significativamente de la energía del rayo gama en cuestión. Por lo que es necesario, conociendo la geometría detector-disco de ^{103}Rh , calcular la eficiencia del detector. Para tal efecto se emplean las ecuaciones de la página 26, deducidas por experimentos independientes, para cada energía de los fotopicos.

Porcentaje de Tiempo Vivo

El porcentaje de tiempo vivo (100% - % de tiempo muerto) es una característica que depende del sistema electrónico para la detección de radiación. En efecto, el tiempo muerto es el lapso durante el cual ningún evento puede ser registrado por el detector. Correcciones de tiempo vivo son necesarias para asegurar que determinaciones con diferentes tasas de conteo y/o estadísticas puedan ser comparadas en términos de tiempo real de conteo para un detector y electrónica dados.

Probabilidad por Decaimiento

La radiación gama característica de un radionuclido corresponde a diferentes modos en que el núcleo se desexcita. Aun cuando la gran mayoría de los radionuclidos decae a un elemento estable particular, sus espectros están compuestos por varios rayos gama. Esto deriva de la existencia de niveles energéticos en el elemento hacia el cual el radionuclido decae. Al

escoger, para un análisis de espectroscopía gama, una determinada emisión gama debe considerarse en que porcentaje el radionuclido se desexcita o decae emitiendo el rayo gama característico.

Carga Colectada

La cantidad de un radionuclido formado por una reacción nuclear es dependiente también del flujo de partículas incidentes por unidad de área y unidad de tiempo. Esto se traduce en la carga que es depositada en el blanco. Esta carga, que es una medida directa del número de partículas cargadas, como protones, que inciden en el blanco es conocida mediante el empleo de un integrador de corriente. En el presente estudio, para determinar las secciones eficaces de los posibles productos, la intensidad del haz correspondió a 0.100 uA o, lo que es equivalente, a 3600 uCoulomb/h. Por medio del integrador de corriente sabemos que la carga depositada en el blanco fue de 276 uCoulomb. La corrección para dicha carga es el factor 3600/276.

Conversion a uCi

La unidad tradicional para referir la actividad de una muestra radioactiva es el Curie ($3,7 \times 10^{10}$ dps)*, el cual esta basado en la tasa de desintegración de un patrón como ^{238}U . Posteriores determinaciones de la vida media del ^{238}U han arrojado como conclusión que la unidad Curie depende de cuan confiable y exacta es la determinación de la vida media del ^{238}U .

*El Sistema de Unidades Internacionales ha fijado el Becquerel como unidad de actividad. $1 \text{ Bk} = 1 \text{ dps}$, $1 \text{ Ci} = 3,7 \times 10^{10} \text{ Bk}$.

El número $2,22 \times 10^6$ es una constante que multiplicada por las cuentas sobre el background y apropiadamente corregidas (% tiempo vivo, eficiencia, abundancia etc.) permite calcular el rendimiento.

Factor de Decaimiento

Por cierto los diferentes radionuclidos producidos por el haz de protones al incidir en el blanco, poseen distintas vidas medias y constantes de decaimiento.

El conteo de los discos de ^{103}Rh , fue efectuado a un tiempo de conteo distinto del momento al cual el haz es quitado del blanco. A un cierto tiempo de conteo (por ejemplo, horas después de cesada la irradiación) la tasa de desintegración para los distintos radionuclidos es diferente, dependiendo de sus vidas medias. Es necesario entonces para cuantificar el rendimiento, conocer el número de radionuclidos formados, por una reacción nuclear, durante la irradiación del blanco. Para ello las cuentas sobre la radiación de fondo corregidas de acuerdo a los puntos anteriores, son ahora corregidos por el factor de decaimiento. Es decir, se corrige la actividad de un radionuclido por cuanto ha decaído desde el tiempo de terminada la irradiación del blanco hasta su análisis espectroscópico.

Es necesario, a veces, corregir incluso cuanto ha decaído un radionuclido durante la irradiación, si este es de vida media corta (considerese como ejemplos, ^{98}Pd (17 min), ^{98}Rh (8,8 min)). El factor de decaimiento es el recíproco de cuanto ha decaído un radionuclido en ese mismo período de tiempo y se calcula por:

$$\text{Factor de Decaimiento} = (e^{-\lambda t})^{-1} = e^{\lambda t}$$

en que λ es la constante de decaimiento característica de cada radionuclido.

En resumen, las cuentas sobre la radiación de fondo, obtenidas por mediciones hechas en el blanco mismo, a través del sistema de detección y procesamiento de datos, son corregidas por tiempo de conteo, eficiencia del detector, porcentaje de tiempo vivo, probabilidad que el radionuclido se desexcite por algún modo de decaimiento en particular, carga colectada, factor de decaimiento y constante numérica. Todo lo anterior permite reducir la información derivada de la espectroscopía gama, a un número cuyas dimensiones físicas son las de $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$.

El resultado para los radionuclidos está tabulado al final de cada irradiación (EOB, end of bombardment). Correcciones para el decaimiento durante la irradiación han sido consideradas. La expresión que agrupa lo anterior es:

$$\frac{\text{Cuentas/fondo}}{\text{T. de Conteo}} \times \frac{1}{\text{eficiencia}} \times \frac{1}{\text{Abunda.}} \times \frac{1}{\% \text{ T.V.}} \left[\begin{array}{l} \text{Factor de} \\ \text{Decaimiento} \end{array} \right] \frac{1}{2.22 \times 10^6} \times \frac{3600}{276}$$

= $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$

El rendimiento está en $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$. Dichas unidades hacen posible comparar este rendimiento con alguna otra irradiación, efectuada con distinta intensidad de haz y/o a distintos tiempos de irradiación, en forma rápida si este último rendimiento se encuentra también en $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$.

En el caso de la corrección, para los radionuclidos de vida media corta, durante la irradiación la expresión utilizada es

$$\text{Factor para el decaimiento en la irradiación} = t(i) / (1 - e^{-\lambda t(i)})$$

en donde $t(i)$ es el tiempo de irradiación y λ la constante de decaimiento, característica para cada radionuclido. Debe señalarse que la ecuación anterior es un compromiso entre la tasa de formación de un radionuclido durante la irradiación y su tasa de decaimiento durante la irradiación.

Cálculo de las Secciones Eficaces

A partir de los rendimientos medidos (mCi/μAh o μCi/μAh) para los diferentes radionuclidos producidos en este estudio, es posible calcular empíricamente las funciones de excitación para las reacciones nucleares productoras de tales radionuclidos. El método empleado para tal efecto ha sido elaborado por Lagunas-Solar et al⁽²⁰⁾.

Método

Los rendimientos (mCi/μAh) para cada uno de los radionuclidos producidos, en función de la energía del haz de protones, han sido corregidos por el decaimiento, para cada radionuclido producido, entre el tiempo a que el análisis de la espectroscopía gama fue realizada y el fin de la irradiación. Este rendimiento (mCi/μAh) ha sido nuevamente corregido, por el decaimiento de cada radionuclido durante la irradiación, para estimar cuantitativamente el valor de la sección eficaz de reacción (mb) en función de la energía del haz de protones.

El rendimiento es obtenido empleando la siguiente expresión, derivada por Lagunas-Solar et al⁽²⁰⁾. Debe notarse que esta ecuación lleva, implícitamente, el grosor del blanco (g/cm²).

$$\begin{aligned}
 \text{Rendimiento} &= A_0 \\
 &= (R \lambda t_D) / (Q T [1 - e^{-\lambda t}]) \\
 &= (\text{mCi g}^{-1} \text{cm}^2 / \mu\text{Ah})
 \end{aligned}$$

en donde las notaciones representan:

R = Radioactividad (mCi) a (EOB)

λ = Constante de decaimiento característica de cada nuclido (h^{-1})

t_b = Tiempo de irradiación (h)

Q = Carga total integrada en copa de Faraday (μAh)

T = Grosor del blanco (g/cm^2)

Para el cálculo de las secciones eficaces totales de reacción, a partir de los valores para el rendimiento ($mCi g^{-1} cm^2 / \mu Ah$), se utilizó la siguiente expresión:

$$\text{Sección Eficaz} = C A_0 / \lambda \quad (\text{mb})$$

la constante C esta definida por la relación:

$$\begin{aligned} C &= (10^{27} D) / (P B_i G_i) \\ &= (g \mu A / mCi) \end{aligned}$$

en esta oportunidad las constantes involucradas significan:

D = Decaimiento (/hmCi)

P = Número de protones por microamperes por hora ($6,12 \cdot 10^{12} p/\mu Ah$)

B_i = Átomos por gramo de ^{103}Rh ($i = 1$. ^{103}Rh es 100% en abundancia)

G_i = Abundancia isotópica de ^{103}Rh (ver parentesis de B_i)

V RESULTADOS

5.1 Características Físicas de los Radionuclidos Producidos.

Los radionuclidos del presente estudio han sido seleccionados, de entre todos los producidos por la irradiación de ^{103}Rh con protones, de acuerdo a ciertos requerimientos. Razones tales como vida media, propiedades físicas y posibilidad de formar compuestos químicos, que permitan la obtención de moléculas de interés biológico.

Para los efectos de su detección estos nuclidos emiten radiación gama en un rango que permite obtener una buena respuesta en los sistemas de detección. En este caso es importante considerar la energía de los gamas emitidos para ser empleados en los "scanners". Por cierto la energía emitida por los radionuclidos no sólo debe considerarse en función de su detección. Es también de primordial importancia considerar la dosis de radiación que será administrada a un posible paciente. Esto significa que los radionuclidos escogidos no deberían emitir, en lo posible partículas y/o radiación beta o gama de alta energía. En suma, lo que se persigue es que la dosis de radiación que un paciente recibirá, como consecuencia de la radioactividad contenida en su cuerpo sea la mínima posible.

Los resultados de los rendimientos obtenidos en el presente trabajo se encuentran tabulados en las tablas 8 a 30 y figuras 10 a 32.

Tabla 8 Características físicas de los radionuclidos identificados en las irradiaciones de ^{103}Rh y $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$

Radionuclido	Vida Media	Modo de Decaimiento	Principales Gammas (keV) y Probabilidad de Decaimiento
^{97}Ru	2.88 d	EC, no β^+	216 (86%), 324 (11%), 569 (8.6%)
^{95}Tc	20.0 h	EC, no β^+	766 (93%), 947 (2.1%)
$^{95\text{m}}\text{Tc}$	61 d	EC (95.8%) β^+ (0.3%) IT (3.9%)	204 (66%), 786 (9%), 835 (28%)
^{96}Tc	4.35 d	EC no β^+	778 (99%), 812 (81.3%), 850 (96.7%)
^{98}Pd	17.5 min	EC + β^+	112 (47%), 663 (20%), 838 (14%)
^{99}Pd	21.4 min	β^+ , EC	136 (73%), 264 (15%), 673 (6.9%)
^{100}Pd	3.63 d	EC	84 (63%), 75 (62%), 126 (13%)
^{101}Pd	8.47 h	EC (93.6%) β^+ (6.4%)	296 (18%), 269 (5.9%), 590 (11.3%)
$^{97\text{m}}\text{Rh}$	44 min	β^+ , EC IT (5.3%)	189 (62%), 421 (13.3%)
^{98}Rh	8.7 min	β^+ , EC	652 (94%), 745 (5.3%)
$^{99\text{m}}\text{Rh}$	4.7 h	EC, β^+	618 (13%), 528 (2%)
^{100}Rh	20.8 h	EC (95%), β^+ (4.1%)	548 (78%), 446 (42%), 822 (76%)
^{101}Rh	3.3 a	EC	127 (70%), 198 (66%), 325 (12.8%)
$^{101\text{m}}\text{Rh}$	4.26 d	EC (92.8%), IT (7.2%)	307 (87%), 545 (4%)
^{102}Rh	2.9 a	EC, no β^+	475 (95%), 631 (55.9%), 697 (44%)

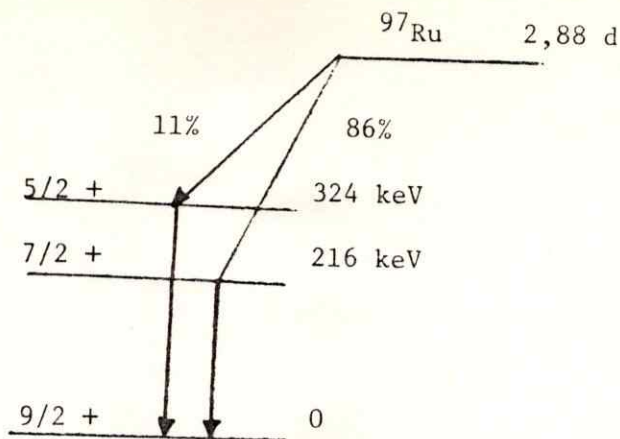


Figura 10 Niveles de decaimiento de ^{97}Ru .

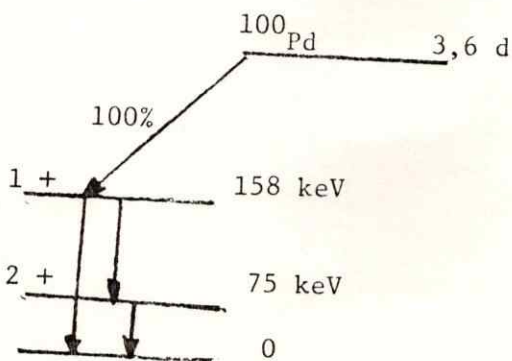


Figura 11 Niveles de decaimiento de ^{100}Pd

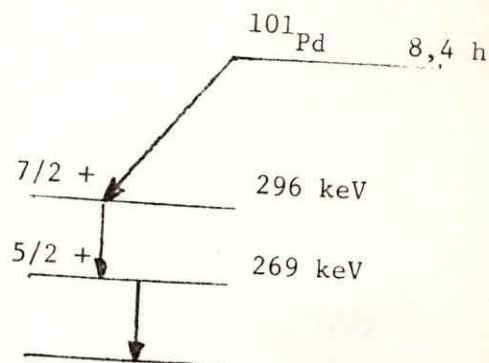


Figura 12 Niveles de decaimiento de ^{101}Pd

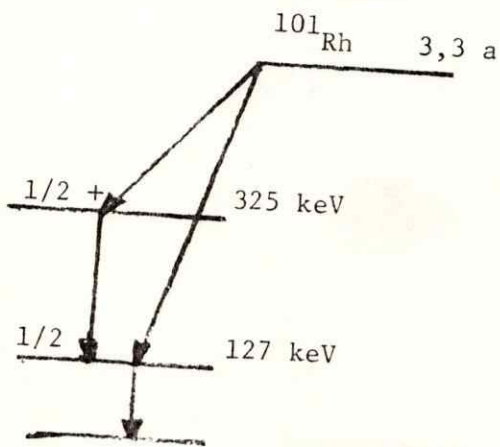


Figura 13 Niveles de decaimiento de ^{101}Rh

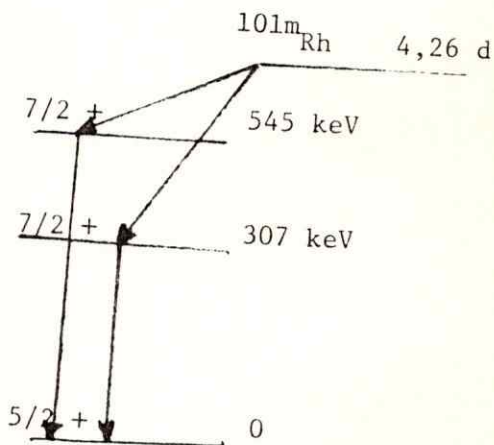


Figura 14 Niveles de decaimiento de $^{101\text{m}}\text{Rh}$.

97

Tabla 9 Rendimiento para Ru

disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh EOB	Rendimiento corregida
1	10	3,67	1,0375	4920	48	50	67,1	0,03	0,03
2	10	4,02	1,0411	5559	46	50	66,2	0,03	0,03
3	10	4,18	1,0428	4739	48	50	65,3	0,03	0,03
4	10	4,40	1,0451	5473	48	50	64,3	0,03	0,03
5	10	4,60	1,0472	5882	48	50	63,4	0,03	0,03
6	10	4,78	1,0491	6122	48	50	62,4	0,04	0,04
7	10	4,97	1,0511	6588	48	50	61,5	0,04	0,04
8	10	5,15	1,0530	6828	48	50	60,5	0,04	0,04
9	10	5,33	1,0549	7493	48	50	59,5	0,04	0,04
10	10	5,53	1,0570	7839	48	50	58,5	0,05	0,05
11	10	5,73	1,0591	9499	48	50	57,5	0,06	0,06
12	10	5,92	1,0612	10158	48	50	56,5	0,06	0,06
13	10	6,10	1,0631	11579	48	50	55,5	0,07	0,07
14	10	6,28	1,0650	13136	50	50	54,4	0,07	0,07
15	10	6,47	1,0670	14065	50	50	53,4	0,08	0,08
16	10	6,65	1,0690	15397	50	50	52,3	0,09	0,09
17	10	6,83	1,0709	15015	52	50	51,2	0,08	0,08
18	10	7,03	1,0730	15272	52	50	50,1	0,08	0,08
19	10	7,22	1,0751	15405	54	50	49,0	0,08	0,08
20	10	7,43	1,0773	15040	54	50	47,9	0,08	0,08
21	10	7,62	1,0794	13813	56	50	46,7	0,07	0,07
22	10	7,80	1,0814	12416	58	50	45,5	0,06	0,06
23	10	7,98	1,0833	10387	60	50	44,3	0,04	0,04
24	10	8,22	1,0859	7978	62	50	43,1	0,04	0,04
25	10	8,45	1,0884	5326	62	50	41,9	0,02	0,02
26	10	8,68	1,0909	3248	64	50	40,5	0,01	0,01
27	10	8,92	1,0936	1822	66	50	39,2	0,01	0,01
28	10	9,10	1,0955	494	68	50	37,8	0,00	0,00

95

Tabla 10 Rendimiento para Tc

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh EOB	Rendimiento corregida
1	10	3,67	1,14	3496	48	50	67,1	0,06	0,06
2	10	4,02	1,15	3080	46	50	66,2	0,06	0,06
3	10	4,18	1,16	2293	48	50	65,3	0,04	0,04
4	10	4,40	1,16	1882	48	50	64,3	0,03	0,04
5	10	4,60	1,17	1404	48	50	63,4	0,03	0,03
6	10	4,78	1,18	878	48	50	62,4	0,02	0,02
7	10	4,97	1,19	820	48	50	61,5	0,02	0,02
8	10	5,15	1,20	798	48	50	60,5	0,02	0,02
9	10	5,33	1,20	609	48	50	59,5	0,01	0,01

95m

Tabla 11 Rendimiento para Tc

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento EOB mCi/uAh	Rendimiento corregida
1	2,0	1021,0	1,62	4776	92	10	67,1	0,18	0,18
2	2,0	983,4	1,59	4016	92	10	66,2	0,12	0,12
3	2,0	981,3	1,59	3300	92	10	65,3	0,10	0,10
4	2,0	978,5	1,59	2162	92	10	64,3	0,07	0,07
5	2,0	976,4	1,59	1844	92	10	63,4	0,06	0,06
6	2,0	973,2	1,59	1340	92	10	62,4	0,04	0,04

96

Tabla 12 Rendimiento para Tc

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento EOB mCi/uAh	Rendimiento corregida
1	15	152,40	2,751	5262	82	25	67,1	0,03	0,03
2	15	152,12	2,733	5149	82	25	66,2	0,03	0,03
3	15	151,85	2,728	5153	81	25	65,3	0,03	0,03
4	15	151,57	2,723	5014	81	25	64,3	0,03	0,03
5	15	151,28	2,718	4609	81	25	63,4	0,02	0,02
6	15	151,00	2,713	4365	80	25	62,4	0,02	0,02
7	15	150,70	2,707	3836	81	25	61,5	0,02	0,02
8	15	150,43	2,703	3429	80	25	60,5	0,02	0,02
9	15	150,17	2,699	2966	80	25	59,5	0,01	0,01
10	15	149,88	2,693	2398	80	25	58,5	0,01	0,01
11	15	149,58	2,688	2088	80	25	57,5	0,01	0,01
12	15	149,12	2,680	1695	80	25	56,5	0,01	0,01
13	15	148,83	2,674	1082	78	25	55,5	0,01	0,01
14	15	148,47	2,668	856	78	25	54,4	0,01	0,01
15	15	148,17	2,663	490	78	25	53,4	0,01*	0,01*
16	15	147,87	2,657	528	76	25	52,3	0,01*	0,01*
17	15	147,58	2,652	311	74	25	51,2	0,01*	0,01*
18	15	147,30	2,647	232	74	25	50,1	0,01*	0,01*

* Actividad menor que 0,01 mCi/uAh

Tabla 13 Rendimiento para Pd

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (min)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energia promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh	
								EOB	corregida
1	0,5	21,6	2,352	774	48	75	67,1	0,26	0,65
2	1,0	67,5	14,483	411	50	75	66,2	0,42	1,05
3	1,0	44,3	5,779	1315	41	75	65,3	0,64	1,59
4	1,0	66,0	13,648	456	49	75	64,3	0,44	1,10
5	1,0	40,0	4,874	476	40	75	63,4	0,20	0,50
6	1,0	64,2	12,709	393	49	75	62,4	0,35	0,87
7	0,5	35,8	4,127	303	39	75	61,5	0,22	0,55

Tabla 14 Rendimiento para Pd

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energia promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh	
								EOB	corregida
1	0,5	0,36	2,0129	5571	48	75	67,1	2,62	5,67
2	1,0	1,13	8,9875	7306	50	75	66,2	7,36	15,94
3	1,0	0,74	4,122	12330	41	75	65,3	6,94	15,05
4	1,0	1,10	8,4786	8640	49	75	64,3	8,37	18,15
5	1,0	0,66	3,6057	15586	40	75	63,4	7,87	17,05
6	1,0	1,07	7,9984	10026	49	75	62,4	9,17	17,86
7	0,5	0,60	3,2089	9261	39	75	61,5	8,54	18,50
8	1,0	1,04	7,5455	10403	48	75	60,5	9,16	19,85
9	0,5	0,54	2,8558	10079	38	75	59,5	8,49	18,39
10	1,0	1,00	6,9812	10984	48	75	58,5	8,95	19,39
11	0,5	0,45	2,3976	12657	38	75	57,5	8,95	19,39
12	1,0	0,98	6,7151	11072	48	75	56,6	8,68	18,80
13	1,0	0,80	4,7330	15148	47	75	55,5	8,56	18,52
14	1,0	0,96	6,4591	10754	50	75	54,4	7,78	16,86
15	1,0	0,72	4,0516	15091	47	75	53,4	7,29	15,79
16	1,0	0,92	5,9761	9314	53	75	52,3	5,88	12,75
17	1,0	0,64	3,4683	11698	52	75	51,2	4,37	9,47
18	1,0	0,90	5,7483	6113	58	75	50,1	3,39	7,35
19	0,5	0,52	2,7469	4541	57	75	49,0	2,45	5,31
20	1,0	0,87	5,4227	2926	64	75	47,9	1,39	3,01
21	1,0	0,49	2,5913	3253	66	75	46,7	0,72	1,55
22	1,0	0,84	5,1156	620	68	75	45,5	0,26	0,57
23	0,5	0,43	2,3062	289	68	75	44,3	0,11	0,23
24	1,0	0,77	4,4651	423	70	75	43,1	0,15	0,32
25	1,0	0,69	3,8222	360	72	75	39,2	0,11	0,23
26	1,0	0,62	3,3361	239	73	75	38,4	0,06	0,13

100

Tabla 15 Rendimiento para Pd

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento EOB mCi/uAh	Rendimiento corregida
2	10	3,9	1,03	76877	46	50	66,2	0,95	0,95
3	10	4,0	1,03	81756	48	50	65,3	0,97	0,97
4	10	4,1	1,03	88126	48	50	64,3	1,04	1,04
6	10	4,2	1,03	99474	48	50	62,4	1,10	1,10
7	10	4,5	1,04	117652	48	50	61,5	1,30	1,30
8	10	4,6	1,04	220248	48	50	60,5	1,21	1,21
9	10	5,1	1,04	118459	48	50	59,5	1,30	1,30
0	10	5,2	1,04	103246	48	50	58,5	1,23	1,23
1	10	5,3	1,04	116865	48	50	57,5	1,39	1,39
2	10	5,4	1,05	115374	48	50	56,5	1,38	1,38
3	10	5,6	1,05	136694	48	50	55,5	1,56	1,56
4	10	6,1	1,05	143294	50	50	54,4	1,65	1,65
5	10	6,2	1,05	168186	50	50	53,4	1,94	1,94
6	10	6,3	1,05	155591	50	50	52,3	1,80	1,80
7	10	6,4	1,05	187960	52	50	51,2	2,09	2,09
8	10	6,5	1,06	216641	52	50	50,1	2,42	2,42
2	10	7,5	1,06	346777	58	50	45,5	3,48	3,48
3	10	7,6	1,06	386256	60	50	44,3	3,76	3,76
4	10	8,1	1,07	364436	62	50	43,1	3,44	3,44
5	10	8,3	1,07	336007	62	50	41,9	3,18	3,18
6	10	8,4	1,07	313496	64	50	40,5	2,88	2,88
9	10	9,3	1,08	251556	66	50	36,4	2,26	2,26
0	10	9,3	1,08	256791	66	50	35,0	2,30	2,30
1	10	22,3	1,19	146765	77	50	33,5	1,25	1,25
2	10	22,5	1,20	83004	80	50	32,0	0,68	0,68
3	10	23,5	1,20	101693	82	50	30,4	0,82	0,82

rendimiento mCi/uAh debe multiplicarse por el factor 10^{-1}

Tabla 16 Rendimiento para Pd

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh EOB	Rendimiento mCi/uAh corregida
1	10	3,67	1,349	10642	48	50	67,1	0,50	0,52
2	10	4,02	1,389	11332	46	50	66,2	0,57	0,59
3	10	4,18	1,408	11575	48	50	65,3	0,57	0,59
4	10	4,40	1,433	11879	48	50	64,3	0,59	0,61
5	10	4,60	1,457	12666	48	50	63,4	0,64	0,66
6	10	4,78	1,479	13621	48	50	62,4	0,70	0,73
7	10	4,97	1,502	13634	48	50	61,5	0,71	0,74
8	10	5,15	1,524	13418	48	50	60,5	0,71	0,74
9	10	5,33	1,547	13824	48	50	59,5	0,74	0,77
10	10	5,53	1,573	13498	48	50	58,5	0,74	0,76
11	10	5,73	1,599	16454	48	50	57,5	0,91	0,95
12	10	5,92	1,623	15300	48	50	56,5	0,80	0,83
13	10	6,10	1,647	15840	48	50	55,5	0,88	0,92
14	10	6,28	1,672	15393	50	50	54,4	0,86	0,90
15	10	6,47	1,697	16444	50	50	53,4	0,93	0,96
16	10	6,65	1,722	17141	50	50	52,3	0,98	1,02
17	10	6,83	1,749	17883	52	50	51,2	1,00	1,04
18	10	7,03	1,777	19066	52	50	50,1	1,09	1,13
19	10	7,22	1,804	20570	54	50	49,0	1,14	1,19
20	10	7,43	1,836	22401	54	50	47,9	1,27	1,32
21	10	7,62	1,864	25980	56	50	46,7	1,44	1,49
22	10	7,80	1,892	29115	58	50	45,5	1,58	1,64
23	10	7,98	1,921	34457	60	50	44,3	1,84	1,91
24	10	8,22	1,958	41524	62	50	43,1	2,18	2,27
25	10	8,45	1,996	50833	62	50	41,9	2,73	2,83
26	10	8,68	2,034	63978	64	50	40,5	3,40	3,52
27	10	8,92	2,073	79533	66	50	39,2	4,16	4,32
28	10	9,10	2,105	91795	68	50	37,8	4,73	4,91
29	10	9,45	2,167	103048	66	50	36,4	5,31	5,52
30	10	9,52	2,178	108223	66	50	35,0	5,95	6,17
31	20	22,42	6,264	89708	77	50	33,4	6,08	6,30
32	20	22,85	6,488	76210	80	50	32,0	5,15	5,34
33	20	23,85	7,041	67893	82	50	30,4	4,85	5,04
34	20	24,40	7,365	48977	84	50	28,8	3,58	3,71
35	20	24,80	7,610	22532	88	50	27,1	1,66	1,73
36	20	25,20	7,864	4823	92	50	25,3	0,34	0,36
37	20	25,70	8,192	310	92	50	23,3	0,02	0,02
38	20	26,12	8,479	50	94	50	21,3	0,01	0,01
39	20	26,55	8,782	16	94	50	19,3	0,01*	0,01*

* Actividad menor que 0,01 mCi/uAh

97

Tabla 17 Rendimiento para Rh

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (min)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh EOB	Rendimiento mCi/uAh corregida
1	0,5	21,6	1,618	189	48	75	67,1	0,17	0,18
2	1,0	44,3	2,683	355	41	75	65,3	0,31	0,33
3	1,0	66,0	4,352	266	49	75	64,3	0,31	0,33
4	1,0	40,0	2,438	478	40	75	63,4	0,39	0,41

97m

Tabla 18 Rendimiento para Rh

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (min)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh EOB	Rendimiento mCi/uAh corregida
1	0,5	21,6	1,402	165	48	75	67,1	0,10	0,16
2	1,0	67,5	2,875	235	50	75	66,2	0,14	0,22
3	1,0	44,3	1,999	313	41	75	65,3	0,16	0,25
4	1,0	66,0	2,808	262	49	75	64,3	0,16	0,24

98

Tabla 19 Rendimiento para Rh

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh EOB	Rendimiento mCi/uAh corregida
1	0,5	0,34	5,590	2554	48	75	67,1	10,44	47,12
2	1,0	1,13	221,798	988	50	75	66,2	75,68	341,58
3	1,0	0,74	34,379	2363	41	75	65,3	34,82	157,16
4	1,0	1,10	192,167	1042	49	75	64,3	71,81	324,11
5	1,0	0,66	24,214	2082	40	75	63,4	21,45	96,81
6	1,0	1,07	166,051	895	49	75	62,4	53,44	241,20
7	0,5	0,60	17,605	924	39	75	61,5	14,66	66,17
8	1,0	1,04	144,249	897	48	75	60,5	47,37	213,80
9	0,5	0,54	13,215	1078	38	75	59,5	13,18	59,49
10	1,0	1,00	119,143	587	48	75	58,5	25,60	115,54
11	0,5	0,45	8,595	649	38	75	57,5	5,76	26,00
12	1,0	0,98	108,280	631	48	75	56,5	25,01	112,88
13	1,0	0,80	45,799	682	47	75	55,5	11,68	52,72
14	1,0	0,96	98,407	582	50	75	54,4	20,13	90,86
15	1,0	0,72	31,244	553	47	75	53,4	6,46	29,16
16	1,0	0,92	81,280	430	53	75	52,3	11,59	52,31
17	1,0	0,64	21,315	596	52	75	51,2	4,29	19,36
18	1,0	0,90	73,869	336	58	75	50,1	7,52	33,94
19	0,5	0,52	12,016	180	57	75	49,0	1,33	6,00
20	1,0	0,87	63,999	129	64	75	47,9	2,27	10,25
21	1,0	0,49	10,406	145	66	75	46,7	0,40	1,81
22	1,0	0,84	55,450	108	68	75	45,5	1,55	7,00

99

Tabla 20 Rendimiento para Rh

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh	
								EOB	corregida
1	15	152,4	1,32	2821	82	25	67,1	0,10	0,10
2	15	152,1	1,32	3321	82	25	66,2	0,12	0,12
3	15	151,9	1,32	3404	82	25	65,3	0,12	0,12
4	15	151,6	1,31	3642	81	25	64,3	0,13	0,13
5	15	151,3	1,31	3489	81	25	63,4	0,12	0,12
6	15	151,0	1,31	3718	81	25	62,4	0,13	0,13
7	15	150,7	1,31	3339	80	25	61,5	0,12	0,12
8	15	150,4	1,31	3618	81	25	60,5	0,13	0,13
9	15	150,2	1,31	3325	80	25	59,5	0,12	0,12
10	15	149,9	1,31	3361	80	25	58,5	0,12	0,12
11	15	149,6	1,31	2944	80	25	57,5	0,11	0,11
12	15	149,1	1,31	2955	80	25	56,5	0,11	0,11
13	15	148,8	1,31	2879	78	25	55,5	0,11	0,11
14	15	148,5	1,31	2663	78	25	54,4	0,10	0,10
15	15	148,2	1,31	2414	78	25	53,4	0,09	0,09
16	15	147,9	1,31	2557	76	25	52,3	0,10	0,10
17	15	147,6	1,31	1642	74	25	51,2	0,06	0,06
18	15	147,3	1,30	856	74	25	50,1	0,03	0,03

99m

Tabla 21 Rendimiento para Rh

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh	
								EOB	corregida
1	0,5	0,36	1,0545	2180	48	75	67,1	1,35	1,45
2	---	---	---	---	---	---	---	---	---
3	1,0	0,74	1,1153	11854	41	75	65,2	4,55	4,87
4	1,0	1,10	1,1761	14708	49	75	64,3	4,98	5,33
5	1,0	0,66	1,1022	11120	40	75	63,4	4,32	4,63
6	1,0	1,07	1,1709	14720	49	75	62,4	4,97	5,31
7	0,5	0,60	1,0925	5605	39	75	61,5	4,43	4,74
8	1,0	1,04	1,1657	14840	48	75	60,5	5,09	5,45
9	0,5	0,54	1,0829	5633	38	75	59,5	4,53	4,85
10	1,0	1,00	1,1589	14042	48	75	58,5	4,78	5,12
11	0,5	0,45	1,0686	4733	38	75	57,5	3,76	4,02
12	1,0	0,98	1,1555	12259	48	75	56,5	4,17	4,46
13	1,0	0,80	1,1252	11421	47	75	55,5	3,86	4,13
14	1,0	0,96	1,1521	9636	50	75	54,4	3,13	3,35
15	1,0	0,72	1,1120	8831	47	75	53,4	2,95	3,16
16	1,0	0,92	1,1453	6777	53	75	52,3	2,07	2,21
17	1,0	0,64	1,0989	5551	52	75	51,2	1,66	1,77
18	1,0	0,90	1,1419	5588	58	75	50,1	1,55	1,66
19	0,5	0,52	1,0797	1806	57	75	49,0	0,97	1,03
20	1,0	0,87	1,1369	2442	64	75	47,9	0,61	0,66
21	1,0	0,49	1,0749	1556	66	75	46,7	0,36	0,38
22	1,0	0,84	1,1319	842	68	75	45,5	0,20	0,21
23	1,0	0,87	1,1369	182	64	75	44,3	0,05	0,05

Tabla 22 Rendimiento para Rh

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ EOB corregida	
1	10	3,67	1,130	46023	48	50	67,1	0,71	0,72
2	10	4,02	1,143	47857	46	50	66,2	0,78	0,79
3	10	4,18	1,149	45599	48	50	65,3	0,71	0,72
4	10	4,40	1,157	47439	48	50	64,3	0,75	0,76
5	10	4,60	1,165	47667	48	50	63,4	0,76	0,77
6	10	4,78	1,172	48207	48	50	62,4	0,77	0,78
7	10	4,97	1,181	45777	48	50	61,5	0,74	0,75
8	10	5,15	1,188	49113	48	50	60,5	0,80	0,81
9	10	5,33	1,194	53919	48	50	59,5	0,88	0,89
10	10	5,53	1,202	55541	48	50	58,5	0,91	0,92
11	10	5,73	1,210	56896	48	50	57,5	0,94	0,95
12	10	5,92	1,218	60836	48	50	56,5	1,01	1,03
13	10	6,10	1,225	64674	48	50	55,5	1,08	1,10
14	10	6,28	1,232	65374	50	50	54,4	1,05	1,07
15	10	6,47	1,241	70698	50	50	53,4	1,15	1,17
16	10	6,65	1,249	74101	50	50	52,3	1,21	1,23
17	10	6,83	1,255	77270	52	50	51,2	1,22	1,24
18	10	7,03	1,263	79068	52	50	50,1	1,26	1,28
19	10	7,22	1,271	82148	54	50	49,0	1,27	1,29
20	10	7,43	1,280	79869	54	50	47,9	1,24	1,26
21	10	7,62	1,289	79265	56	50	46,7	1,20	1,22
22	10	7,80	1,297	75847	58	50	45,5	1,11	1,13
23	10	7,98	1,304	66156	60	50	44,3	0,94	0,95
24	10	8,22	1,315	57370	62	50	43,1	0,80	0,81
25	10	8,45	1,326	47678	62	50	41,8	0,67	0,68
26	10	8,68	1,335	34739	64	50	40,5	0,47	0,48
27	10	8,92	1,346	23652	66	50	39,2	0,32	0,32
28	10	9,10	1,354	13319	68	50	37,8	0,17	0,17
29	10	9,45	1,370	4271	66	50	36,4	0,06	0,06
30	10	9,52	1,373	1547	66	50	35,0	0,02	0,02
31	20	22,42	2,111	1580	77	50	33,5	0,03	0,03
32	20	22,85	2,140	948	80	50	32,0	0,02	0,02
33	20	23,85	2,214	653	82	50	30,4	0,01	0,01
34	20	24,40	2,255	412	84	50	28,8	0,01	0,01

101

Tabla 23 Rendimiento para Rh

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (d)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (s)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh* EOB corregida	
3	60	292	1,007	1109	95	10	65,3	3,80	3,80
4	60	292	1,007	975	95	10	64,3	3,34	3,34
6	60	293	1,007	979	95	10	62,4	3,35	3,35
7	60	293	1,007	1087	95	10	61,5	3,72	3,72
8	60	293	1,007	1155	95	10	60,5	3,96	3,96
9	60	293	1,007	1338	95	10	59,5	4,58	4,58
10	60	293	1,007	1378	95	10	58,5	4,72	4,72
11	60	294	1,007	1188	95	10	57,5	4,07	4,07
12	60	294	1,007	1353	95	10	56,5	4,63	4,63
13	60	294	1,007	1439	95	10	55,5	4,93	4,93
14	60	294	1,007	1276	95	10	54,4	4,38	4,38
15	60	295	1,007	1658	95	10	53,4	5,68	5,68
16	60	295	1,007	1776	95	10	52,3	6,08	6,08
17	60	295	1,007	1716	95	10	51,2	5,88	5,88
18	60	295	1,007	1344	95	10	50,1	4,60	4,60
19	60	295	1,007	2082	95	10	49,0	7,13	7,13
21	60	298	1,007	1568	95	10	46,7	5,37	5,37
22	60	298	1,007	1540	95	10	45,5	5,27	5,27
23	60	299	1,007	1961	95	10	44,3	6,72	6,72
24	60	299	1,007	1977	95	10	43,1	6,77	6,77
25	60	300	1,007	1898	95	10	41,8	6,50	6,50
26	60	300	1,007	2006	95	10	40,5	6,87	6,87
32	60	308	1,007	1685	95	10	32,0	5,77	5,77
33	60	308	1,007	1276	95	10	30,4	4,37	4,37

* Rendimiento mCi/uAh debe ser multiplicado por el factor 10^{-5}

101m
Tabla 24 Rendimiento para Rh

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh EOB	Rendimiento mCi/uAh corregida
1	10	3,67	1,025	10580	48	50	67,1	0,07	0,07
2	10	4,02	1,028	12202	46	50	66,2	0,08	0,08
3	10	4,18	1,029	10968	48	50	65,3	0,07	0,07
4	10	4,40	1,030	10694	48	50	64,3	0,07	0,07
5	10	4,60	1,032	10967	48	50	63,4	0,07	0,07
6	10	4,78	1,033	11882	48	50	62,4	0,07	0,07
7	10	4,97	1,034	12201	48	50	61,5	0,07	0,07
8	10	5,15	1,036	12715	48	50	60,5	0,08	0,08
9	10	5,33	1,037	13074	48	50	59,5	0,10	0,10
10	10	5,53	1,038	12780	48	50	58,5	0,08	0,08
11	10	5,73	1,040	14297	48	50	57,5	0,08	0,08
12	10	5,92	1,041	13886	48	50	56,5	0,08	0,08
13	10	6,10	1,042	14554	48	50	55,5	0,08	0,08
14	10	6,28	1,043	14656	50	50	54,4	0,08	0,08
15	10	6,47	1,045	15480	50	50	53,4	0,08	0,08
16	10	6,65	1,046	16715	50	50	52,3	0,09	0,09
17	10	6,83	1,047	16882	52	50	51,2	0,09	0,09
18	10	7,03	1,049	19056	52	50	50,1	0,10	0,10
19	10	7,22	1,050	19818	54	50	49,0	0,09	0,09
20	10	7,43	1,052	21937	54	50	47,9	0,10	0,10
21	10	7,62	1,053	24629	56	50	46,7	0,11	0,11
22	10	7,80	1,054	28027	58	50	45,5	0,12	0,12
23	10	7,98	1,056	33585	60	50	44,3	0,14	0,14
24	10	8,22	1,057	37297	62	50	43,1	0,14	0,14
25	10	8,45	1,059	46157	62	50	41,8	0,17	0,17
26	10	8,68	1,061	55550	64	50	40,5	0,18	0,18
27	10	8,92	1,062	63390	66	50	39,2	0,18	0,18
28	10	9,10	1,064	69661	68	50	37,8	0,18	0,18
29	10	9,45	1,066	73223	66	50	36,4	0,18	0,18
30	10	9,52	1,067	94206	77	50	35,0	0,09	0,09
31	20	22,25	1,163	220008	80	50	33,5	0,69	0,69
32	20	22,85	1,168	188971	82	50	32,0	0,58	0,58
33	20	23,51	1,173	172082	84	50	30,4	0,49	0,49
34	20	24,40	1,180	122294	82	50	28,8	0,35	0,35
35	20	24,80	1,183	54708	92	50	27,1	0,13	0,13
36	20	25,20	1,186	11408	92	50	25,2	0,03	0,03
37	20	25,70	1,190	1040	94	50	23,3	0,03	0,02
38	20	26,12	1,194	208	94	50	21,3	0,01	0,01
39	20	26,55	1,197	226	94	50	19,3	0,01*	0,01*
40	20	27,23	1,203	404	94	50	17,2	0,01*	0,01*
41	20	27,67	1,206	168	94	50	15,1	0,01*	0,01*

* Actividad menor que 0,01 mCi/uAh

Tabla 25 Rendimiento para Rh

Disco #	Tiempo de conteo (min)	Tiempo real (h)	Factor de decaimiento	Cuentas sobre el fondo	Tiempo vivo (%)	d (cm)	Energía promedio (MeV)	Rendimiento mCi/uAh* EOB corregida
1	60	1021,0	1,0282	1788	92	10	67,1	15
2	60	983,7	1,0272	1789	92	10	66,2	15
3	60	981,4	1,0271	1909	92	10	65,3	16
4	60	978,5	1,0270	1790	92	10	64,3	15
5	60	976,4	1,0270	1790	92	10	63,4	16
6	60	973,2	1,0269	1670	92	10	62,4	15
7	60	957,4	1,0264	1552	92	10	61,5	14
8	60	953,4	1,0263	1911	92	10	60,5	13
9	60	950,1	1,0262	1911	92	10	59,5	16
10	60	948,0	1,0262	1950	92	10	58,5	16
11	60	884,1	1,0244	1980	92	10	57,5	16
12	60	880,7	1,0243	1992	92	10	56,5	17
13	60	877,2	1,0242	1821	92	10	55,5	15
14	60	861,2	1,0238	2023	92	10	54,4	17
15	60	859,0	1,0237	2359	92	10	53,4	20
16	60	856,7	1,0236	2095	92	10	52,3	17
17	60	853,7	1,0235	2003	92	10	51,2	17
18	60	851,7	1,0235	1920	92	10	50,1	16
19	60	835,7	1,0230	2383	91	10	49,0	20
20	60	832,6	1,0230	2335	92	10	47,9	19
21	60	830,0	1,0229	2295	92	10	46,7	19
22	60	827,9	1,0228	2202	91	10	45,5	19
23	60	811,2	1,0224	2219	91	10	44,3	19
24	60	808,0	1,0223	2300	91	10	43,1	19
25	60	806,0	1,0222	2417	92	10	41,9	20
26	60	803,8	1,0222	2231	91	10	40,6	19
27	60	739,3	1,0204	2360	91	10	39,2	20
28	60	709,5	1,0195	2374	91	10	37,8	20
29	60	700,8	1,0193	2529	91	10	36,4	21
30	60	698,5	1,0192	2659	91	10	35,0	22
31	60	683,2	1,0188	2731	91	10	33,5	23
32	60	676,3	1,0186	3042	91	10	32,0	26
33	60	674,0	1,0185	3226	92	10	30,4	27
34	60	658,6	1,0181	3371	92	10	28,8	28
35	60	652,2	1,0172	2582	93	10	27,1	21

* Rendimiento mCi/uAh debe multiplicarse por el factor 10^{-5}

Tabla 26 Sección eficaz para ^{97}Ru

Energía (MeV)	σ (mb)	Energía (MeV)	σ (mb)
67,1	18	53,4	51
66,2	21	52,3	56
65,3	17	51,2	52
64,3	20	50,1	53
63,4	22	49,0	52
62,4	23	47,9	51
61,5	24	46,7	45
60,5	25	45,5	39
59,5	28	44,3	30
58,5	29	43,1	24
57,5	36	41,9	16
56,5	38	40,5	9,4
55,5	43	39,2	5,1
54,4	45	37,8	1,4

Tabla 27 Secciones eficaces para ^{95}Tc , $^{95\text{m}}\text{Tc}$ y ^{96}Tc

Energía (MeV)	^{95}Tc σ (mb)	$^{95\text{m}}\text{Tc}$ σ (mb)	^{96}Tc σ (mb)
67,1	11,68	2445,56	26,68
66,2	10,94	1630,38	25,90
65,3	7,97	1358,65	26,19
64,3	6,49	951,05	25,41
63,4	4,82	815,19	23,37
62,4	2,97	543,46	22,40
61,5	2,97	-----	19,38
60,5	2,78	-----	17,53
59,5	2,04	-----	14,99
58,5	-----	-----	12,17
57,5	-----	-----	10,52
56,5	-----	-----	8,67
55,5	-----	-----	5,55
54,4	-----	-----	4,38
53,4	-----	-----	2,53
52,3	-----	-----	2,73
51,2	-----	-----	1,66
50,1	-----	-----	2,73

Tabla 28 Secciones eficaces para 98Pd , 99Pd , 100Pd y 101Pd

Energía (MeV)	98Pd σ (mb)	99Pd σ (mb)	100Pd σ (mb)	101Pd σ (mb)
67,1	1,78	18,75	----	40,78
66,2	2,90	52,72	74,5	46,72
65,3	4,32	49,77	76,0	46,32
64,3	3,01	60,02	82,0	48,38
63,4	1,37	56,39	----	52,49
62,4	2,37	65,68	86,4	57,31
61,5	----	61,18	102,2	58,18
60,5	----	65,65	95,3	58,10
59,5	----	60,82	107,2	60,87
58,5	----	64,13	96,9	60,39
57,5	----	64,13	109,8	74,86
56,5	----	62,17	108,6	70,59
55,5	----	61,25	123,2	72,48
54,4	----	55,76	130,1	71,06
53,4	----	52,22	152,7	76,20
52,3	----	42,17	141,4	80,63
51,2	----	31,32	164,4	82,13
50,1	----	24,31	190,2	88,93
49,0	----	17,56	209,6	93,83
47,9	----	9,95	----	103,94
46,7	----	2,38	231,0	118,09
45,5	----	0,86	274,2	129,71
44,3	----	0,76	295,2	145,21
43,1	----	1,06	271,0	172,64
41,8	----	0,76	250,1	215,40
40,5	----	0,43	226,1	268,36
39,2	----	----	----	328,83
37,8	----	----	----	374,04
36,4	----	----	177,7	445,42
35,0	----	----	180,9	470,16
33,4	----	----	98,1	460,36
32,0	----	----	53,7	406,85
30,4	----	----	64,6	383,69
28,8	----	----	----	282,67
27,1	----	----	----	128,21
25,2	----	----	----	27,11
23,3	----	----	----	1,82
21,3	----	----	----	0,32
19,3	----	----	----	0,00

Tabla 29 Secciones eficaces para ^{97}Rh , $^{97\text{m}}\text{Rh}$, ^{98}Rh , ^{99}Rh , $^{99\text{m}}\text{Rh}$, ^{100}Rh , ^{101}Rh , $^{101\text{m}}\text{Rh}$, y ^{102}Rh

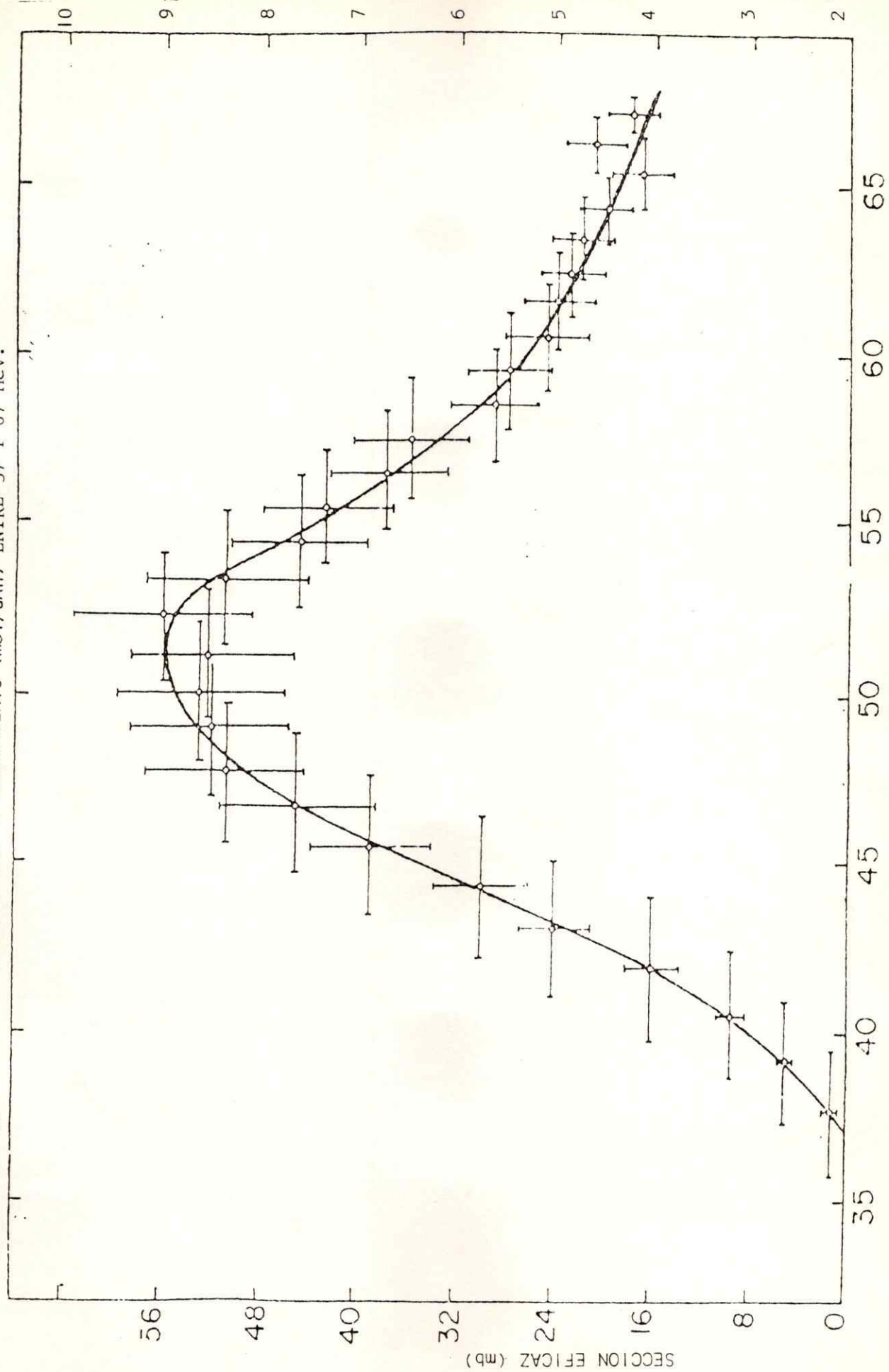
Energía (MeV)	^{97}Rh σ (mb)	$^{97\text{m}}\text{Rh}$ σ (mb)	^{98}Rh σ (mb)	^{99}Rh σ (mb)	$^{99\text{m}}\text{Rh}$ σ (mb)	^{100}Rh σ (mb)	^{101}Rh σ (mb)	$^{101\text{m}}\text{Rh}$ σ (mb)	^{102}Rh σ (mb)
67,1	8,65	0,71	63,35	353,45	63,18	138,95	-----	76,11	35,30
66,2	-----	1,00	459,23	417,72	-----	152,46	-----	91,12	35,30
65,2	15,86	1,14	211,29	439,14	212,2	138,95	10,17	79,16	37,52
64,3	15,86	1,12	435,74	460,56	232,25	146,67	8,94	77,68	35,30
63,4	19,71	-----	130,15	442,71	201,25	148,60	-----	79,17	37,52
62,4	-----	-----	324,28	471,27	231,38	150,53	8,97	86,64	35,30
61,5	-----	-----	88,96	428,43	206,54	144,74	9,96	88,13	33,07
60,5	-----	-----	278,44	456,99	237,40	156,32	10,60	92,62	30,41
59,5	-----	-----	79,80	424,86	211,34	171,76	12,26	95,60	37,52
58,5	-----	-----	155,34	432,00	223,10	177,55	12,63	92,62	37,52
57,5	-----	-----	34,96	378,44	175,17	183,34	10,89	104,57	37,52
56,5	-----	-----	151,76	378,44	194,34	198,77	12,39	101,58	40,12
55,5	-----	-----	70,88	378,44	179,96	212,28	13,20	106,06	35,30
54,4	-----	-----	122,16	349,88	145,98	206,49	11,72	103,07	40,12
53,4	-----	-----	39,20	314,18	137,70	225,79	15,20	107,55	47,18
52,3	-----	-----	70,33	346,31	96,30	237,37	16,28	118,01	40,12
51,2	-----	-----	26,03	228,49	77,13	239,30	15,74	115,02	40,12
50,1	-----	-----	45,63	117,82	72,33	247,02	12,31	129,96	37,52
49,0	-----	-----	8,07	-----	44,88	248,95	19,09	129,96	47,18
47,9	-----	-----	13,78	-----	28,76	243,16	-----	143,41	41,61
46,7	-----	-----	2,43	-----	16,56	235,44	14,38	157,34	41,61
45,5	-----	-----	9,41	-----	9,15	218,07	14,11	172,51	41,61
44,3	-----	-----	-----	-----	2,18	183,34	17,99	200,00	41,61
43,1	-----	-----	-----	-----	-----	156,32	18,12	215,16	41,61
41,8	-----	-----	-----	-----	-----	131,23	17,40	266,34	47,18
40,5	-----	-----	-----	-----	-----	92,63	18,39	310,89	41,61
39,2	-----	-----	-----	-----	-----	61,76	-----	344,07	47,18
37,8	-----	-----	-----	-----	-----	32,81	-----	367,76	47,18
36,4	-----	-----	-----	-----	-----	11,58	-----	399,04	49,41
35,0	-----	-----	-----	-----	-----	3,86	-----	345,96	52,01
33,5	-----	-----	-----	-----	-----	5,79	-----	540,27	54,24
32,0	-----	-----	-----	-----	-----	3,86	15,45	454,97	61,30
30,4	-----	-----	-----	-----	-----	1,93	11,70	405,68	63,53
28,8	-----	-----	-----	-----	-----	1,93	-----	296,68	66,13
27,1	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	118,48	49,41
25,3	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	24,54	-----
23,3	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	1,90	-----
21,3	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	0,95	-----
19,3	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	0,95	-----
17,2	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	0,95	-----
15,1	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	0,95	-----

El montaje experimental, incluyendo el sistema electrónico, utilizado para la espectroscopía gama y análisis radioquímicos es el mismo que el empleado por Wilkins et al⁽¹⁹⁾. Las fuentes de error para las mediciones son, por lo tanto las mismas. Los errores para las secciones eficaces de reacción derivan de: $\pm 1,2\%$ de la incerteza para la energía de los protones en el centro de cada una de las hojas de ^{103}Rh . Este error es debido a las variaciones del grosor de cada hoja y a una incerteza de $\pm 0,5$ MeV en la energía de los protones que inciden en la primera hoja de ^{103}Rh (67,1 MeV) y a una incerteza de $\pm 3,4$ MeV para la última (15,1 MeV).

El error para los valores en mb de las secciones eficaces de reacción consiste de la suma de la raíz del cuadrado de los promedios (rms) de las variaciones del grosor ($\pm 6\%$), del haz de protones y de la integración espectral, cada una de ellas con $\pm 1\%$, lo que resulta en un total para el error relativo de un $9,3\%$. El error absoluto contiene al error relativo más la suma rms de las incertezas para: la eficiencia del detector ($\pm 6,7\%$) correcciones por absorción ($\pm 2\%$) y correcciones por decaimiento ($\pm 3\%$). Todo esto incide en un error absoluto de un $\pm 11,8\%$.

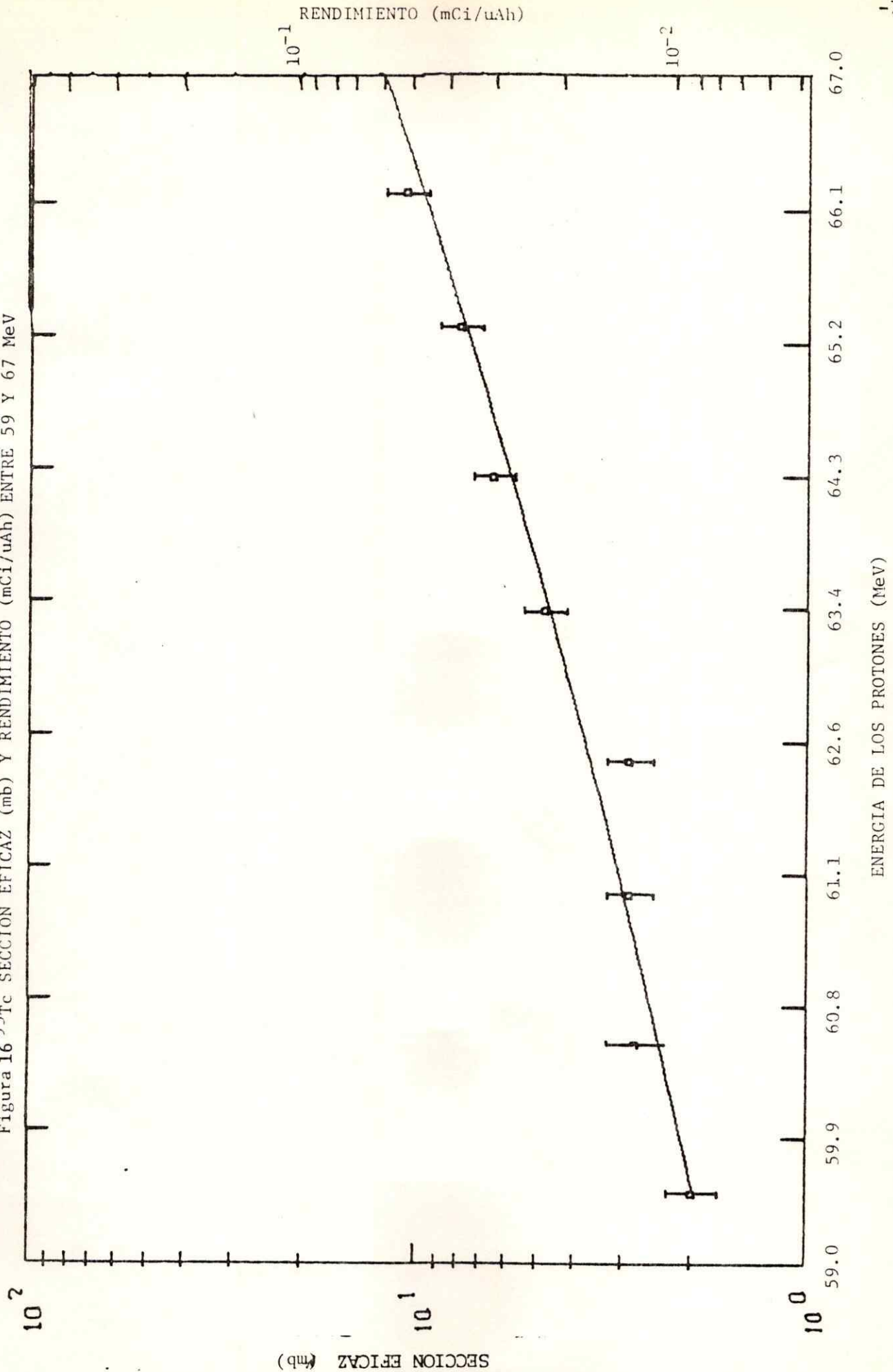
Las curvas de las secciones eficaces de reacción han sido obtenidas mediante un programa de computación (GRAFT), desarrollado en el CNL. Este programa imprime los puntos experimentales, el error absoluto y ajusta un polinomio al conjunto de datos empíricos. Lamentablemente, solo el error absoluto para la sección eficaz (mb) es graficado, no así el error para la energía del haz de protones en cada hoja de ^{103}Rh . Es por esta razón, y como una manera de visualizar los errores en la energía, que la Figura 15 (sección eficaz (mb) y rendimiento (mCi/uAh) para ^{97}Ru , ha sido graficada en escala lineal y por separado. Los otros gráficos (Figuras 16 a 31) fueron obtenidos, con esta restricción por el programa GRAFT.

Figura 15 ⁹⁷Ru SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 37 Y 67 MeV.



ENERGIA DE LOS PROTONES (MeV)

Figura 16 ^{95}Tc SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/ μAh) ENTRE 59 Y 67 MeV



Figural7 ^{95m}Tc SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 62 Y 67 (MeV)

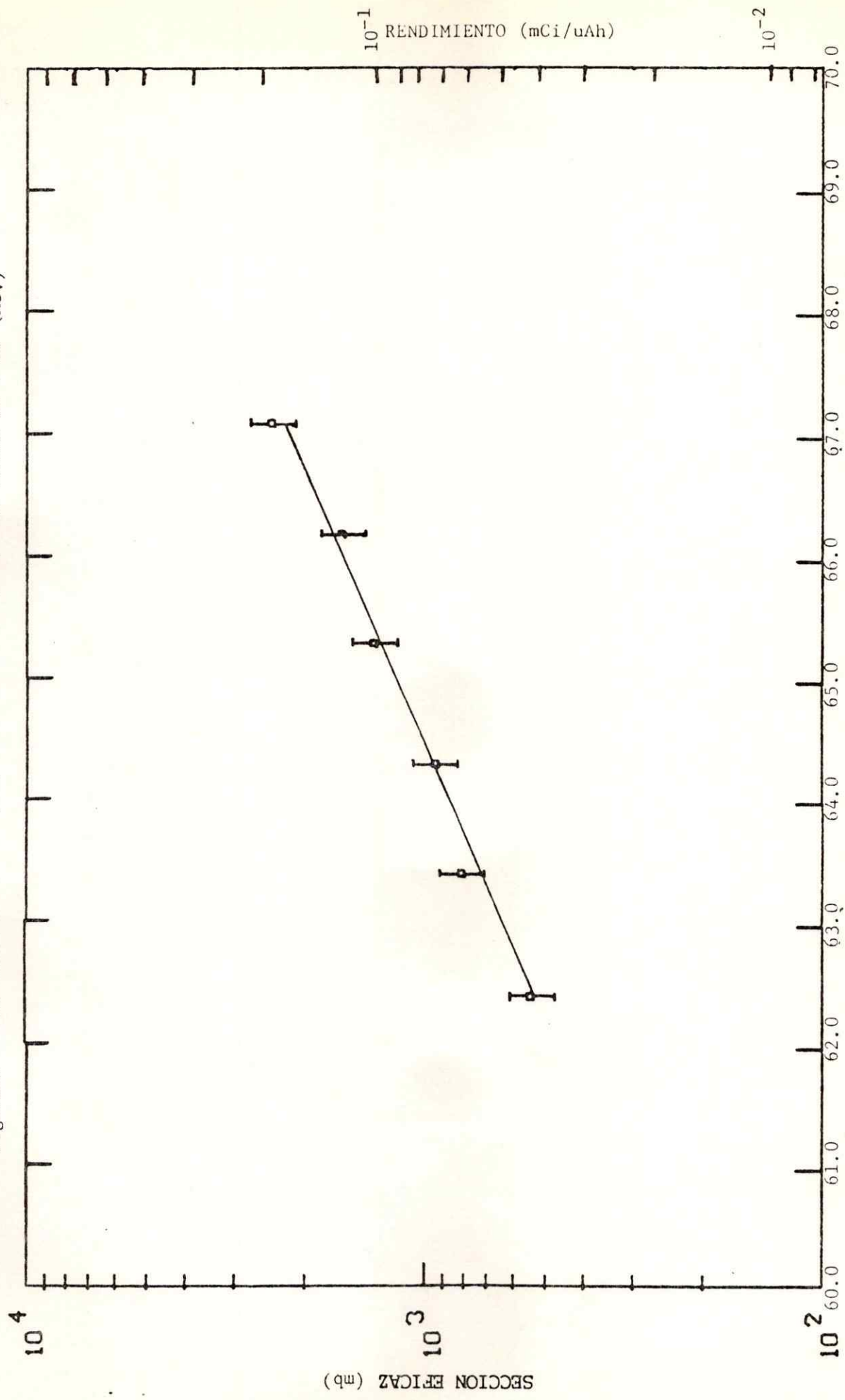


Figura 18 ^{96}Tc SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 50 Y 67 MeV

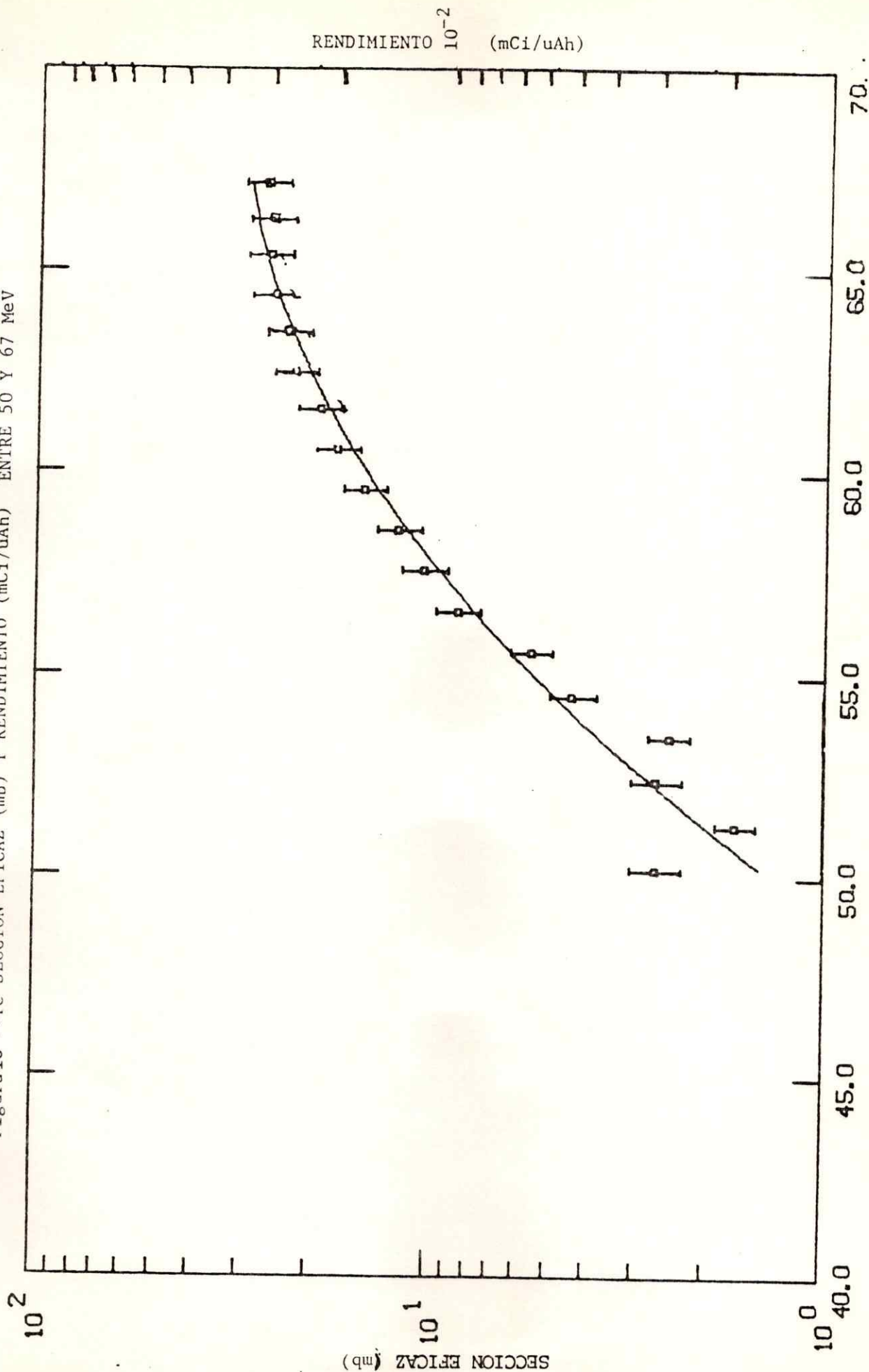


Figura 19. ⁹⁸Pd SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 62 Y 67 MeV.

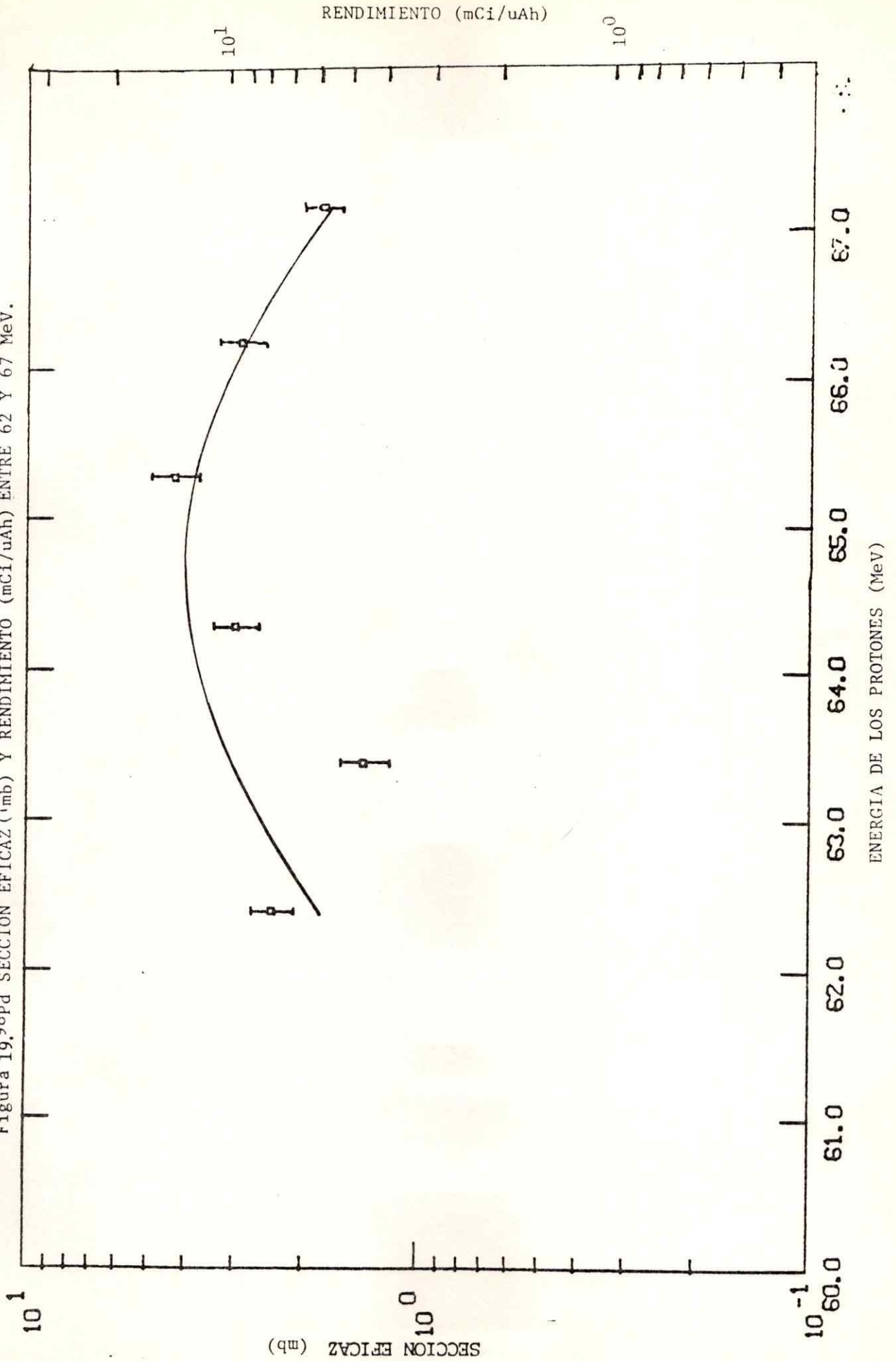
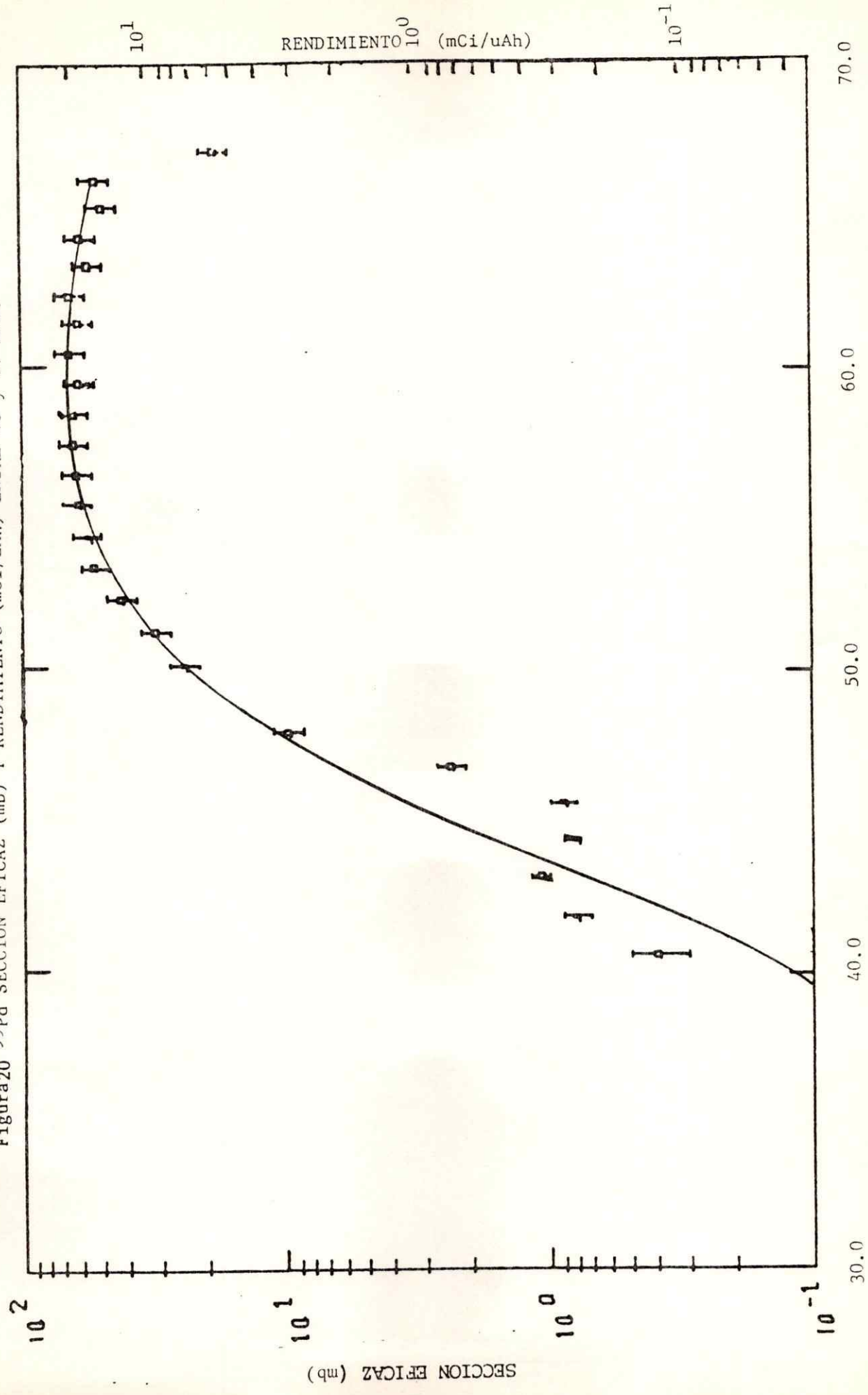


Figura 20 ^{99}Pd SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 40 y 67 MeV.

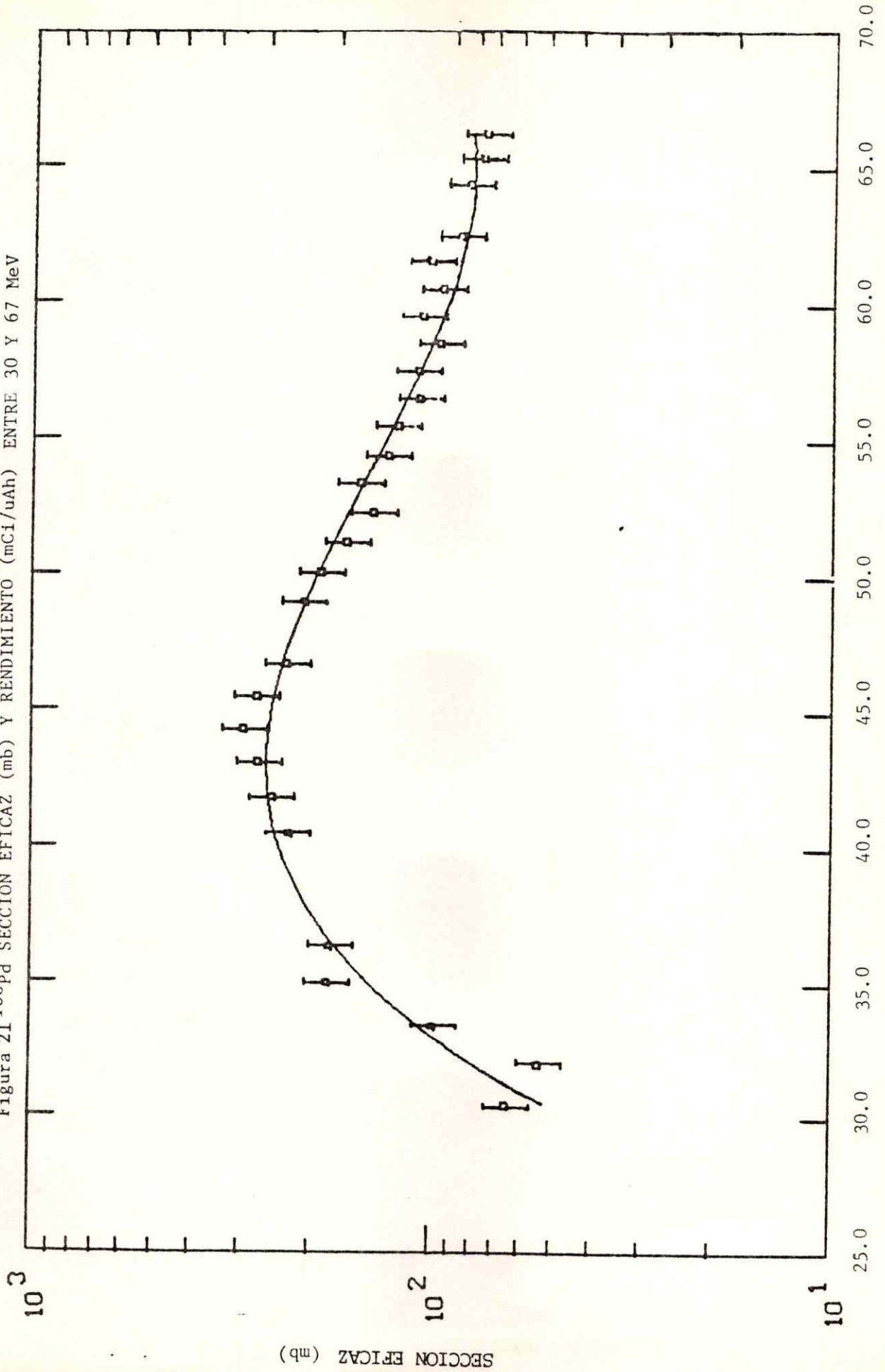


ENERGIA DE LOS PROTONES (MeV)

SECCION EFICAZ (mb)

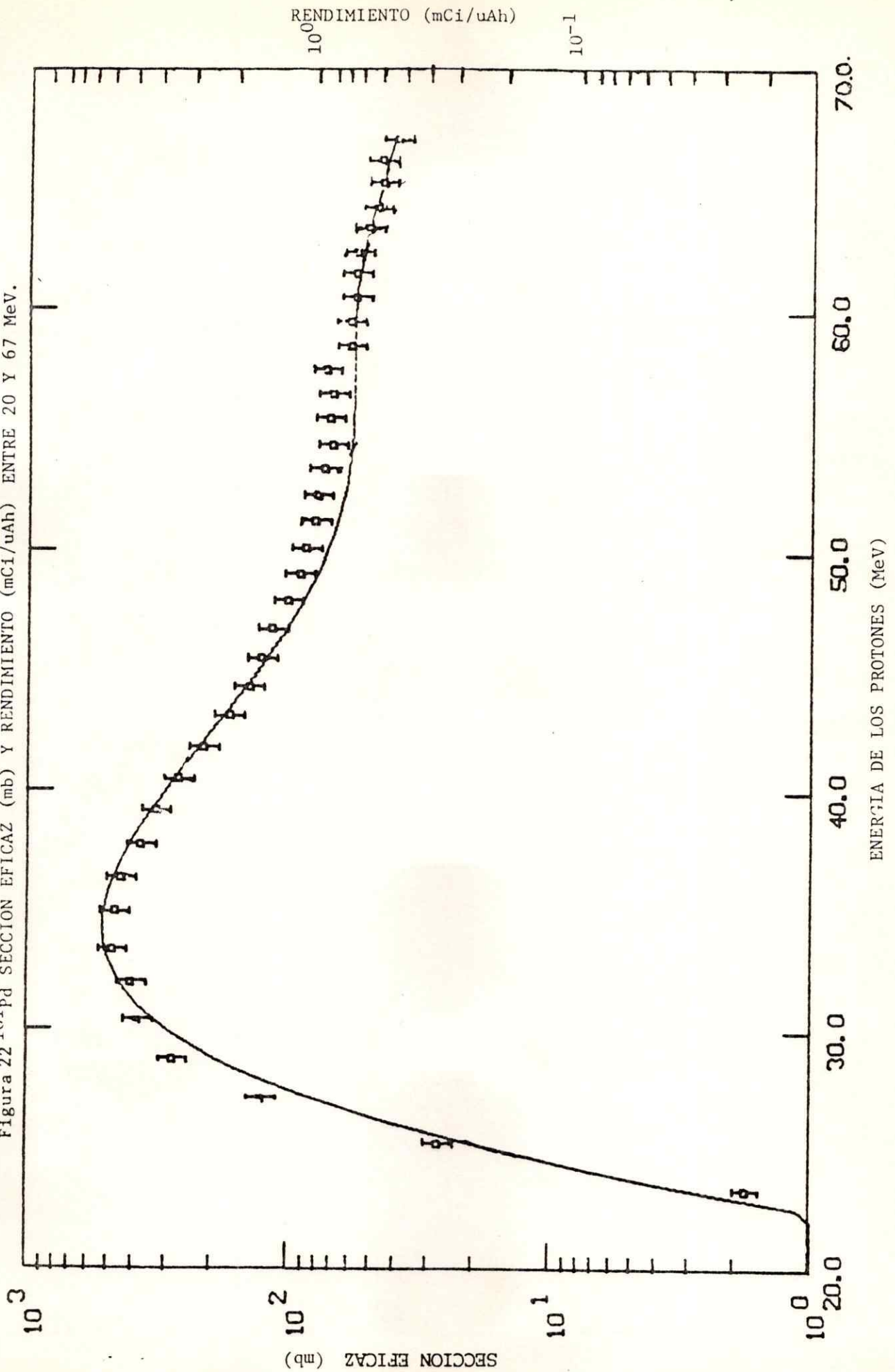
RENDIMIENTO (mCi/uAh)

Figura 21 ^{100}Pd SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 30 Y 67 MeV



ENERGIA DE LOS PROTONES (MeV)

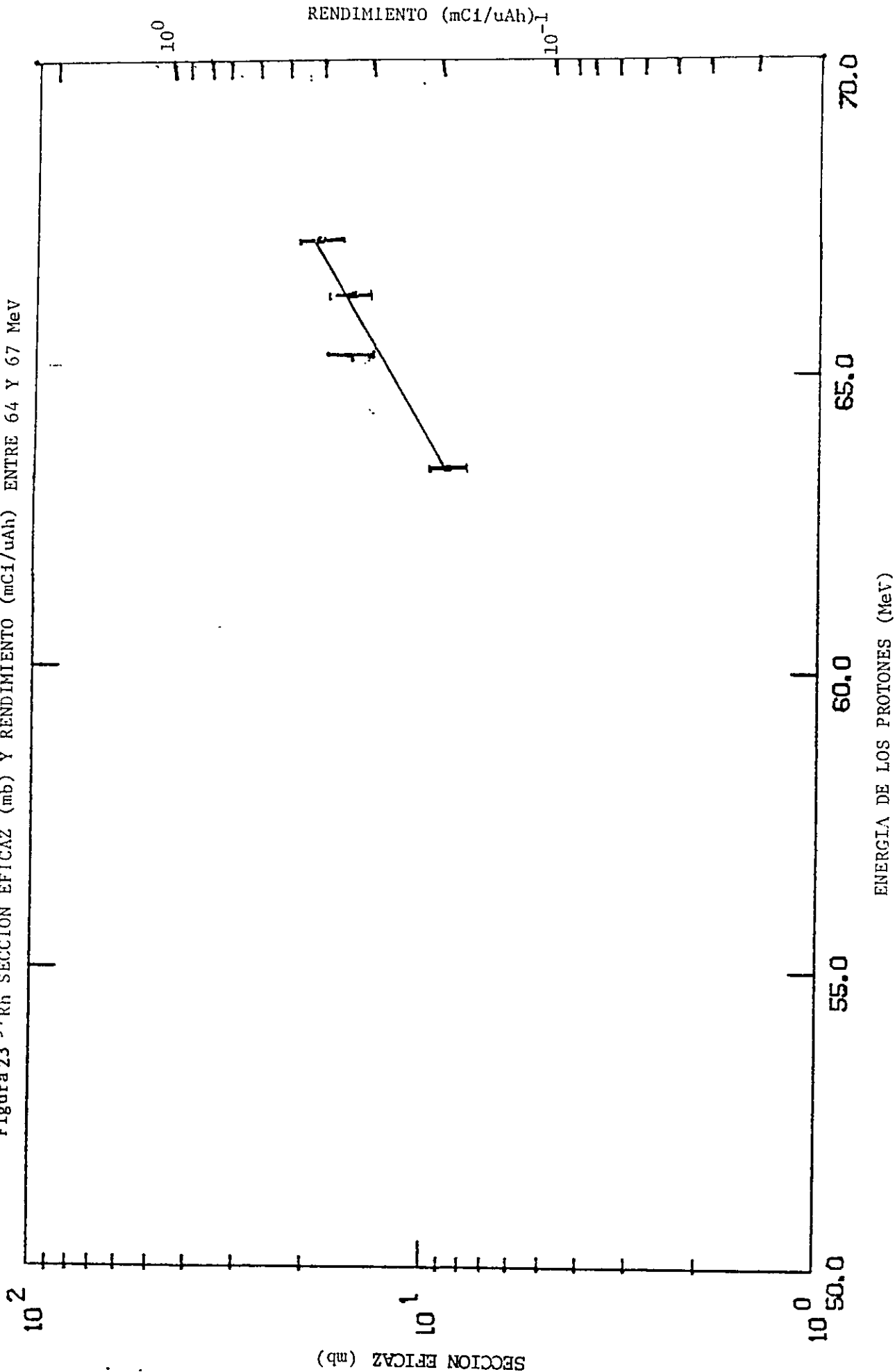
Figura 22 ^{101}Pd SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 20 Y 67 MeV.



RENDIMIENTO (mCi/uAh)
 10^0
 10^{-1}

ENERGA DE LOS PROTONES (MeV)

Figura 23 ^{97}Rh SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 64 Y 67 MeV

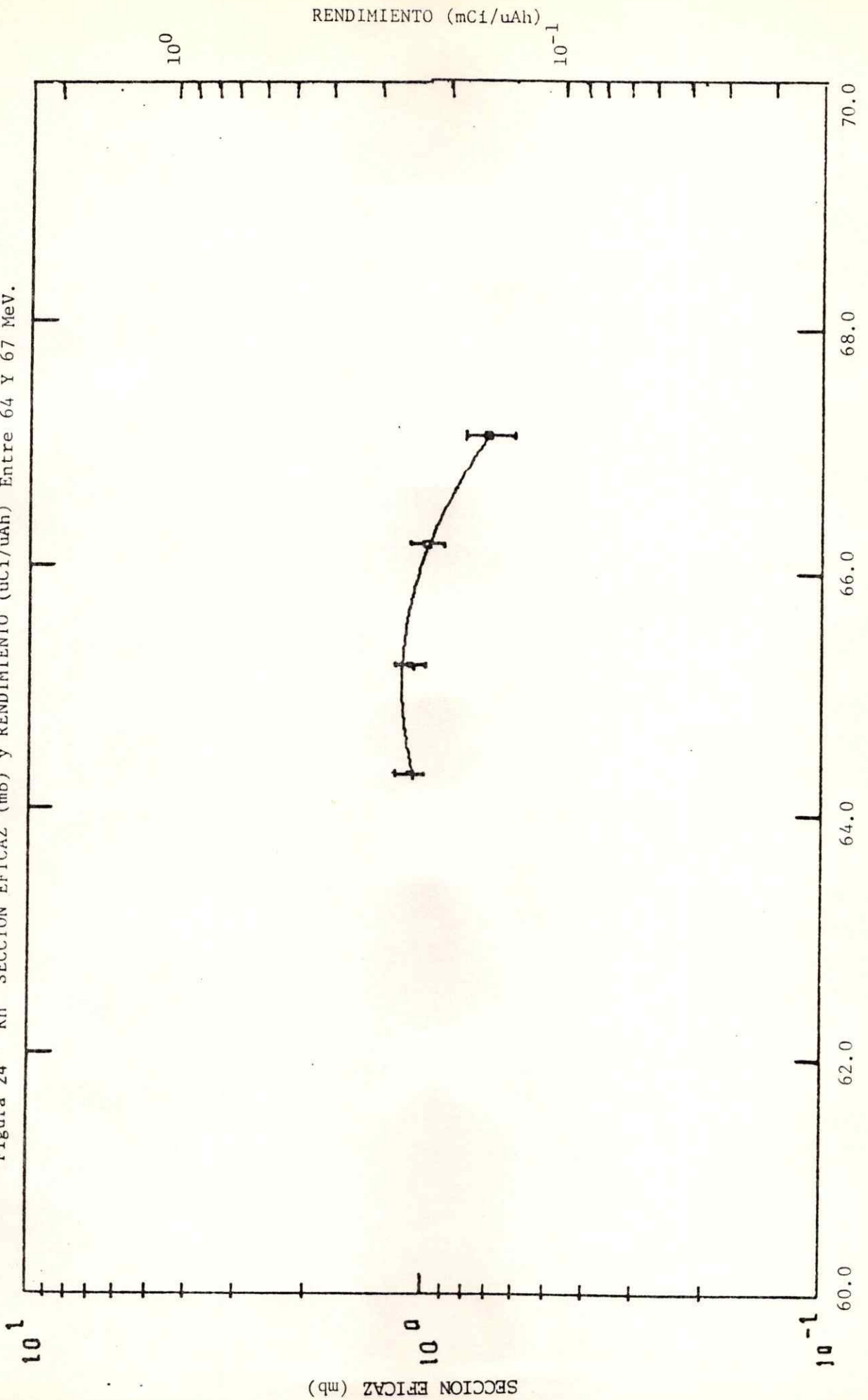


SECCION EFICAZ (mb)

ENERGIA DE LOS PROTONES (MeV)

RENDIMIENTO (mCi/uAh)

Figura 24 ^{97m}Rh SECCION EFICAZ (mb) y RENDIMIENTO ($\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$) Entre 64 Y 67 MeV.



RENDIMIENTO ($\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$)

10^0

10^{-1}

10^1

10^0

10^{-1}

60.0

62.0

64.0

66.0

68.0

70.0

Figura 25 ^{98}Rh SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 45 Y 67 MeV.

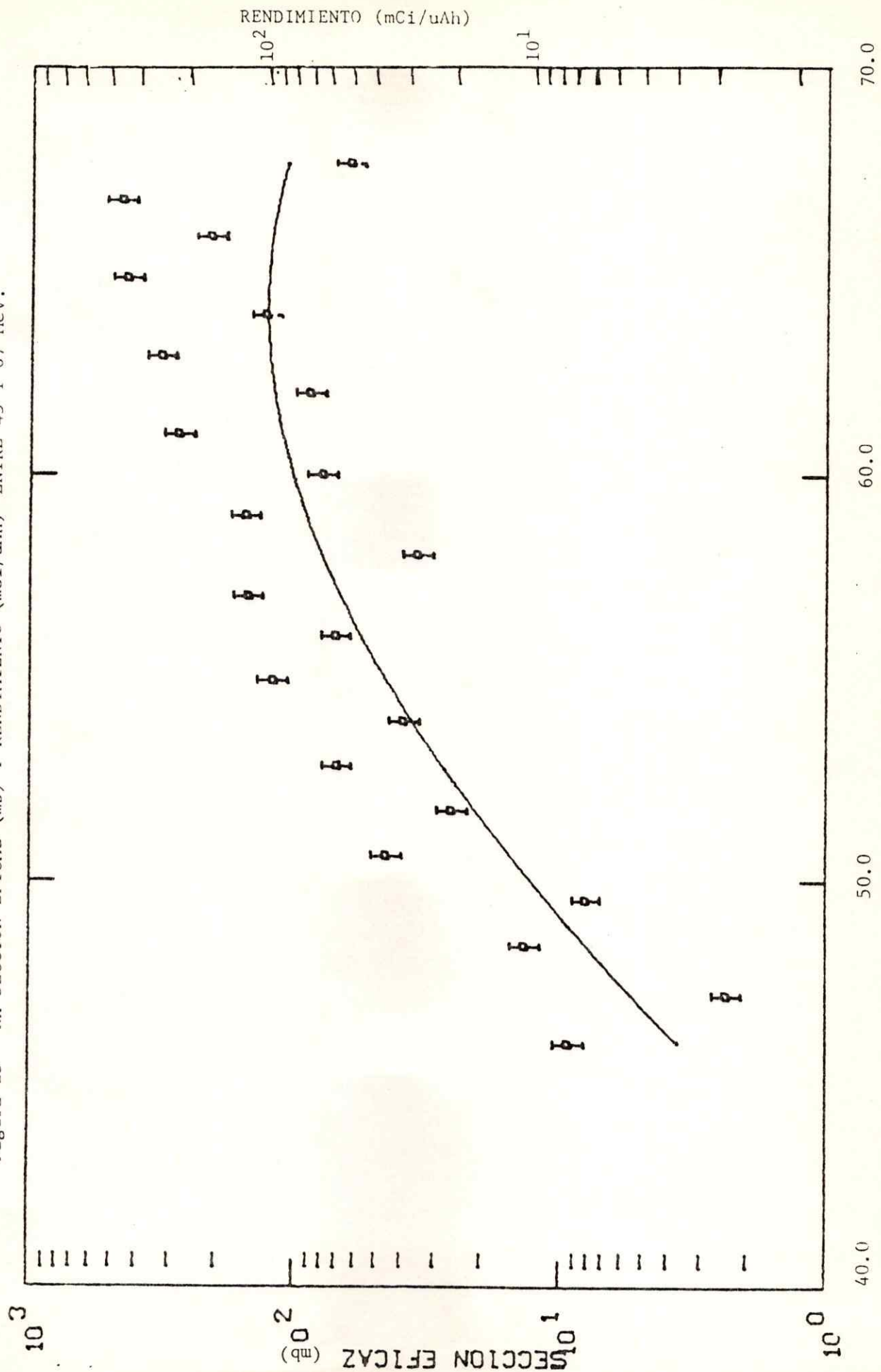


Figura 26 ^{99}Rh SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO ($\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$) ENTRE 50 Y 67 MeV.

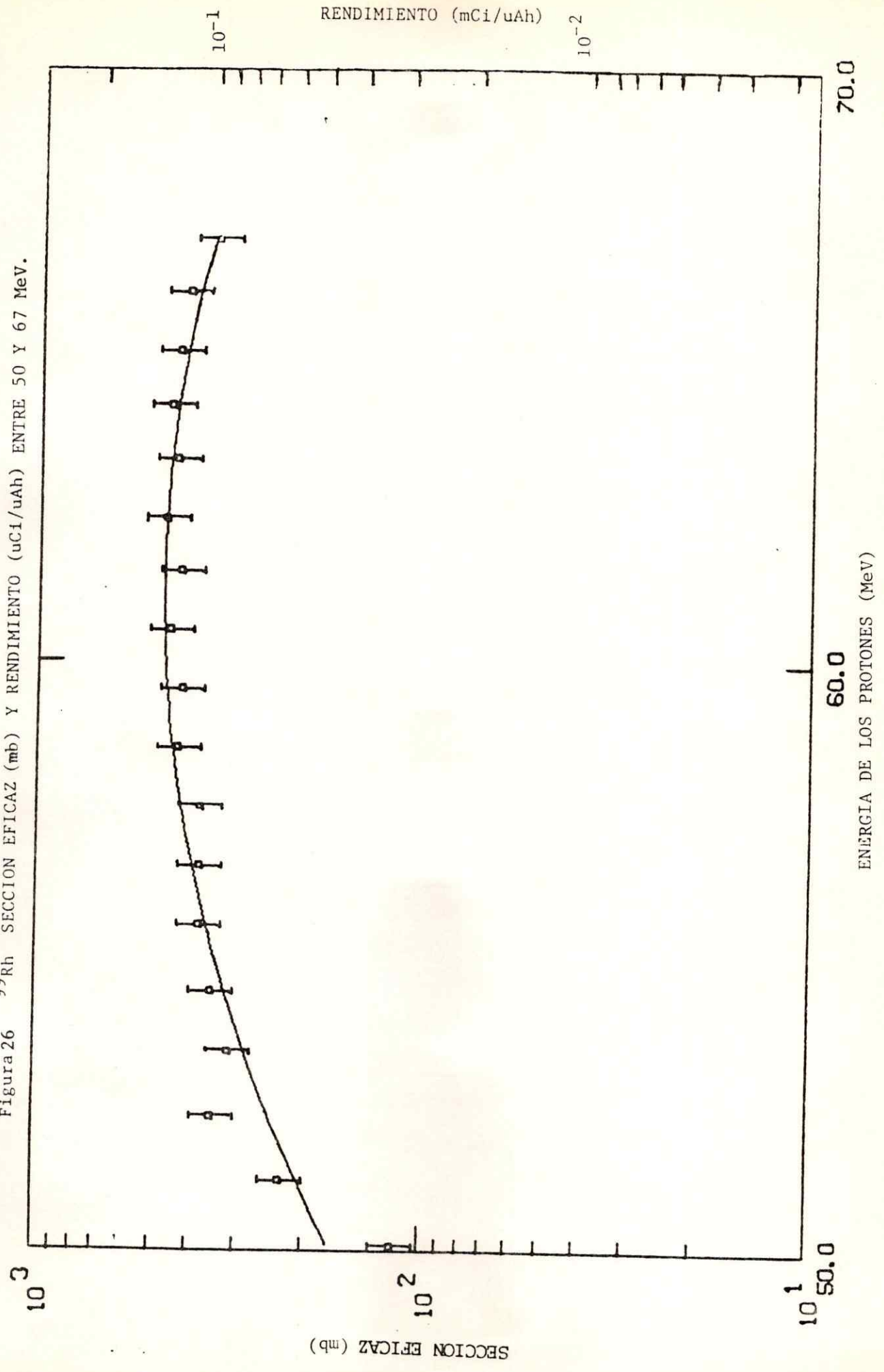


Figura 27 ^{99m}Rh SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 45 y 67 MeV.

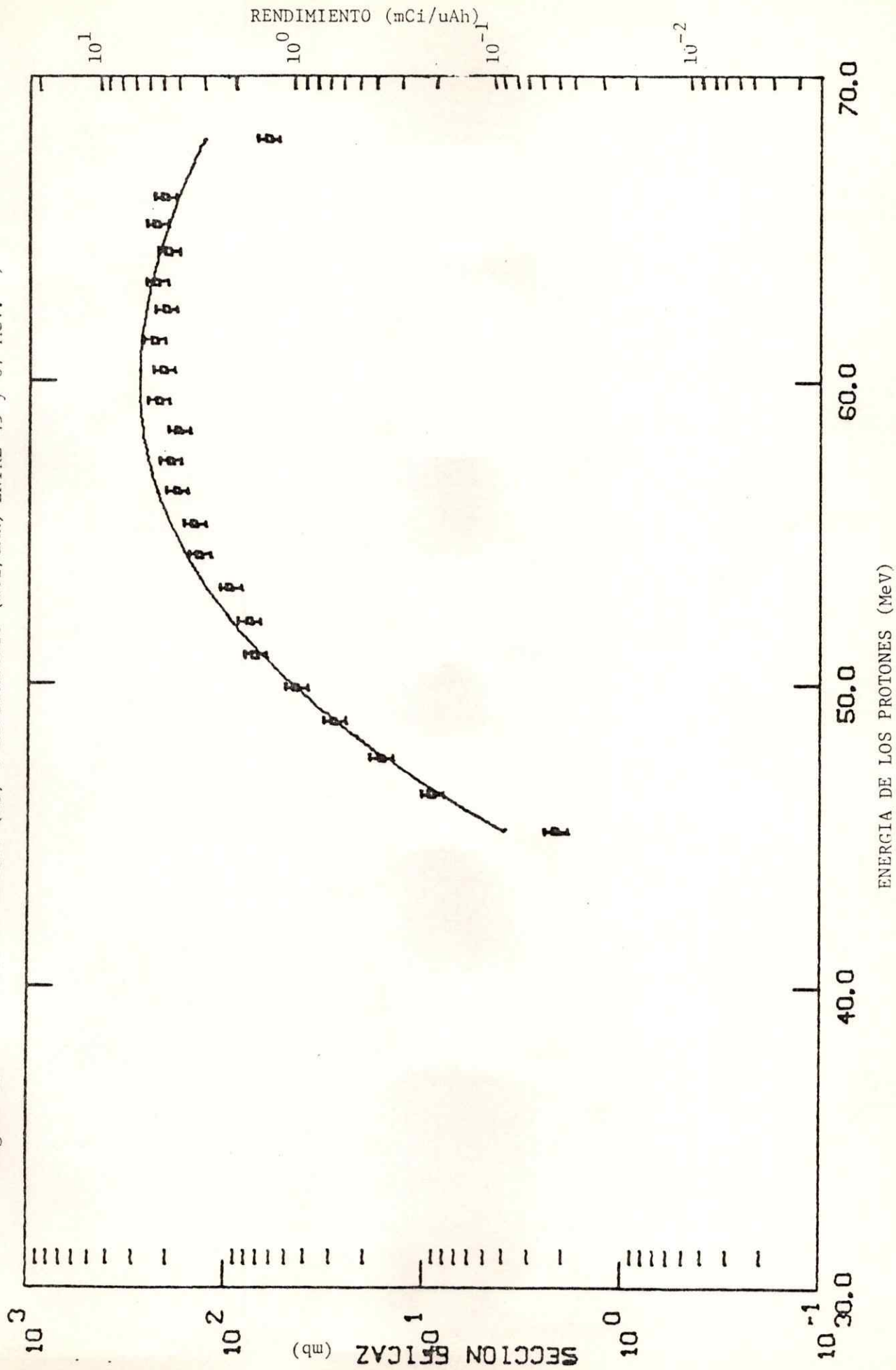
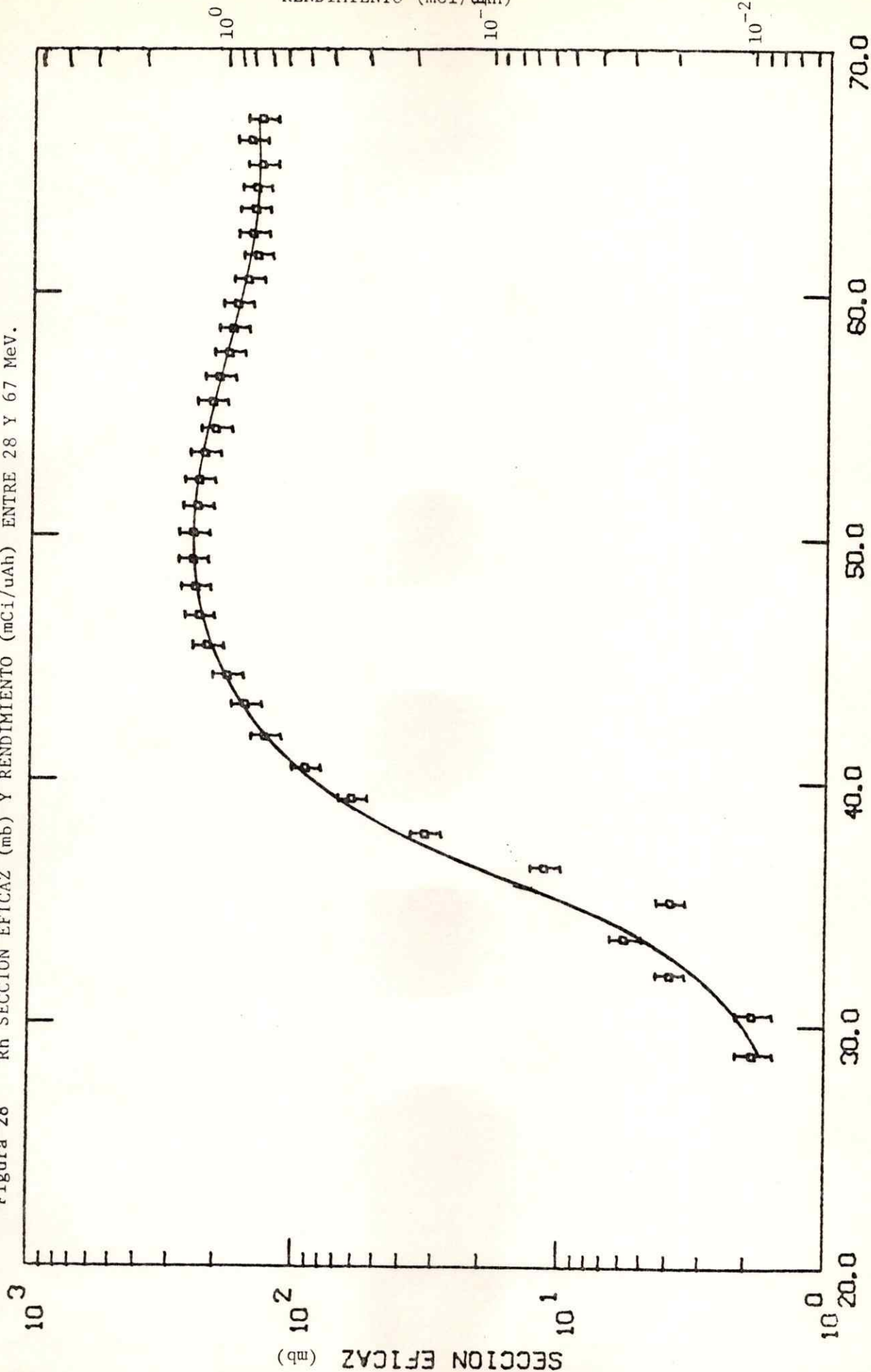


Figura 28 ^{100}Rh SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/ μ Ah) ENTRE 28 Y 67 MeV.



ENERGIA DE LOS PROTONES (MeV)

Figura 29 ^{101}Rh SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 30 Y 67 MeV.

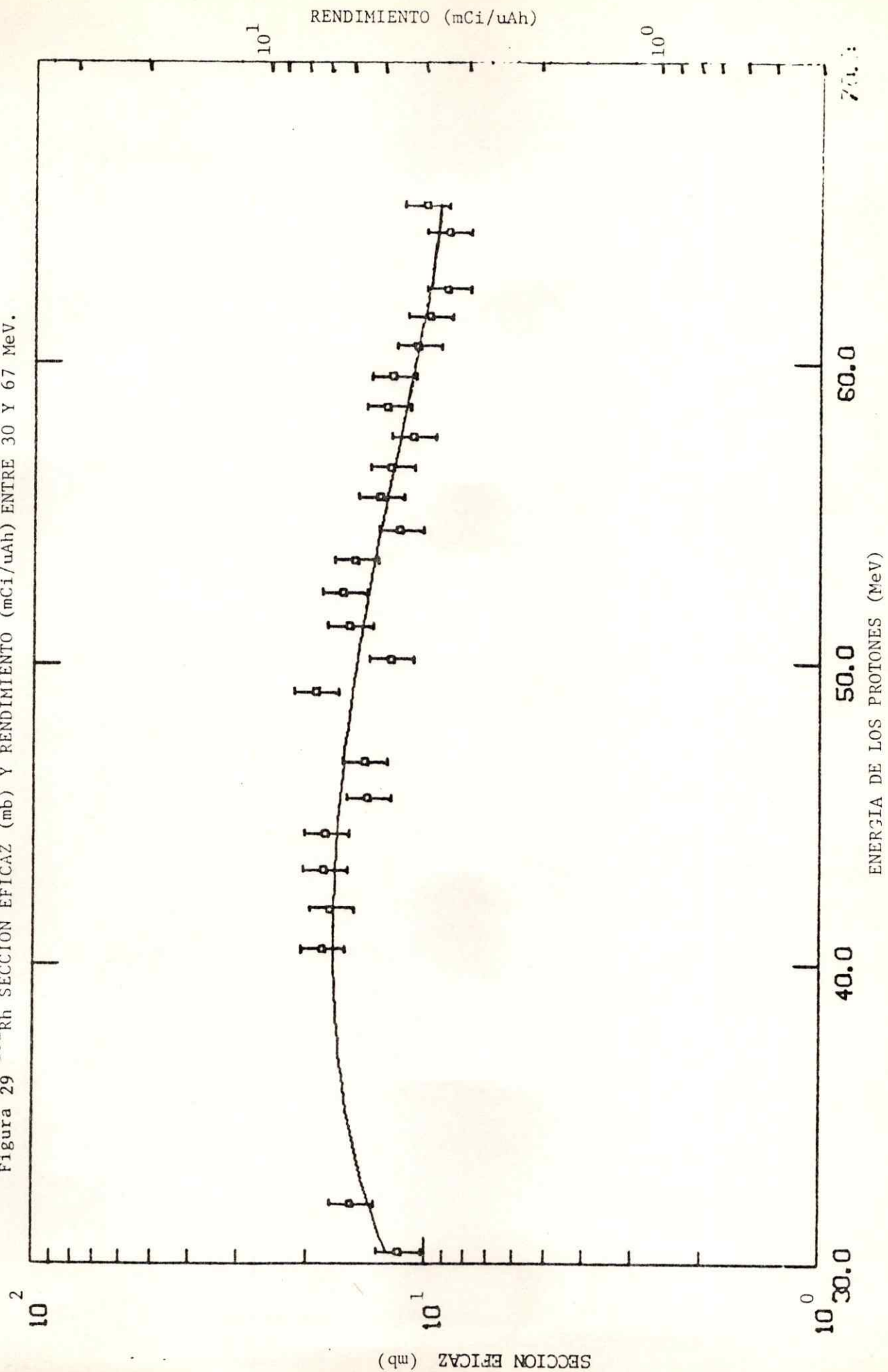
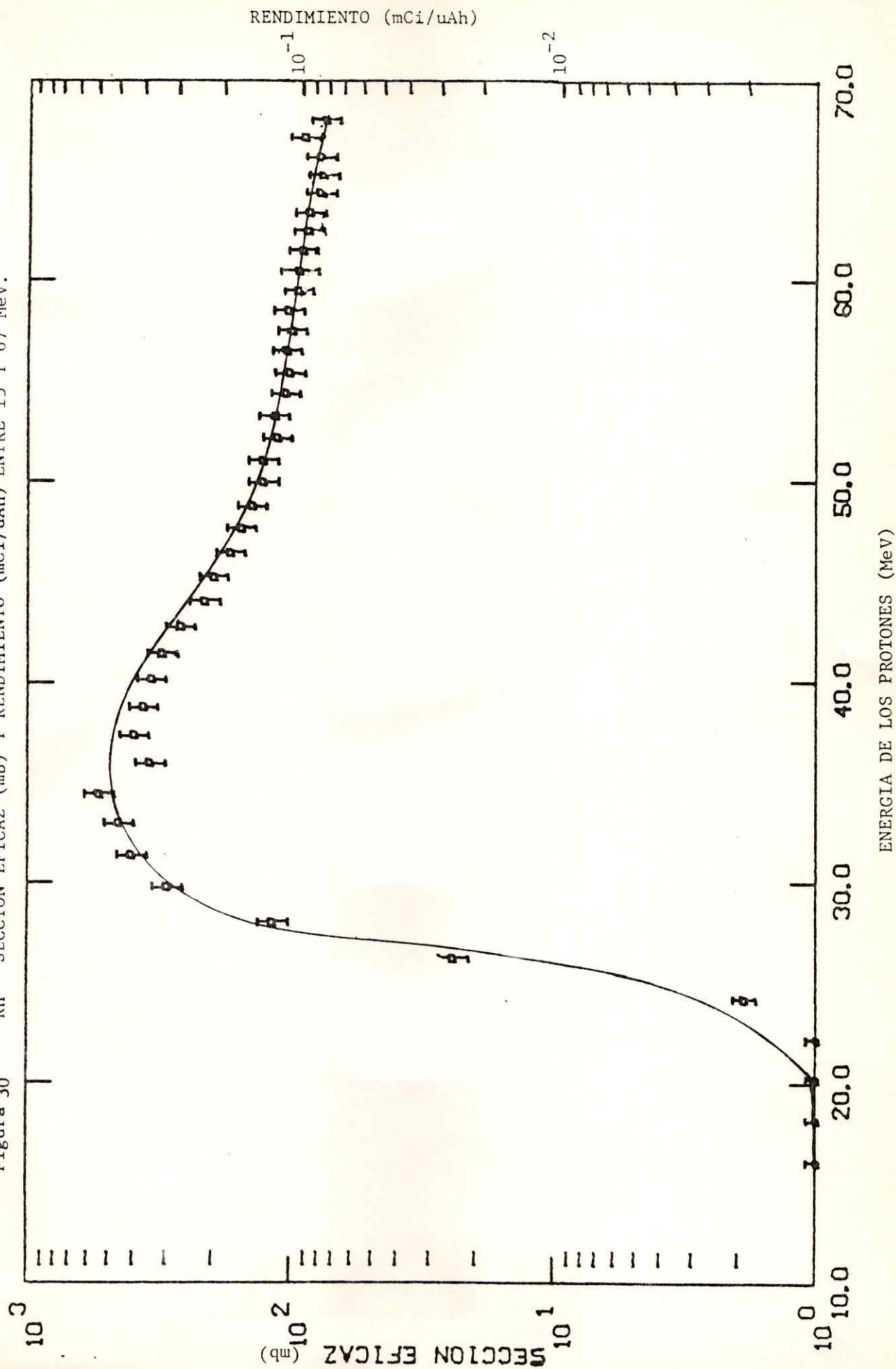
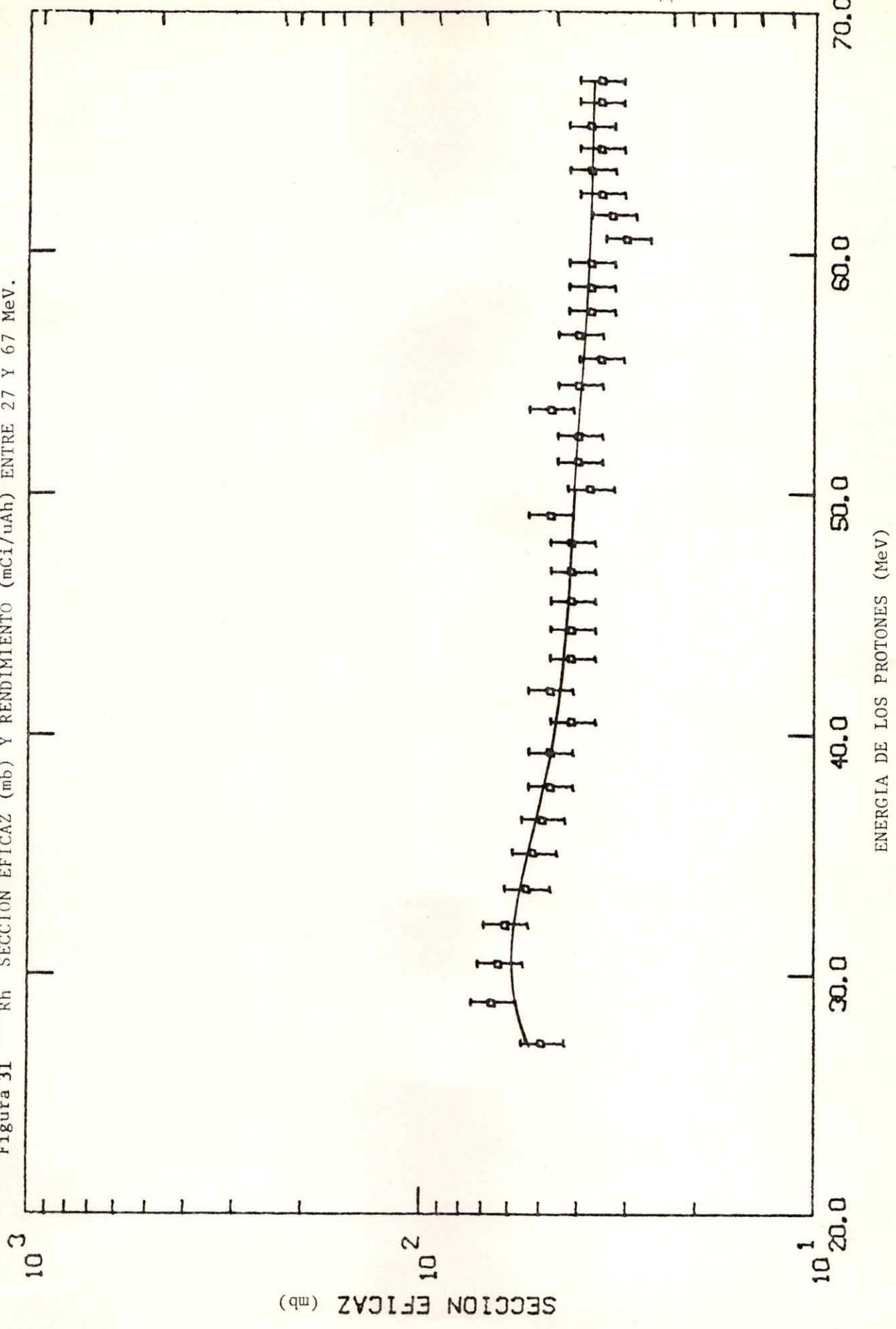


Figura 30 ^{101m}Rh SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 15 Y 67 MeV.



RENDIMIENTO (mCi/uAh)

Figura 31 ^{102}Rh SECCION EFICAZ (mb) Y RENDIMIENTO (mCi/uAh) ENTRE 27 Y 67 MeV.



VI ANALISIS DEL SISTEMA NO-EQUILIBRIO $^{101}\text{Pd} \rightarrow ^{101m}\text{Rh} \rightarrow ^{101}\text{Ru}$.

El crecimiento de la actividad de un núcleo hijo esta dada por la siguiente ecuación lineal de primer orden:

$$\left(\frac{dN_B}{dt} \right) = \lambda_A N_A - \lambda_B N_B \quad (1)$$

La ecuación (1) puede ser integrada por medio del factor integrante $e^{\lambda(B) t}$. (el factor tiene la forma $e^{\int \lambda(B) t}$ el cual es $e^{\lambda(B) t}$.)

Multiplicación por el factor integrante:

$$e^{\lambda(B) t} \left(\frac{dN_B}{dt} \right) = \lambda_A N_A e^{\lambda(B) t} - \lambda_B N_B e^{\lambda(B) t} \quad (2)$$

reordenando:

$$e^{\lambda(B) t} \left(\frac{dN_B}{dt} \right) + \lambda_B N_B e^{\lambda(B) t} = \lambda_A N_A e^{\lambda(B) t} \quad (3)$$

por otro lado sabemos que

$$\begin{aligned} d(N_B e^{\lambda(B) t} / dt) &= (d N_B / dt) e^{\lambda(B) t} + \\ &+ N_B d(e^{\lambda(B) t}) / dt \\ &= d(N_B e^{\lambda(B) t}) / dt + N_B \lambda_B e^{\lambda(B) t} \end{aligned}$$

entonces la ecuación (3) puede ser escrita como:

$$d(N_B e^{\lambda(B) t}) / dt = \lambda_A N_A e^{\lambda(B) t} \quad (4)$$

o, bien

$$d(N_B e^{\lambda(B) t}) = (\lambda_A N_A e^{\lambda(B) t}) dt \quad (5)$$

luego

$$\int d(N_B e^{\lambda(B) t}) = \int (\lambda_A N_A e^{\lambda(B) t}) dt \quad (6)$$

pero

$$N_A = N_A^0 e^{-\lambda(A) t}$$

entonces

$$\int d(N_B e^{\lambda(B) t}) = \int (\lambda_A N_A^0 e^{-\lambda(A) t} \times e^{\lambda(B) t}) dt \quad (7)$$

Integrando

$$N_B e^{\lambda(B) t} = \lambda_A N_A^0 \int e^{-\lambda(A) t} \times e^{\lambda(B) t} dt \quad (8)$$

$$N_B e^{\lambda(B) t} = \lambda_A N_A^0 \int e^{(\lambda(B) - \lambda(A)) t} dt \quad (9)$$

$$N_B e^{\lambda(B) t} = (\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A) e^{(\lambda(B) - \lambda(A)) t} + C \quad (10)$$

de manera que al resolver para N_B , multiplicando por $e^{-\lambda(B) t}$:

$$N_B (e^{\lambda(B) t} \times e^{-\lambda(B) t}) = (\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A) \times$$

$$\times e^{(\lambda(B) - \lambda(A)) t} \times e^{-\lambda(B) t} +$$

$$+ C \times e^{-\lambda(B) t} \quad (11)$$

O sea,

$$N_B = \left(\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A \right) e^{-\lambda(A) t} + C e^{-\lambda(B) t} \quad (12)$$

si la cantidad de núcleos hijos a $t = 0$, es decir N_B^0 , es cero:

$$\begin{aligned} N_B^0 &= \left(\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A \right) e^{-\lambda(A) \times 0} + C e^{-\lambda(B) \times 0} \\ &= \left(\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A \right) + C \end{aligned} \quad (13)$$

$$= 0 \quad (14)$$

por lo que el valor de la constante C es:

$$C = - \left(\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A \right) \quad (15)$$

introduciendo este valor para C en la ecuación (12) obtenemos:

$$\begin{aligned} N_B &= \left(\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A \right) e^{-\lambda(A) t} - \left(\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A \right) \times \\ &\quad \times e^{-\lambda(B) t} \end{aligned} \quad (16)$$

o bien:

$$N_B = \left(\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A \right) \left(e^{-\lambda(A) t} - e^{-\lambda(B) t} \right) \quad (17)$$

si a $t = 0$ existen átomos del elemento B, entonces a la expresión (17) solo es necesario agregar el término $N_B^0 e^{-\lambda(B)t}$ para dar cuenta de la nueva condición. La expresión general es:

$$N_B = \left(\lambda_A N_A^0 / \lambda_B - \lambda_A \right) \left(e^{-\lambda(A)t} - e^{-\lambda(B)t} \right) \times \\ \times N_B^0 e^{-\lambda(B)t} \quad (18)$$

si la ecuación (18) es multiplicada por $-\lambda_B$, obtenemos una expresión en función de las actividades:

$$A_B = -\lambda_B N_B \\ A_B = \left(A_A \lambda_B / \lambda_A - \lambda_B \right) \left(e^{-\lambda(B)t} - e^{-\lambda(A)t} \right) \quad (19)$$

En nuestro estudio, el sistema de no equilibrio es resuelto por medio de la ecuación 19. Es decir:

$$A_{101m} = \left(A_{101} \lambda_{101} / \lambda_{101} - \lambda_{101m} \right) \times \\ \times \left(e^{-\lambda_{101m}t} - e^{-\lambda_{101}t} \right).$$

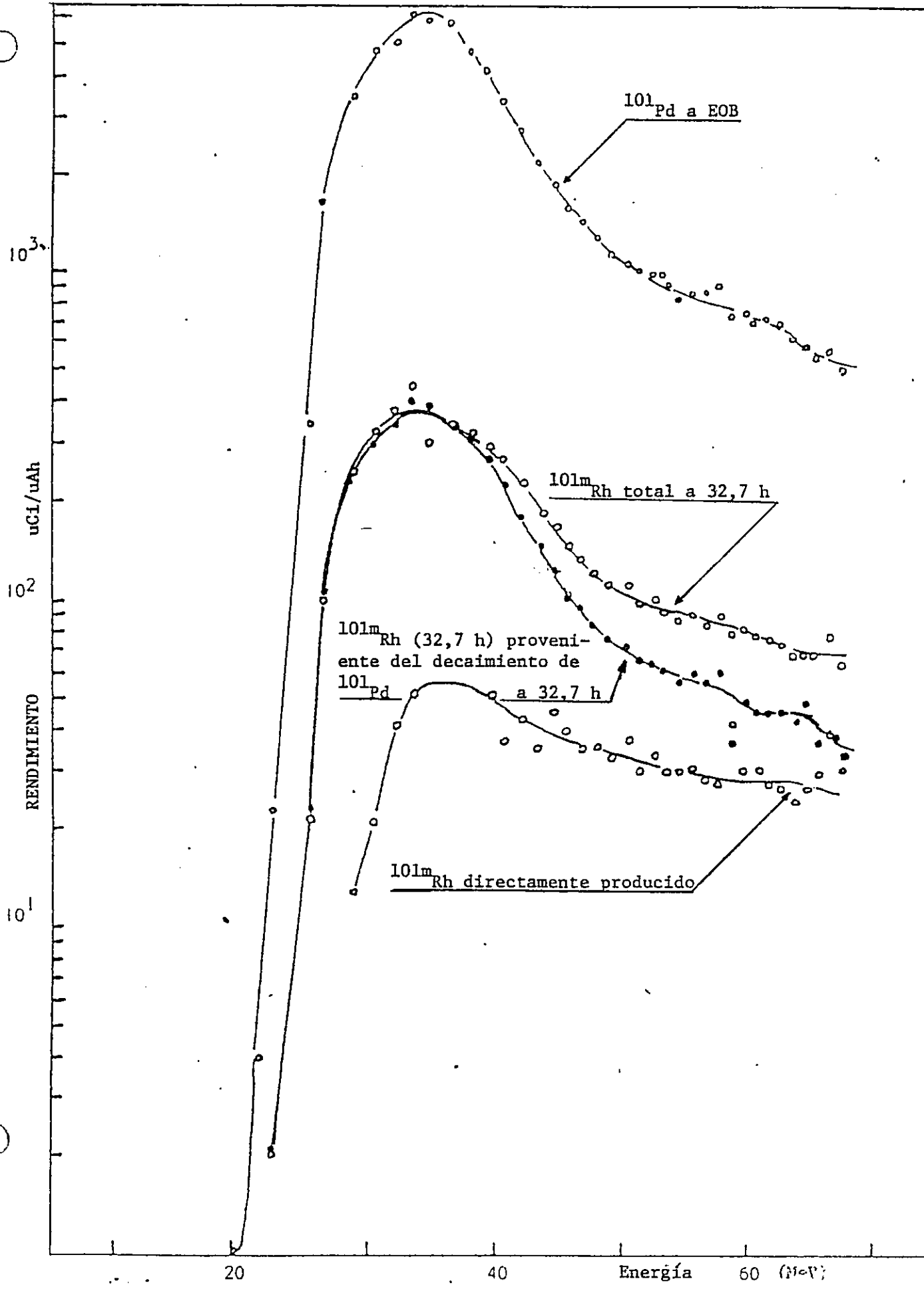
Tabla 30 Estado de no-equilibrio entre ^{101}Pd Y ^{101m}Rh

Energía (MeV)	Tiempo Real (h)	^{101}Pd (EOB)	^{101}Pd (TOC)	^{101m}Rh (EOB)	^{101m}Rh (32.7h)	^{101m}Rh (32.7h) de ^{101}Pd	^{101m}Rh Directo(32.7h)
67.1	3.67	0.498	0.369	0.080	0.064	0.033	0.031
66.2	4.02	0.570	0.410	0.097	0.078	0.038	0.040
65.3	4.18	0.565	0.401	0.084	0.067	0.037	0.030
64.3	4.40	0.590	0.412	0.082	0.066	0.039	0.027
63.4	4.60	0.640	0.439	0.084	0.067	0.042	0.025
62.4	4.78	0.699	0.472	0.091	0.073	0.046	0.027
61.5	4.97	0.710	0.473	0.093	0.075	0.047	0.028
60.5	5.15	0.709	0.466	0.097	0.078	0.047	0.031
59.5	5.33	0.742	0.478	0.100	0.080	0.049	0.031
58.5	5.53	0.737	0.469	0.098	0.079	0.049	0.030
57.5	5.73	0.913	0.571	0.110	0.088	0.060	0.028
56.5	5.92	0.861	0.530	0.107	0.086	0.057	0.029
55.5	6.10	0.884	0.537	0.112	0.089	0.059	0.030
54.4	6.28	0.857	0.513	0.109	0.087	0.057	0.030
53.4	6.47	0.929	0.547	0.115	0.092	0.061	0.031
52.3	6.62	0.983	0.571	0.124	0.099	0.065	0.034
51.2	6.83	1.002	0.573	0.121	0.097	0.066	0.031
50.1	7.03	1.085	0.611	0.137	0.110	0.072	0.038
49.0	7.22	1.144	0.643	0.137	0.110	0.076	0.034
47.9	7.43	1.268	0.690	0.151	0.121	0.084	0.037
46.7	7.62	1.440	0.770	0.165	0.132	0.095	0.037
45.5	7.80	1.582	0.836	0.181	0.145	0.105	0.040
44.3	7.98	1.837	0.956	0.210	0.168	0.122	0.046
43.1	8.22	2.184	1.115	0.226	0.181	0.145	0.036
41.9	8.45	2.725	1.365	0.280	0.224	0.180	0.044
40.5	8.68	3.395	1.669	0.327	0.262	0.225	0.037
39.2	8.92	4.160	2.005	0.362	0.290	0.275	Rech.
37.8	9.10	4.732	2.248	0.387	0.310	0.313	Rech.
36.4	9.45	5.307	2.601	0.420	0.336	0.351	Rech.
34.9	9.52	5.948	2.730	0.464	0.371	0.394	Rech.
33.4	22.42	6.077	0.971	0.568	0.455	0.402	0.053
32.0	22.85	5.147	0.794	0.478	0.383	0.341	0.042
30.4	23.85	4.854	0.690	0.427	0.342	0.321	0.021
28.8	24.40	3.576	0.486	0.312	0.250	0.237	0.013
27.1	24.80	1.622	0.213	0.125	0.100	0.107	Rech.
25.2	25.20	0.343	0.044	0.026	0.021	0.023	Rech.
23.3	25.70	0.023	0.003	0.002	0.002	0.002	0.001
21.3	26.12	0.004	0.005*	0.005*	0.004*	0.003*	0.001*
19.3	26.55	0.001	0.001*	0.005*	0.004*	0.007**	0.001*
17.2	27.20	-----	-----	0.009*	0.007*	-----	-----
15.1	27.80	-----	-----	0.004*	0.003*	-----	-----

Nota: * es equivalente al factor 10^{-1}

** es equivalente al factor 10^{-2}

Figura 32. Rendimiento para el sistema $^{101}\text{Pd} \rightarrow ^{101m}\text{Rh} \rightarrow ^{101}\text{Ru}$



VII.-DISCUSION

 ^{97}Ru

^{97}Ru (2,88 d; EC 100%) ha sido identificado por sus emisiones de 216 keV (87%) y 324 keV (11%). Todos los análisis derivados de la espectroscopía gama, conducentes a rendimiento (mCi/uAh) y sección eficaz (mb), han sido efectuados con el gama de 216 keV. La producción de ^{97}Ru ha comprendido el rango de 67,1 MeV a 37,8 MeV. Experimentos de irradiación de ^{103}Rh metálico producen un rendimiento de 1,36 mCi/uAh. Experimentos efectuados con un blanco de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ en el rango de 45,5 MeV a 35,0 MeV (véase Figura 33) producen un rendimiento de 0,07 mCi luego de finalizado el proceso radioquímico.

La radioquímica del ^{97}Ru no presenta mayores complicaciones. Puede ser aislado del resto de los radionuclidos producidos, por destilación en medio ácido, si la energía del haz de protones es de 45,5 MeV o menor. A energías mayores que 45,5 MeV, ^{95}Tc , ^{95m}Tc y ^{96}Tc son producidos. Estos radionuclidos de Tc destilan, al igual que ^{97}Ru , en la forma MO_4 y/o M_2O_7 . (véase Figura 36 y Figura 37).

Existen varios canales posibles para la producción de ^{97}Ru . La Tabla 31 resume esas posibilidades.

La sección eficaz de reacción ha sido medida para la producción de ^{97}Ru , su máximo de 56 mb se encuentra a 52,3 MeV (véase Figura 15).

Tabla 31 Valores de Q (MeV) y E_{umbral} (MeV) para los posibles canales de producción de ^{97}Ru .

Reacción nuclear	Q (MeV)	E_{umbral} (MeV)
$^{103}\text{Rh}(p,7n)^{97}\text{Pd}(3,3 \text{ min}) \rightarrow ^{97}\text{Rh}(31.1 \text{ min}) \rightarrow ^{97}\text{Ru}$	-59.5	60.1
$^{103}\text{Rh}(p,p6n)^{97}\text{Rh}(31.1 \text{ min}) \rightarrow ^{97}\text{Ru}$	-53.9	54.4
$^{103}\text{Rh}(p,2p5n)^{97}\text{Ru}$	-49.6	50.1
$^{103}\text{Rh}(p,pd4n)^{97}\text{Ru}$	-47.4	47.9
$^{103}\text{Rh}(p,2d3n)^{97}\text{Ru}$	-45.2	45.6
$^{103}\text{Rh}(p,^3\text{He}4n)^{97}\text{Ru}$	-41.9	42.3
$^{103}\text{Rh}(p,pt3n)^{97}\text{Ru}$	-41.4	41.8
$^{103}\text{Rh}(p,dt2n)^{97}\text{Ru}$	-38.9	39.3
$^{103}\text{Rh}(p,2tn)^{97}\text{Ru}$	-32.7	33.0
$^{103}\text{Rh}(p,^4\text{He}3n)^{97}\text{Ru}$	-21.3	21.5
$^{103}\text{Rh}(p,^5\text{He}2n)^{97}\text{Ru}$	-22.2	22.4
$^{103}\text{Rh}(p,^6\text{He}n)^{97}\text{Ru}$	-20.4	20.6

^{95}Tc

^{95}Tc (20,0 h, EC no emisión β^+) fue identificado durante los análisis de la espectroscopía gama por su emisión de 766 keV (93%).

El rendimiento obtenido es de 0,28 mCi/uAh. Tal como puede observarse en la Figura 16, los valores experimentales encontrados solo insinúan el inicio de la curva para la sección eficaz de reacción. Dicha curva sugiere un canal posible de reacción de acuerdo a $^{103}\text{Rh}(p,3d3n)^{95}\text{Tc}$ cuyo valor Q es de -58,35 MeV y/o $^{103}\text{Rh}(p,3p6n)^{95}\text{Tc}$ valor de Q = -65,00 MeV; o bien por participación de ambas reacciones. Lo que concuerda plenamente con los valores experimentales es que el canal $^{103}\text{Rh}(p, \alpha 4np)^{95}\text{Tc}$ con un valor de Q igual a -36,72 MeV esta descartado, por la ausencia de actividad debida al ^{95}Tc en dicha región energética.

 ^{95m}Tc

^{95m}Tc (61 d; EC 95,8%; β^+ 0,3%; IT 3,9%) ha sido identificado por su gama de 204 keV (66%). Al igual que en el caso anterior, ^{95}Tc , los resultados experimentales sólo muestran el inicio de la curva de la sección eficaz de reacción (véase Figura 17). El rendimiento medido es de 0,57 mCi/uAh.

 ^{96}Tc

^{96}Tc (4,35 d; 100% EC) ha sido reconocido por sus fotopicos de 778 keV (99%), 812 keV (81,3%) y 850 keV (96,7%), (véase Figura 34).

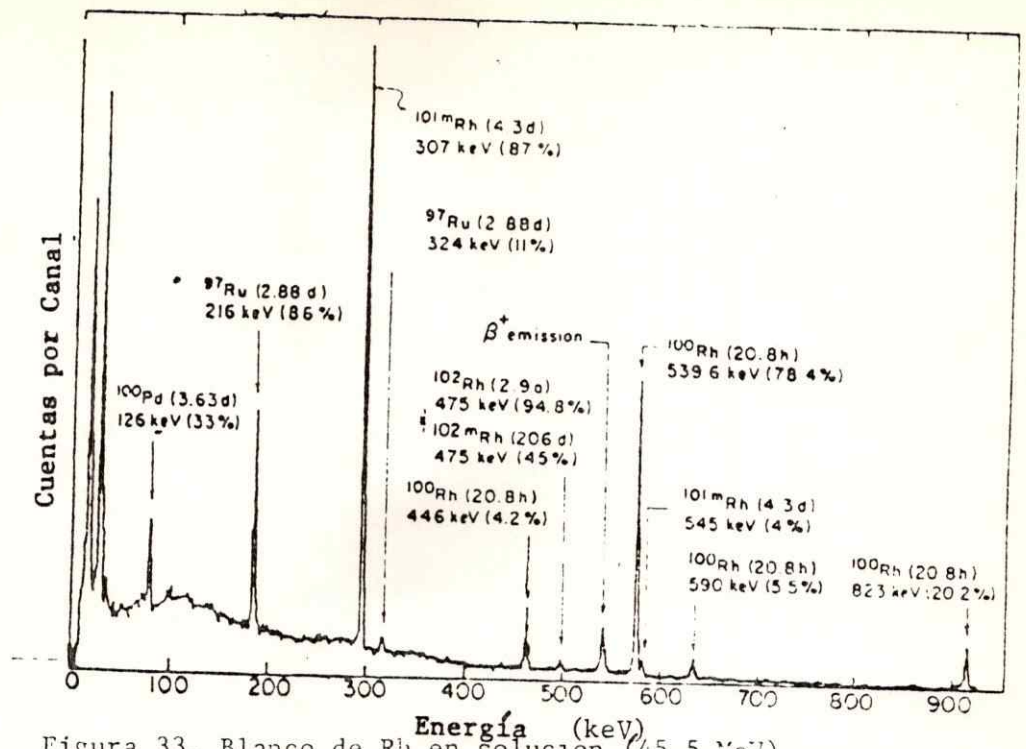


Figura 33. Blanco de Rh en Solución (45,5 MeV)

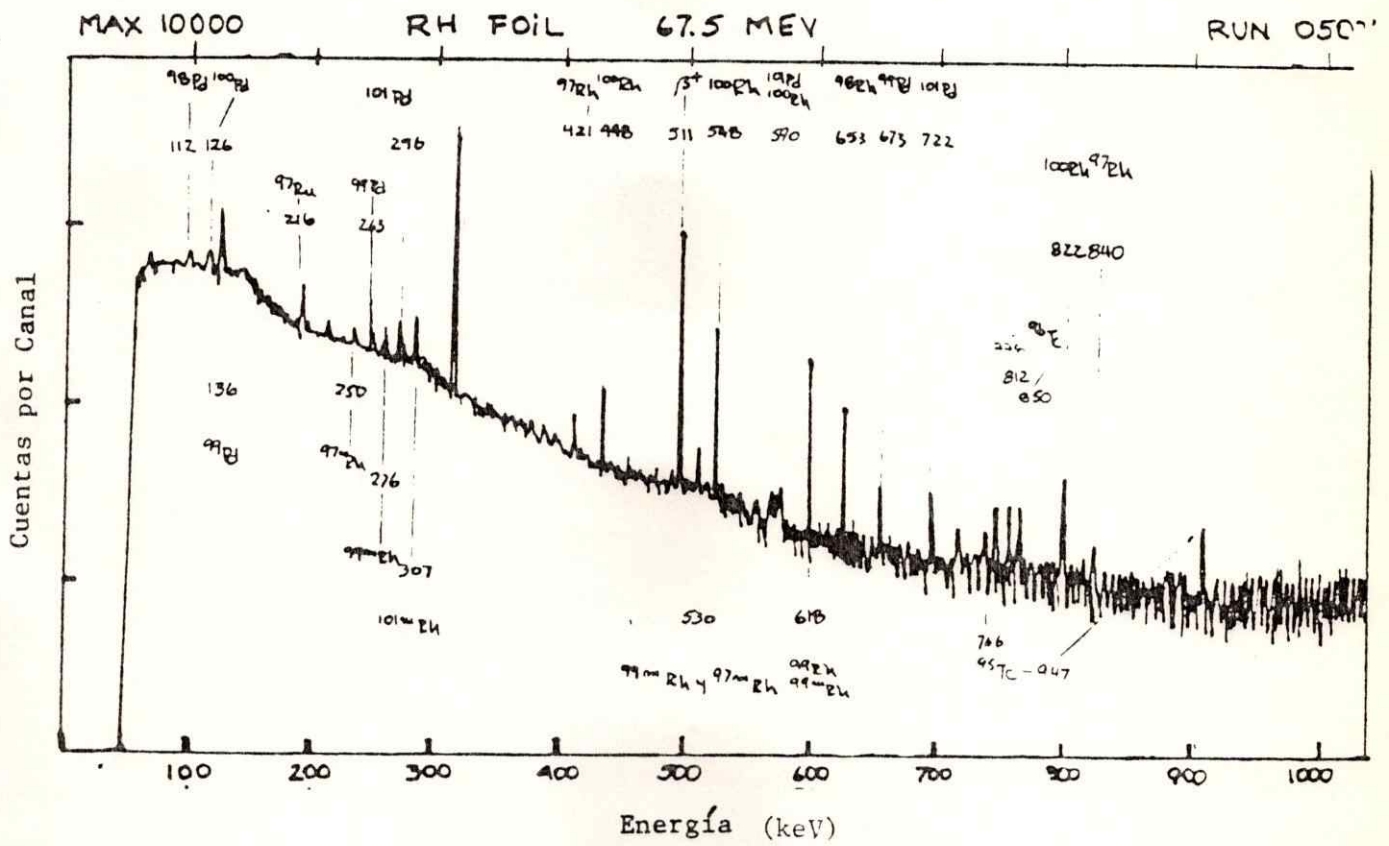


Figura 34 Blanco de Rh a 67,1 MeV

Las determinaciones experimentales sugieren un máximo de 26,7 mb alrededor de 67 MeV (véase Figura 18). El canal más probable de reacción sería $^{103}\text{Rh}(p, 3d2n)^{96}\text{Tc}$ con un valor de Q de - 57,54 MeV, quedando descartados por la evidencia experimental, ausencia de actividad, los canales $^{103}\text{Rh}(p, \alpha 2nd)^{96}\text{Tc}$, $Q = - 26,48 \text{ MeV}$ y $^{103}\text{Rh}(p, \alpha 3np)^{96}\text{Tc}$ $Q = - 28,79 \text{ MeV}$. El rendimiento obtenido es de 0,26 mCi/uAh.

Debe ser notado que tanto ^{95}Tc , ^{95m}Tc como ^{96}Tc destilan en medio ácido junto a ^{97}Ru . Es necesario un proceso radioquímico posterior en orden a obtener ^{97}Ru de alta pureza radionuclídica (>98%), si protones de energías mayores que 45,5 MeV se emplean en la irradiación (compárense las Figuras 33 y 34).

^{98}Pd

^{98}Pd (17,5 min; EC + β^+) ha sido producido via reacción $^{103}\text{Rh}(p, 6n)^{98}\text{Pd}$ cuyo valor de Q - 47,79 MeV. Dicho valor de energía concuerda con lo sugerido por los datos experimentales (véanse Figuras 34 y 19).

La emisión gama atribuida a ^{98}Pd es la de 112 keV (47%). La sección eficaz de reacción determinada experimentalmente sugiere un máximo de 10,04 mb a 65,3 MeV. El rendimiento medido a EOB es igual a 5,43 mCi/uAh, mientras que el rendimiento corregido por el decaimiento durante la irradiación es de 13,41 mCi/uAh.

^{98}Pd no ha sido aislado en el presente estudio. Si fuese necesaria su pu-

rificación para potenciales experimentos, debe considerarse un tiempo mínimo necesario para empezar su procesamiento dada la intensidad del campo producida por la irradiación en el blanco, entre el fin de la irradiación y el inicio del proceso radioquímico.

^{99}Pd

^{99}Pd (21,4 min; β^+ + EC) ha sido identificado por el gama de 136 keV (73%), (véase Figura 34). El canal posible de reacción es $^{103}\text{Rh}(p,5n)^{99}\text{Pd}$ con un valor de Q de - 38,92 MeV. El rendimiento total obtenido es de 12,89 mCi/uAh, el que corregido por el decaimiento durante el bombardeo resulta ser de 29,61 mCi/uAh.

La sección eficaz de reacción muestra un máximo de 65,7 mb a 62,4 MeV. ^{99}Pd no fue aislado en el presente trabajo (véase Figura 20).

^{100}Pd

^{100}Pd (3,63 d; EC) es uno de los radionuclidos aislados en el presente trabajo, (véase Figura 40).

Su identificación ha sido hecha con el gama de 136 keV (73%). El rendimiento obtenido es de 4,3 mCi/uAh. La sección eficaz de reacción muestra un máximo de 295 mb a 44,3 MeV, tal como se aprecia en la Figura 21.

^{100}Pd ha sido extraído, junto a ^{101}Pd , en cloroformo. Luego de evaporar

el CHCl_3 y después de 32,7 h (tiempo máximo para el crecimiento de ^{101m}Rh , por el decaimiento de ^{101}Pd), una nueva extracción es efectuada. La fase orgánica conteniendo ^{100}Pd es evaporada. El residuo es llevado a la temperatura de ebullición con HNO_3 concentrado para, finalmente, colocar a la actividad de ^{100}Pd en un solvente deseado (véase Figura 40). La única impureza encontrada corresponde a ^{100}Rh , gama de 548 keV (78%) producido por el decaimiento de ^{100}Pd . De esta forma ^{100}Pd puede ser empleado como tal luego de una extracción en cloroformo o puede ser utilizado como generador de ^{100}Rh .

^{101}Pd

^{101}Pd (8,47 h; Ec 93,6% β^+ 6,4%) ha sido identificado por su gama de 296 keV (18%), (véase Figura 34). El rendimiento obtenido es de 71,67 mCi/uAh, el que corregido por el decaimiento durante la irradiación es de 74,35 mCi/uAh.

La sección eficaz de reacción (véase figura 22) muestra un máximo de 480 mb a 33,4 MeV. La forma de la curva sugiere un canal de producción fundamentalmente. Este sería la reacción $^{103}\text{Rh}(p,3n)^{101}\text{Pd}$ con un valor de Q de -19,53 MeV.

^{101}Pd , al igual que ^{100}Pd ha sido aislado por medio de una extracción en CHCl_3 . ^{101}Pd ha sido producido con el objeto de obtener ^{101m}Rh de alta pureza radionuclídica. Esto ha sido logrado permitiendo al ^{101}Pd decaer a ^{101m}Rh ($t_{\text{máx}} = 32,7$ h). Después de ese lapso una nueva extracción es hecha, ^{101m}Rh no es extraído por el cloroformo, permaneciendo en la fase acuosa. Posterior evaporación y destrucción del CHCl_3 y del H-DWG por ácido nítrico, permiten colocar a ^{101m}Rh en un solvente

apropiado, como 10^{-3} N HCl u otro, para su empleo en posteriores experimentos (véase Figura 39).

^{97}Rh y $^{97\text{m}}\text{Rh}$

Ambos nuclidos, ^{97}Rh (31 min; β^+ + EC) y $^{97\text{m}}\text{Rh}$ (44 min; β^+ , EC IT 5,3%) han sido identificados por sus gamas de emisión de 421 keV (75%) y 189 keV (62%) respectivamente (véase Figura 34).

Los rendimientos obtenidos son 1,18 mCi/uAh, que corregido para el decaimiento durante la irradiación es 1,25 mCi/uAh para ^{97}Rh y 0,57 mCi/uAh corregido para el mismo efecto 0,86 mCi/uAh para $^{97\text{m}}\text{Rh}$.

Los datos medidos para la curva de la sección eficaz de reacción, en el rango considerado, no permiten un análisis detallado acerca de los posibles canales de reacción. En todo caso la posible via es $^{103}\text{Rh}(p,p6n)^{97}\text{Rh}$ con un valor de Q igual a - 53,85 MeV (veanse Figuras 23 y 24).

^{97}Rh (31 min) y $^{97\text{m}}\text{Rh}$ (44 min) no fueron purificados en este estudio por lo corto de sus vidas medias.

^{98}Rh

^{98}Rh (8,7 min; β^+ EC) fue identificado durante los análisis de la espectroscopía gama por su emisión de 652 keV (94%). ($^{98\text{m}}\text{Rh}$, 3,5 m; β^+ , EC también emite un gama de 652 keV (92%), pero al tiempo en que los análisis espectroscopicos fueron efectuados, aproximadamente 40 min luego de cesada la irradiación resultan en un factor de decaimiento de $e^{-\lambda t}$ igual

a $3,6 \times 10^{-4}$, por lo que se consideró que la emisión de 652 keV correspondía sólo a ^{98}Rh (véase Figura 34).

El rendimiento para ^{98}Rh es de 466,44 mCi/uAh. La curva de la sección eficaz de reacción no permite obtener un valor máximo en mb debido a la variaciones de la determinación (véase Figura 25). ^{98}Rh (8,7 min) no fue aislado por su vida media corta.

^{99}Rh y $^{99\text{m}}\text{Rh}$

^{99}Rh (15 d; EC 97%, β^+ 3%) y $^{99\text{m}}\text{Rh}$ (4.7 h; EC β^+) fueron identificados por sus emisiones de 528 keV y 618 keV respectivamente (véase Figura 34).

Los correspondientes rendimientos son 1,92 mCi/uAh y 64,34 mCi/uAh. La forma de las curvas de las secciones eficaces de reacción tienen un máximo de 471 mb a 62 MeV para ^{99}Rh y de 237 mb a 60,5 MeV para $^{99\text{m}}\text{Rh}$ (véanse Figuras 26 y 27). Esto discrepa con los posibles canales de producción, en efecto si se consideran las reacciones $^{103}\text{Rh}(p,p4n)^{99}\text{Rh}$ con un valor de $Q = -34,74$ MeV; $^{103}\text{Rh}(p,^3\text{H}_2n)^{99}\text{Rh}$ valor de $Q = -32,51$ MeV y $^{103}\text{Rh}(p,d3n)^{99}\text{Rh}$ valor de $Q = -26,25$ MeV; vemos que ellas están por debajo del valor encontrado para Q , a través de la extrapolación de las curvas para la sección eficaz de reacción, sin contribuir al rendimiento medido.

^{99}Rh y $^{99\text{m}}\text{Rh}$ no fueron separados del resto de los radionuclidos, en este estudio, debido a su escasa utilidad en posibles aplicaciones en medicina.

^{100}Rh

^{100}Rh (20,8 h; EC 95%, β^+ 4,1%) fue identificado por el gama de 540 keV (78%), (véase Figura 34). El rendimiento obtenido en el rango de 67,5 a 20 MeV es de 25,10 mCi/uAh. La forma de la curva de la sección eficaz de reacción tiene un máximo de 249 mb a 49,0 MeV, sugiriendo un canal de formación de acuerdo a la reacción $^{103}\text{Rh}(p,p3n)^{100}\text{Rh}$ con un valor para Q de - 26,64 MeV, (véase Figura 28).

Debe notarse que en el rango de 52 MeV a 67 MeV, la curva de la sección eficaz de reacción desciende lentamente, probablemente debido a la posibilidad de otro canal de reacción, el que no es $^{103}\text{Rh}(p,d2n)^{100}\text{Rh}$, dado su valor de Q igual a - 24,41 MeV. ^{100}Rh directamente producido no fue aislado. Pero la actividad de ^{100}Rh del decaimiento de ^{100}Pd (3,63 d) puede ser extraída, con alta pureza radionuclídica, para su empleo como trazador.

 ^{101}Rh

^{101}Rh (3,3 a; EC) muestra un máximo de la sección eficaz de reacción a 49 MeV. La forma de la curva a energías mayores que 55 MeV indican la posibilidad de, al menos, otro canal de producción (véase Figura 29). ^{101}Rh no fue aislado durante el presente estudio.

^{101m}Rh

^{101m}Rh (4,26 d; EC 92,8%; IT 7,2%) ha sido producido via reacción $^{103}\text{Rh}(p,p2n)^{101m}\text{Rh}$ valor de $Q = -16,76$ MeV y, mayormente, por el decaimiento de ^{101}Pd (8,47 h). Su identificación, llevada a cabo por espectroscopía gama, análisis posteriores y radioquímica, fueron efectuados para la emisión gama de 307 keV (87%), (veanse Figuras 33, 34 y 39).

El rendimiento para el rango 67,5 MeV a 20 MeV corresponde a un total de 8,78 mCi/uAh, del cual solo 1,09 mCi/uAh es directamente producido via $^{103}\text{Rh}(p,p3n)^{101m}\text{Rh}$ (véase Figura 32).

La sección eficaz de reacción muestra un máximo de 540,7 mb a 33,5 MeV

La actividad del radionuclido ^{101m}Rh directamente producido no ha sido purificada. Por el contrario la actividad de 101m proveniente del decaimiento de ^{101}Pd es la que ha sido procesada para la producción de ^{101m}Rh de alta pureza radionuclídica, (véase Figura 39).

 ^{102}Rh

^{102}Rh (2,9 a; EC, β^+ , IT) fue producido via $^{103}\text{Rh}(p,pn)^{102}\text{Rh}$ con un valor de Q igual a $-9,31$ MeV.

El rendimiento obtenido es de 0,65 mCi/uAh. La forma de la curva de la

sección eficaz de reacción muestra, en el rango considerado, un posible máximo de 66,13 mb alrededor de 28,8 MeV.

El rango comprendido entre 28,8 MeV y 20 MeV no presenta al fotopico de 475 MeV (95%) en condiciones de ser analizado con un error inferior al 50%, por lo que tal región no fue considerada. ^{102}Rh no fue separado radioquímicamente.

El rango de energía comprendido en el presente estudio (67,5 MeV a 15,1 MeV) permite la producción de todos los radionuclidos de la Tabla 8. Los radionuclidos de interés, i.e., ^{97}Ru , ^{100}Pd y ^{101m}Rh via ^{101}Pd abarcan un rango de energía desde 67,5 MeV hasta 19,7 MeV (19,7 MeV es la energía umbral para la producción de ^{101}Pd). De acuerdo con ello y sumando los rendimientos a EOB para cada energía y cada radionuclido, obtenemos el rendimiento acumulado por cada radionuclido, el cual está dado en la Tabla 32.

Tabla 32 Rendimiento acumulado a EOB y 32,7 h

Nuclido	Rendimiento	
	mCi/uAh	
	EOB	32,7 h
^{97}Ru	1,36	0,98
^{95}Tc	0,30	0,10
$^{95\text{m}}\text{Tc}$	0,57	0,56
^{96}Tc	0,26	0,21
^{98}Pd	6,31	0,00
^{99}Pd	137,62	0,00
^{100}Pd	4,37	3,37
^{101}Pd	71,69	4,93
^{97}Rh	1,18	0,00
$^{97\text{m}}\text{Rh}$	0,56	0,00
^{98}Rh	466,47	0,00
^{99}Rh	1,92	1,80
$^{99\text{m}}\text{Rh}$	64,34	0,52
^{100}Rh	25,05	8,42
^{101}Rh	0,45	0,45
$^{101\text{m}}\text{Rh}$	7,14	5,72
^{102}Rh	0,65*	0,65*

* Debe multiplicarse por el factor 10^{-2}

Es claro de dicha tabla que un rango óptimo de energía para la producción de ^{97}Ru , ^{100}Pd y ^{101m}Rh es el comprendido entre 45,5 MeV y 20 MeV, (véase Figura 34). En este caso no hay contribuciones, a la actividad total de radionuclidos cuyas energías umbrales son mayores que 45,5 MeV. El único contaminante de consideración es ^{100}Rh , gama de 540 keV; 20,8 h de vida media, proveniente del decaimiento de ^{100}Pd , (vida media 3,63 d). Por lo que es posible usar al nuclido ^{100}Pd como tal o como generador de ^{100}Rh . No fue encontrado en esta irradiación ^{99}Pd , energía umbral 39,30 MeV, vida media de 21,4 m, seguramente por la baja intensidad del haz, el corto tiempo de irradiación y fundamentalmente, por el tiempo de espera (45 min) que se tuvo antes de retirar el blanco desde su posición de irradiación, BL0.

Para tal efecto se construyó un blanco de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ y se le irradió con protones de 45,5 MeV y de 0,2 uA de intensidad, durante 30 min. No se encontraron otros radionuclidos fuera de ^{97}Ru , ^{100}Rh y ^{101m}Rh proveniente del decaimiento de ^{101}Pd . Tampoco se encontró el gama de 475 keV emitido por ^{102}Rh (95%) y ^{102m}Rh (45%). Esto debido al corto tiempo de irradiación, la baja intensidad del haz y, principalmente, a la larga vida media de estos nuclidos (2,9 a y 206 d, respectivamente).

Como puede observarse en la Tabla 33 los productos de dicha irradiación poseen un alto factor de decontaminación.

Tabla 33 Actividades Obtenidas al Irradiar $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ con Protones de 45,5 MeV.

Radionuclido	EOB		$t_m = 32,7 \text{ h}$	
	mCi/uAh	%	mCi/uAh	%
^{97}Ru	0,02	2,14	0,10	6,55
^{100}Pd	2,41	34,25	0,81	53,53
^{101m}Rh	0,36	5,23	0,32	20,71
^{101}Pd	4,23	60,31	0,29	19,20

De esta forma, y por medio del proceso radioquímico desarrollado, pueden obtenerse ^{97}Ru , ^{100}Pd y ^{101m}Rh para su potencial uso en medicina.

Procesos Radioquímicos.

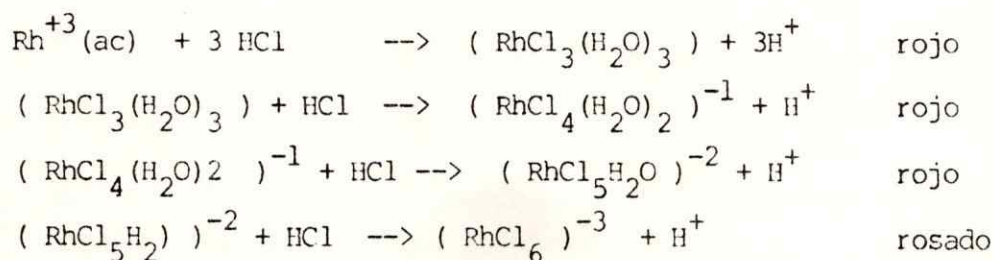
1.- ^{103}Rh (metálico)

Disolución

Tal como se ha planteado en el capítulo III, la disolución de ^{103}Rh metálico por una corriente alterna de 0,4 a 0,6 A/cm² permite una tasa de disolución de ~ 0,040 g/h. El producto son los complejos de rodio(III) de

color rojo.

La lámina de ^{103}Rh disuelta en 6 N HCl produce una solución de color rojo, debido a la presencia de complejos de ^{103}Rh de la forma⁽²¹⁾:

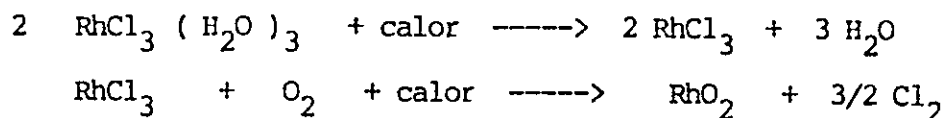


estos complejos se supone que existen dado que soluciones frescas no precipitan con Ag^+ . Por cierto la mayor concentración de ^{103}Rh en solución proviene del complejo de $^{103}\text{Rh}(\text{III})$ en sus formas anónicas, dado el exceso de cloruro proveniente del HCl 6N. Las soluciones de los complejos de $^{103}\text{Rh}(\text{III})$ son intensamente coloreadas de rojo y cristalinas. Esta solución cuyo volumen es, aproximadamente, 10 mL es transferida a un vaso de precipitado de 150 ml de capacidad y colocada sobre un calentador eléctrico.

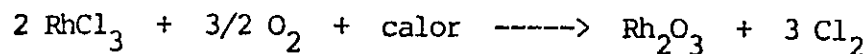
La evaporación en estas condiciones permite obtener una tasa de evaporación rápida sin que la solución alcance su punto de ebullición y sin la necesidad de excesivo calor, dada la superficie de exposición al ambiente del vaso de precipitados de 150 mL. La evaporación toma un tiempo de 15 a 20 minutos, y especial cuidado se tuvo hacia el final de la evaporación. En efecto,

y luego de unos 12 minutos, el calentador es apagado y la evaporación es finalizada a temperatura ambiente. El residuo de aspecto amorfo y color café-rojo-oscuro, corresponde principalmente a los complejos de $^{103}\text{Rh(III)}$.

La razón para evitar un sobrecalentamiento de la solución y de su cuidado cuando la evaporación ha sido casi lograda, es para evitar la formación de óxidos de Rh, por ejemplo, de acuerdo a:



además y/o paralelamente



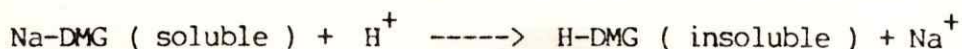
estos óxidos son insolubles, por lo que su obtención no puede ser considerada como un paso en la radioquímica del Rh, cuya finalidad es obtener un producto distinto a su forma de óxido.

Re-disolución de los complejos de $^{103}\text{Rh(III)}$

El producto es redisoluelto en H_2O destilada y desionizada. La solución resultante es de pH ácido y de color naranja-amarillo debido a la presencia de complejos hexa-acuocloruros de Rh(III). Si el producto es disuelto en HCl 0,1 N, la solución resultante es de tonalidad rojo-anaranjado.

Adición de Dimetilglioximato de sodio (a-DMG)

A la solución ácida de los radionuclidos obtenidos se agregaron gotas de Na-DMG (DMG = $C_4H_6N_2O_2$) al 10%. Con esto se obtiene la formación de la forma ácida del H-DMG, la cual es insoluble en H_2O



El aspecto de la forma ácida del DMG es el de un precipitado amorfo blanquecino. Luego de un exceso de Na-DMG, la solución es agitada y dejada reposar por 5 a 10 minutos.

Separación de los radionuclidos de Pd

Desde este punto del proceso químico del blanco y dada la presencia de un sólido como consecuencia de la adición de Na-DMG, el paso lógico a seguir fue la filtración (con filtro de 22 micrones) y posterior espectroscopía gama tanto para el filtrado como para el agua-madre. Todos los resultados derivado de la filtración muestran al filtrado, como a las aguas madres, teniendo el mismo espectro de rayos gama.

Ninguna diferencia significativa fue encontrada variando la cantidad de DMG agregada y, por tanto, la cantidad de DMG removida de la solución. En todos los casos tanto el líquido filtrado como el filtro entregaron, dentro de un error experimental del 15% la misma razón para los radionuclidos de Ru, Rh y Pd. La filtración es descartada dado el bajo factor de decontaminación encontrado.

Separación de los radionuclidos de Pd con transportadores (carrier)

Absolutamente diferentes son los resultados obtenidos con DMG si Pd natural, no radioactivo, está presente como "carrier". Como ha sido demostrado por Lagunas-Solar et al⁽⁷⁾, la adición de PdCl₂ separa a los radionuclidos de Pd por la formación de un complejo de color amarillo característico, de acuerdo a la reacción:

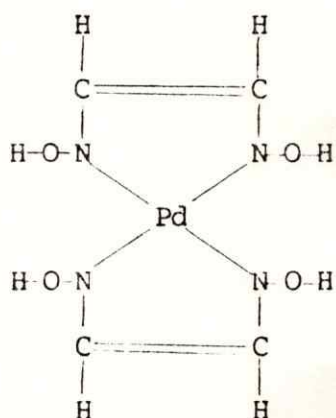
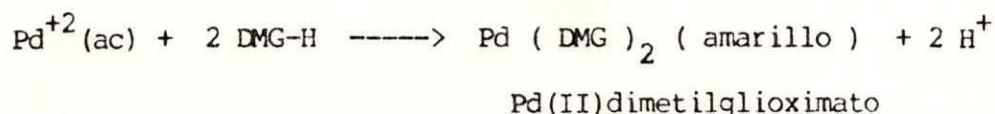


Figura 35 Estructura del Pd(II)dimetilgloximato

Separación de los radionuclidos de Pd sin transportadores.

La solución activa conteniendo el sólido de la forma ácida del DMG es transferida a un embudo de decantación. Cloroformo (CHCl₃) es agregado en una proporción de 3:1 con respecto al volumen de la solución que contiene la mezcla de radionuclidos. El embudo de decantación es agitado y dejado reposar por 10 minutos como mínimo. La extracción de los radionuclidos de Pd es efec-

tuada con un rendimiento comparable a la precipitación de Pd con DMG en presencia de "carrier". Si la extracción es repetida para la fase acuosa, el rendimiento es mejorado y un alto factor de decontaminación es logrado.

La fase orgánica de la extracción contiene a los radionuclidos de Pd, la fase acuosa contiene a los radionuclidos de Rh y ^{97}Ru .

Los radionuclidos de Pd, en cloroformo, deben ser evaporados a sequedad para su posterior procesamiento. Los primeros experimentos realizados empleando un calentador eléctrico para la evaporación dejaron un residuo blanquecino. Dicho residuo (al parecer formas dímeras o polímeras del cloroformo) contenía a los radionuclidos. Relativamente inerte, su disolución sólo fue lograda por medio de HNO_3 (conc) mantenido a la temperatura de ebullición durante 10 min. Una forma alternativa de evaporación fue probada con éxito. En efecto, el empleo de una corriente de aire o burbujeo de He permite una tasa de evaporación mas rápida que la obtenida por calentamiento (aproximadamente 7 minutos contra 20 minutos) y, más importante, sin la formación de residuo visible. Este proceso en su totalidad solo tomó entre 5 y 10 minutos y los radionuclidos son depositados en el fondo del vaso de precipitados.

Para una total destrucción de los posibles residuos orgánicos, el residuo es llevado a temperatura de ebullición con 5 mL de HNO_3 (conc). Experimentalmente ha sido observado que la presencia de agentes orgánicos tiñe de amarillo al HNO_3 . En la medida que la ebullición procede, la solución se decolora para quedar incolora finalmente. Si es necesario un exceso de HNO_3 puede ser agregado en orden a obtener una solución totalmente incolora. Debe continuarse con la ebullición de HNO_3 para su evaporación. Es aconsejable continuar con la

ebullición hasta mas o menos 0,5 mL y terminar su evaporación a una temperatura menor, en orden a prevenir calentamientos localizados que puedan inducir la formación de óxidos y para evitar pérdidas de actividad por gasificación (véase Figura 39).

Separación de ^{97}Ru de la Fase Acuosa

La separación de ^{97}Ru desde la solución activa que contiene los radionuclidos de Rh es llevada a cabo por una destilación en medio ácido (veanse figuras 36, 37 y 38).

Previo a la destilación se requiere de la oxidación de ^{97}Ru para homogeneizar sus estados de oxidación a $^{97}\text{Ru}^{+8}$. El empleo de permanganato de potasio o ácido perclórico (KMnO_4 y HClO_4 respectivamente) como oxidantes consigue, en cada caso, lograr este propósito. Sin embargo, tanto por razones que permiten visualizar mejor el interior de la solución como por la necesidad de un menor volumen y la no adición de otro metal como manganeso, se prefirió al ácido perclórico como el agente oxidante. Los constituyentes de la destilación son una mezcla de la solución activa, H_2O desionizada, HClO_4 y H_2SO_4 concentrados en la relación 1:3:2:5.

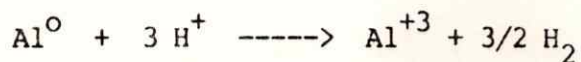
La separación de ^{97}Ru es efectuada en un sistema de destilación típico de microanálisis, con el objeto de minimizar tiempo y reducir las inevitables pérdidas, con la consecuente baja de rendimiento y eficiencia, por la actividad no recuperada desde el material de vidrio empleado.

El condensador es del tipo usual, recto, refrigerado por agua. El líquido condensado fue inicialmente recuperado en una solución de 15 mL de H₂O, 50 uL de HNO₃ Y 100 uL de H₂O₂ (30%), enfriado con CO₂ con el objeto de reducir al Ru (destilado como RuO₄) y evitar pérdidas por volatilización. Experimentos posteriores no mostraron diferencias significativas para el rendimiento, si el líquido condensado era recogido en 10 mL de etanol, mantenido también a baja temperatura. En este caso se tuvo la precaución de extender el codo, del sistema de destilación - ver Figura 9 - lo suficiente como para sumergir su extremo libre en el etanol, de suerte que todo el líquido destilado, y aquella porción que, no fuese condensada, fuese disuelta en etanol.

Los análisis de espectroscopía gama muestran que la separación de ⁹⁷Ru es lograda con un alto factor de decontaminación.

2.- RhCl₃ x 3H₂O

La disolución de RhCl₃ x 3H₂O irradiado muestra al blanco con el aspecto de fundido. El primer intento de disolución fue llevado a cabo en 5 mL de H₂O destilada, sin retirar al blanco de RhCl₃ x 3H₂O desde su soporte de Al. Dicha disolución fue considerada un fracaso toda vez que la solución ácida resultante de la disolución del RhCl₃ x 3H₂O, reaccionó con el Al.



Experimentos posteriores indicaron la necesidad de retirar el blanco de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$ desde su soporte para ser disuelto en H_2O . En esta ocasión la solución obtenida no es del color rojo intenso típico de los complejos. Esta solución está compuesta fundamentalmente por la sal $\text{RhCl}_3 \times n\text{H}_2\text{O}$, donde n vale usualmente 3 o 4. La ausencia de un alto porcentaje del Rh en su forma compleja incidió posteriormente en el rendimiento obtenido para la extracción de las actividades de paladio. La diferencia de esta disolución, cuando es comparada con la obtenida a partir de Rh metálico, emerge precisamente del hecho que ésta está compuesta por sales de rodio y la solución de Rh metálico por especies complejas.

Fue clara, la necesidad de obtener los complejos hexaacuocloruros de Rh, para un blanco de $\text{RhCl}_3 \times 3\text{H}_2\text{O}$. Para ello se disolvió el blanco en un exceso de HCl y para tal efecto se utilizó una solución de HCl 6N. La disolución del blanco de Rh, como cloruro, en esta concentración de ácido produce la intensa coloración roja característica de los complejos. De esta forma la disolución del blanco es efectuada de manera rápida, no más de 5 minutos, lo que permite una pronta separación de los radionuclidos de Pd en orden a obtener ^{101m}Rh de alta pureza radionuclídica, sin la necesidad de esperar entre 4 a 6 horas como mínimo que es el tiempo empleado por la disolución electrolítica de Rh metálico. Por cierto esto posibilita el empleo de blancos gruesos para la producción de altos niveles de actividad. Lamentablemente debe tenerse en este caso cuidado al escoger la intensidad del haz. Problemas de fusión del blanco emergen cuando el haz posee una intensidad mayor que $0.1\mu\text{A}$. También es posible utilizar blancos gruesos de Rh metálico pero, y como era de esperar, el tiempo necesario para la disolución es un factor en contra, indeseado, que incidirá en el desarrollo posterior de la radioquímica.

Figura 36. ^{97}Ru en etanol (67,1 MeV)

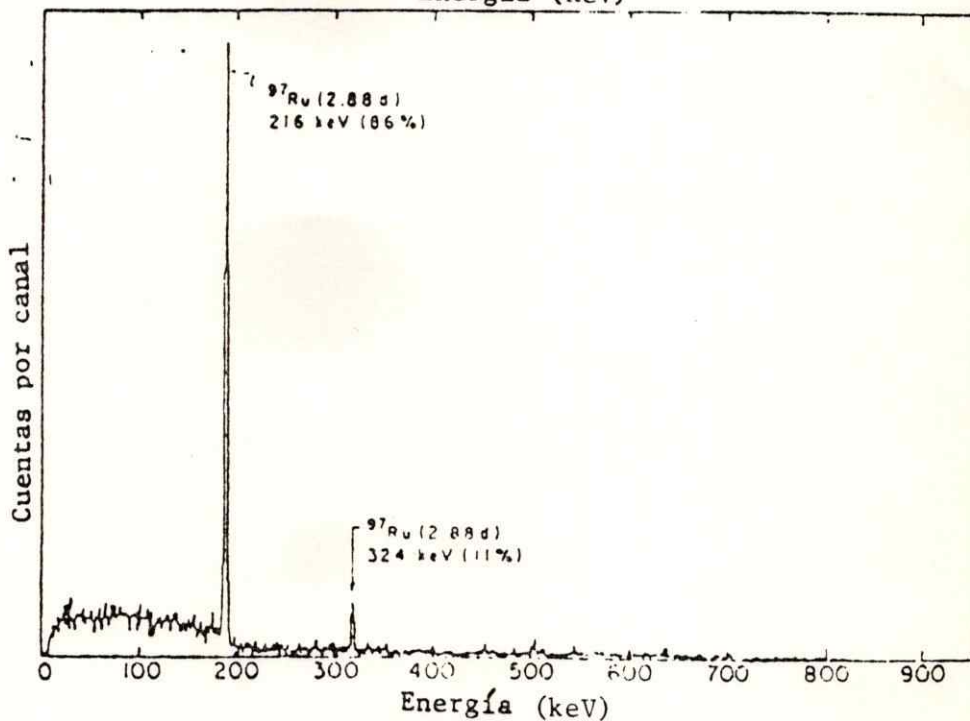
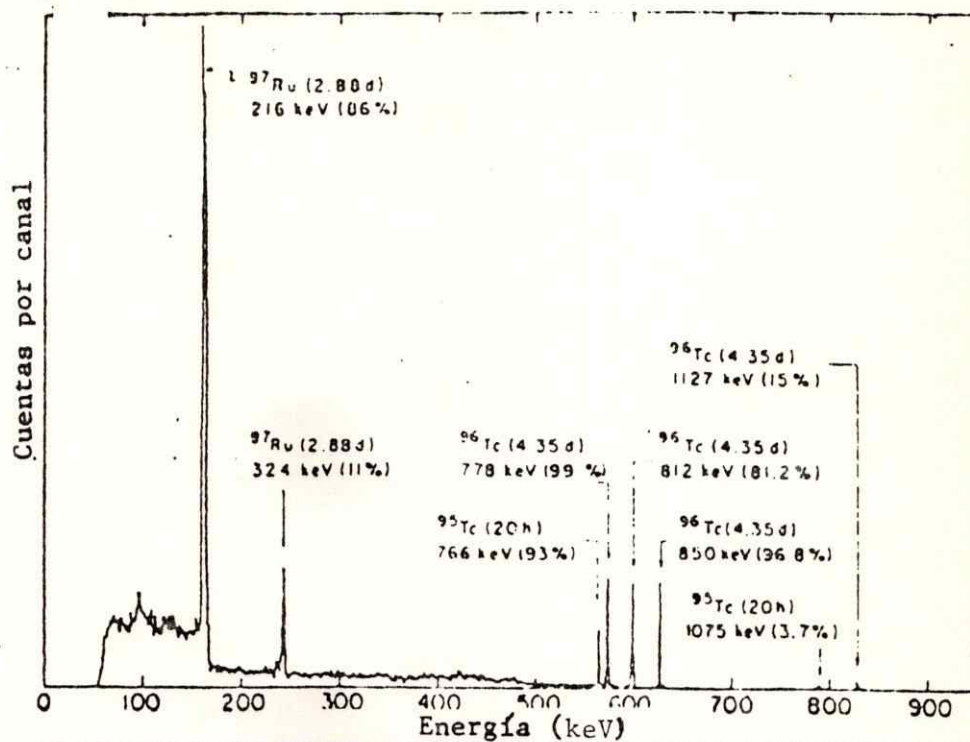


Figura 37. ^{97}Ru en etanol (45,5 MeV)

Figura 38. ⁹⁷Ru

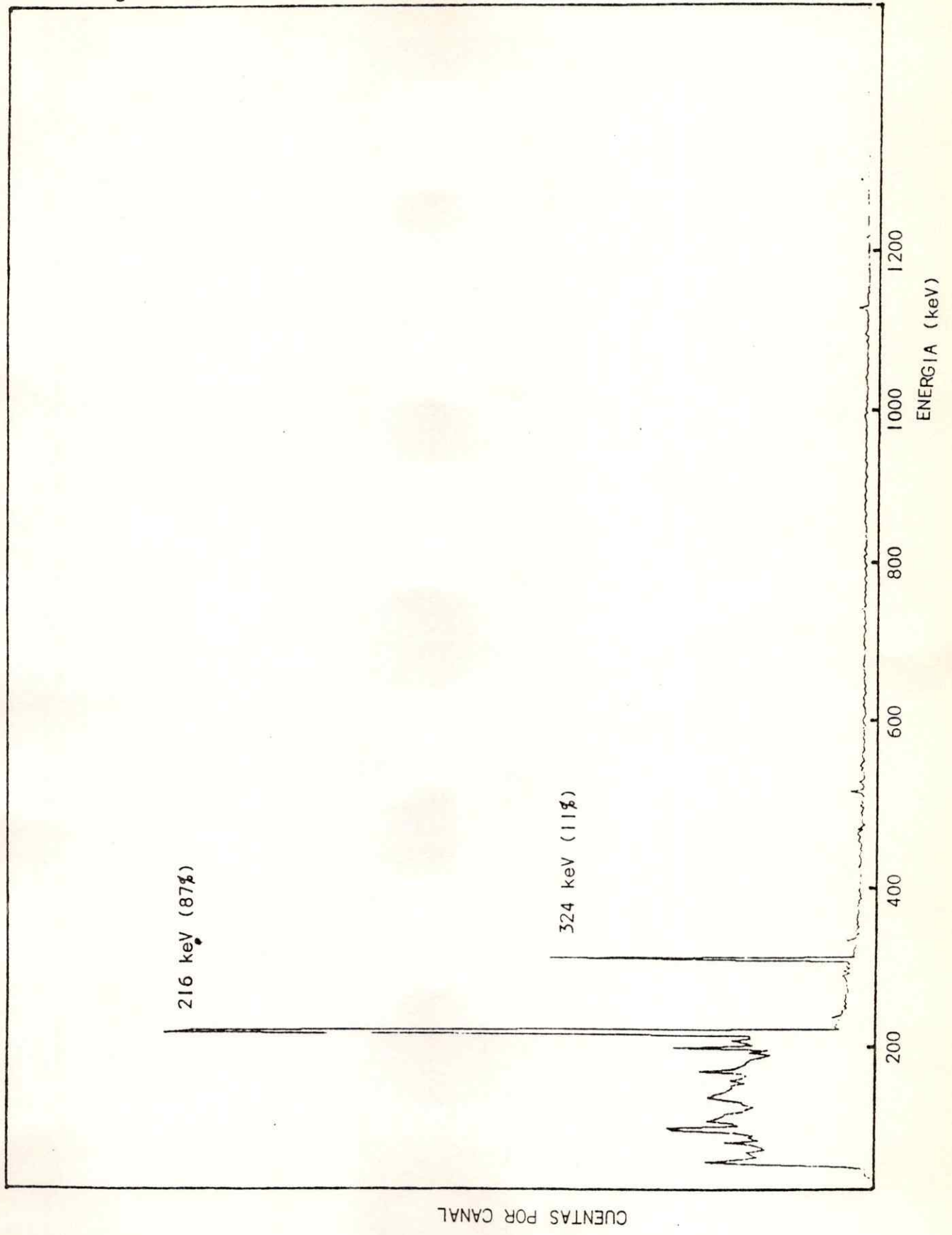


Figura 39. ^{101m}Rh

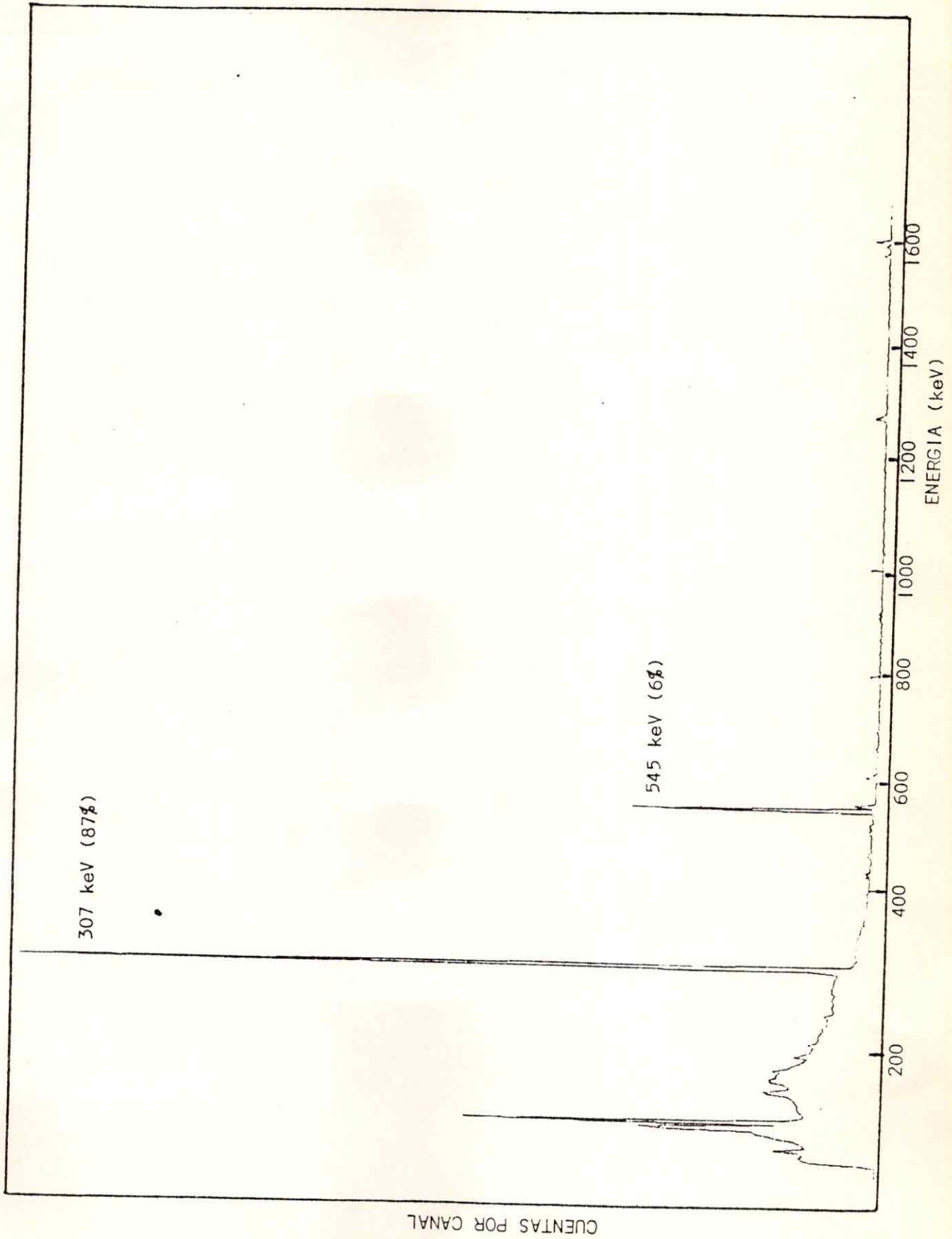
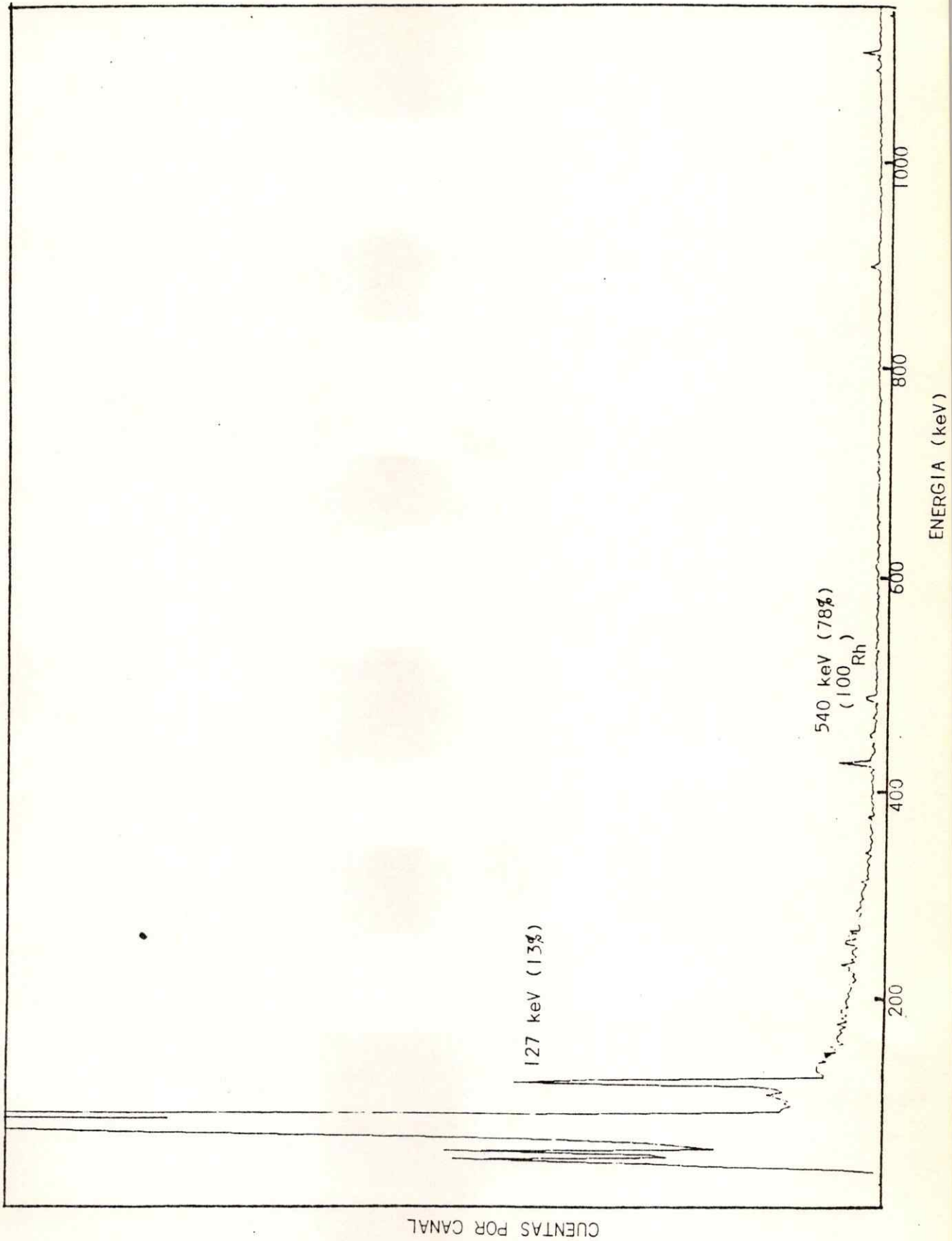
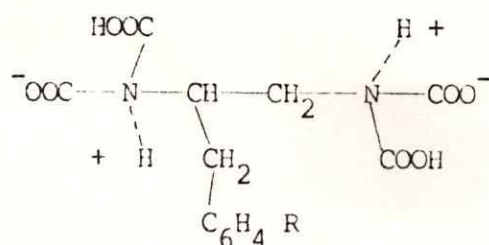


Figura 40.. ¹⁰⁰Pd



Uso de los Nuclidos Producidos para Marcación de Moléculas. (Resultados preliminares)

Las actividades de ^{97}Ru , ^{100}Pd y $^{101\text{m}}\text{Rh}$, en solución de H_2O (desionizada) y con pH ajustado, por acetato de sodio, entre 4 y 5; se hacen reaccionar con BEDTA (Benzil, Ethylene Diamine Tetraacetic Acid) cuya estructura es:



$\text{R} = \text{NH}_2, \text{N}_2^+, \text{NHCOCH}_2\text{Br}, \text{NHCO}(\text{CH}_2)_{16}\text{CH}_3, \text{OCH}_2\text{COOH}$

Figura 41 Estructura de BEDTA

La marcación de BEDTA fue efectuada con 100 lamdas de cada actividad por separado, y aproximadamente 50 microgramos de BEDTA. La solución de reacción fue transferida a ampollas de vidrio y selladas a la llama.

Cada una de las mezclas de reacción fueron colocadas en autoclave en orden a incorporar los radionuclidos producidos en la molécula de BEDTA. La temperatura fue fijada a 100°C . Luego de 60 min las muestras fueron retiradas y el primer control de calidad fue realizado en cromatografía de papel. El cromatograma fue desarrollado empleando como solvente una mezcla de alcohol isopropílico, NH_3 (conc.) y H_2O ; en la proporción 4 : 3 : 3. El desarrollo del

radiocromatograma, para una distancia de 10 cm entre el frente del solvente y el origen, se demora 120 min (veanse Figuras 43, 48 y 53).

Las mezclas de reacción fueron transferidas a otras ampollas de vidrio. Nuevamente selladas y mantenidas en autoclave, a 100 °C por 120 minutos. Completando así 3 h en autoclave. Al finalizar este lapso, un nuevo control de calidad es efectuado en cromatografía de papel (veanse Figuras 44, 49 y 54).

Una vez más los radionuclidos son cambiados de ampolla, selladas y mantenidos en autoclave por 180 minutos, a la misma temperatura. Se completa así un total de 6 horas en autoclave. Nuevos radiocromatogramas fueron realizados. (veanse Figuras 45, 50 y 55).

Finalmente, la mezcla de reacción fue mantenida en autoclave por otra hora extra, con lo que se completó un total de 7 horas. Radiocromatogramas fueron hechos para dicho tiempo (veanse Figuras 46, 51 y 56).

Cada uno de los radiocromatogramas realizados para cada radionuclido y sus correspondientes tiempos en autoclave, fueron confrontados entre ellos y con un cromatograma control realizado para todos y cada uno de los radionuclidos puros. Este radiocromatograma control fue realizado en cromatografía de papel, empleando el mismo solvente (veanse Figuras 42, 47 y 52). La Tabla 45 resume los resultados.

Análisis de fluorescencia demostraron que el compuesto BEDTA no permanece en el origen del radiocromatograma, desplazándose con un R_f distinto de 1.0.

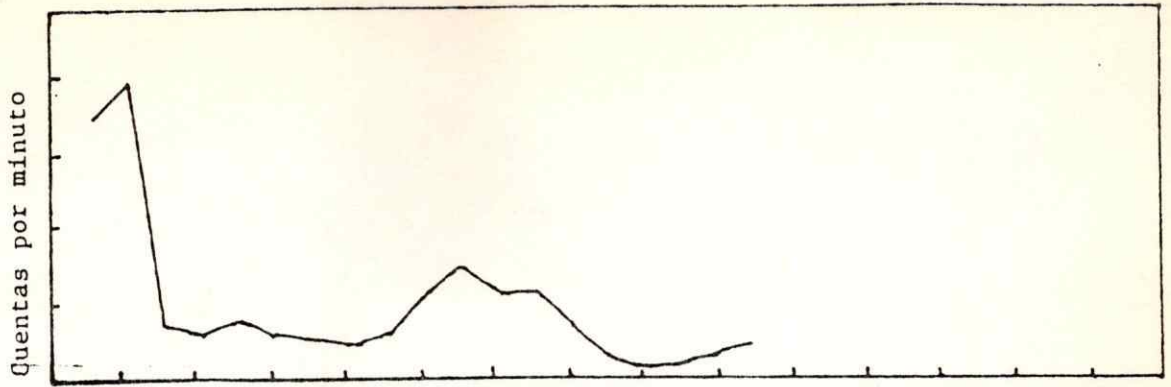


Figura 42. Radiocromatograma para ^{97}Ru a pH 4-5 cm

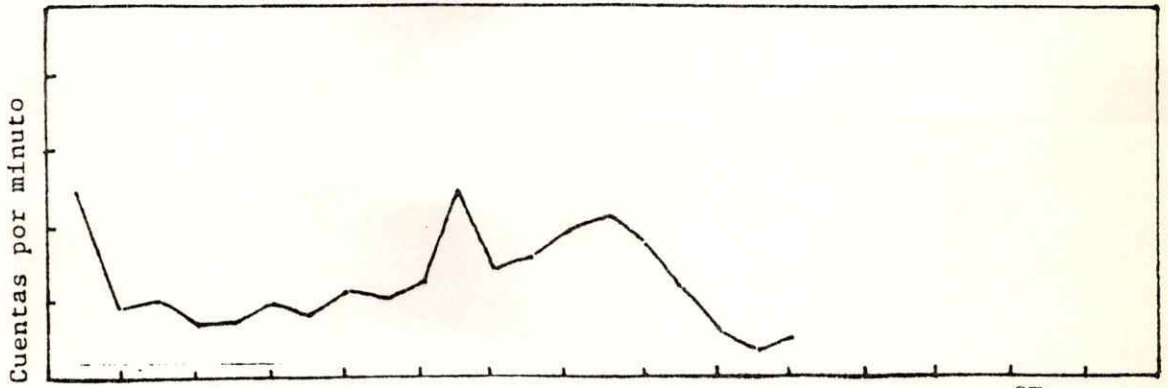


Figura 43. Radiocromatograma ^{97}Ru -BEDTA a 1 h autoclave cm

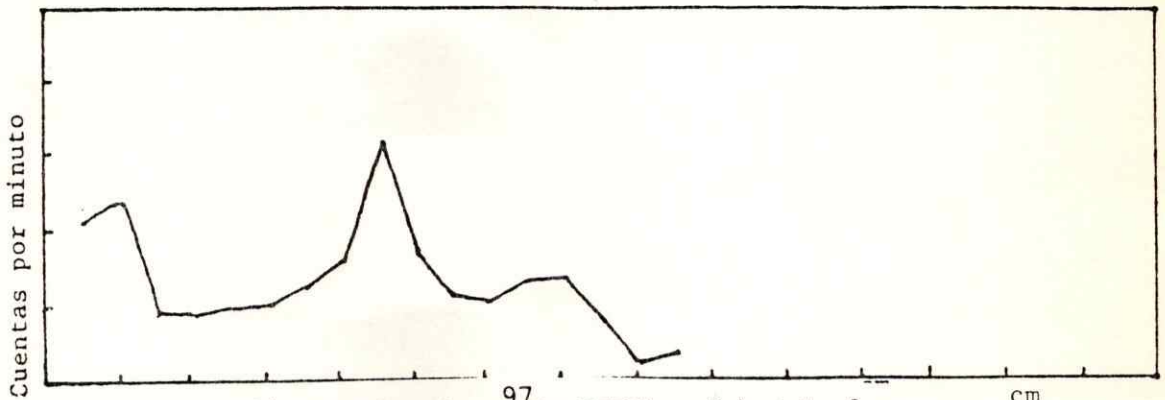


Figura 44. Radiocromatograma ^{97}Ru -BEDTA a 3 h autoclave cm

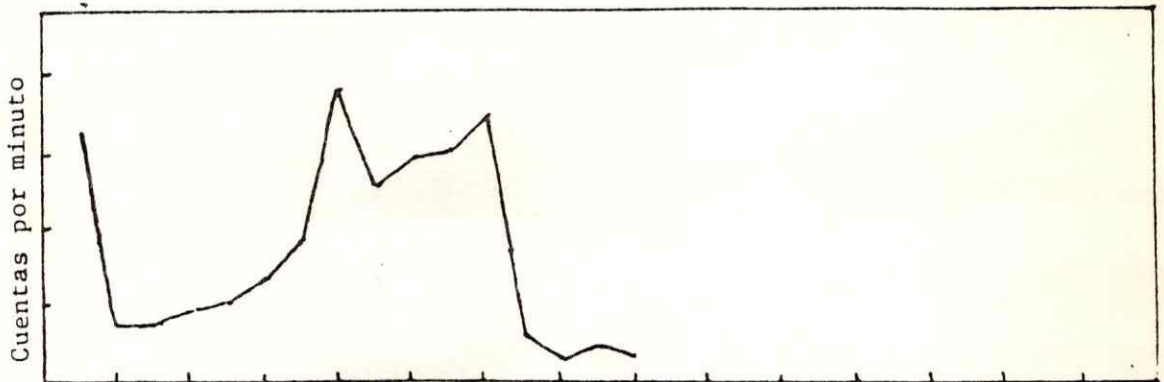


Figura 45. Radiocromatograma ^{97}Ru -BEDTA a 6 h autoclave cm

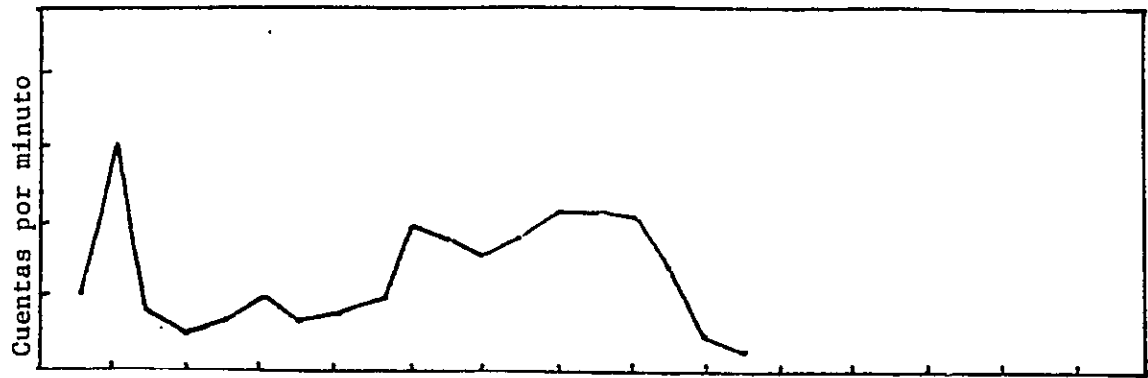


Figura 46, Radiocromatograma ^{97}Ru -BEDTA a 7 h autoclave cm

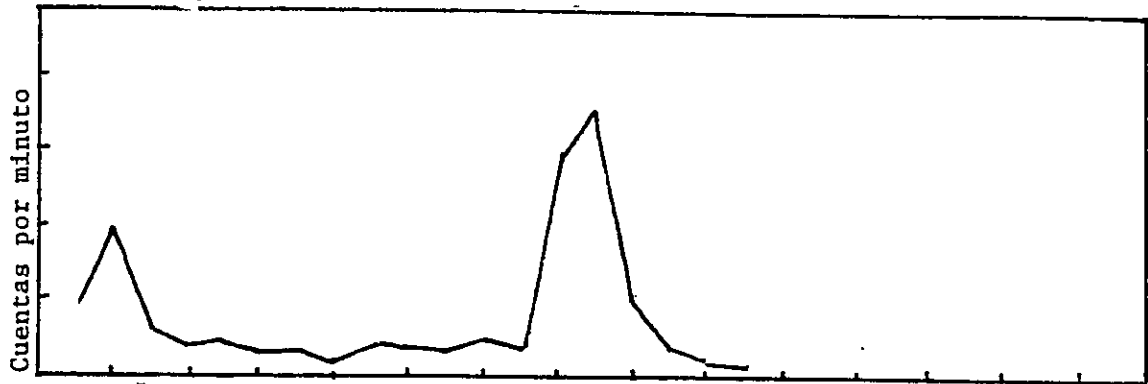


Figura 47, Radiocromatograma ^{100}Pd a pH 4-5 cm

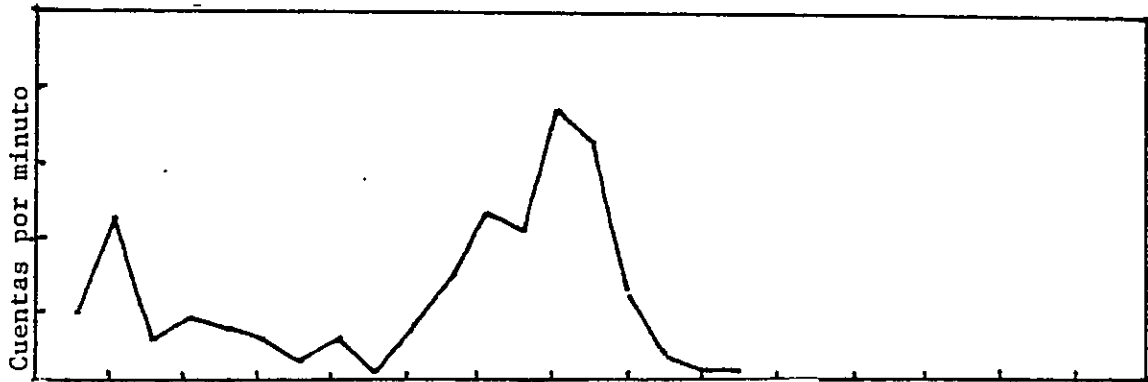


Figura 48, Radiocromatograma ^{100}Pd -BEDTA a 1 h autoclave cm



Figura 49, Radiocromatograma ^{100}Pd -BEDTA a 3 h autoclave cm

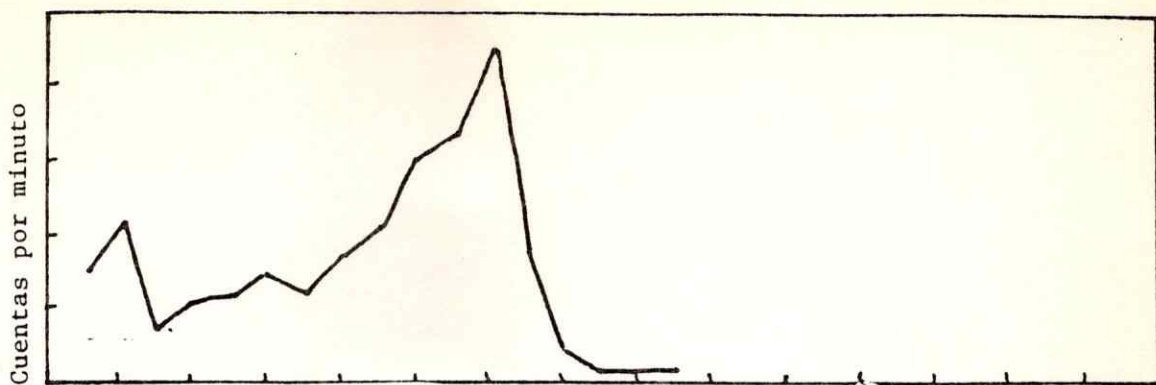


Figura 50. Radiocromatograma ^{100}Pd -BEDTA a 6 h autoclave

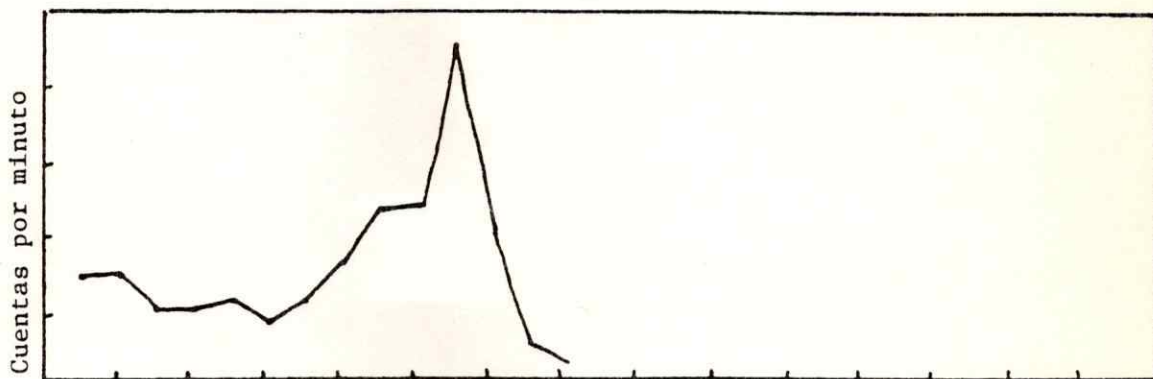


Figura 51. Radiocromatograma ^{100}Pd -BEDTA a 7 h autoclave

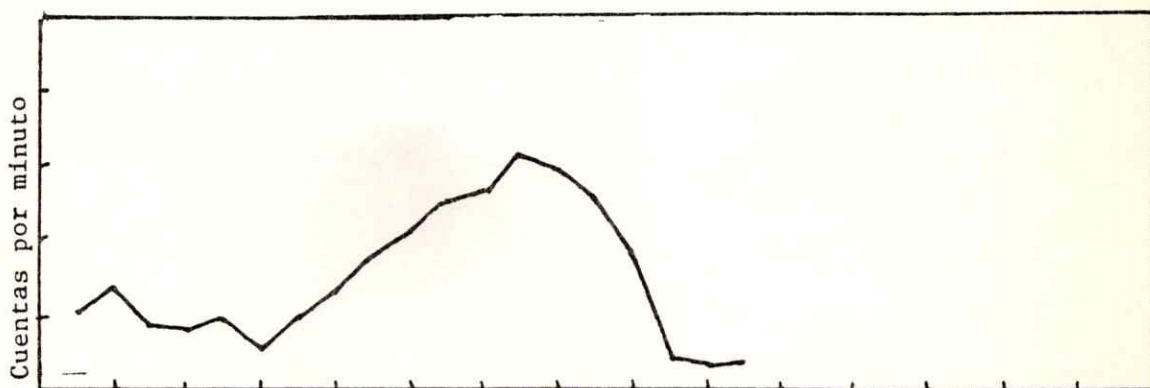


Figura 52. Radiocromatograma ^{101m}Rh a pH 4-5

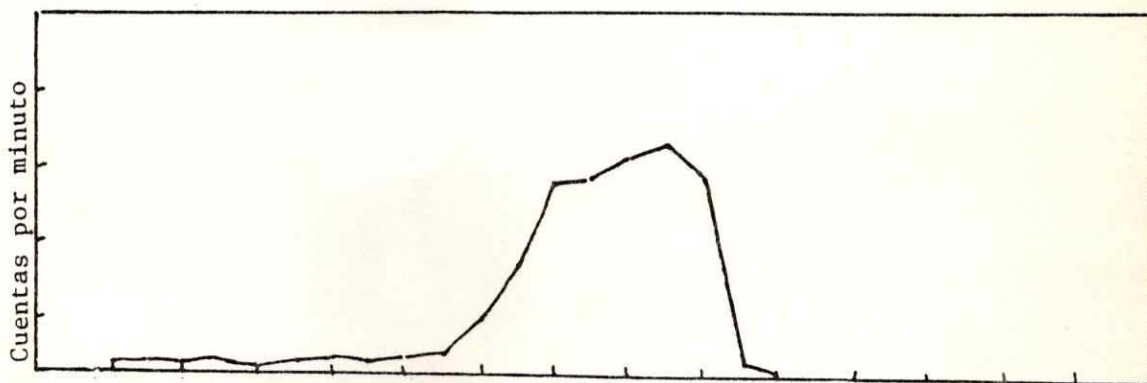


Figura 53. Radiocromatograma ^{101m}Rh -BEDTA a 1 h autoclave

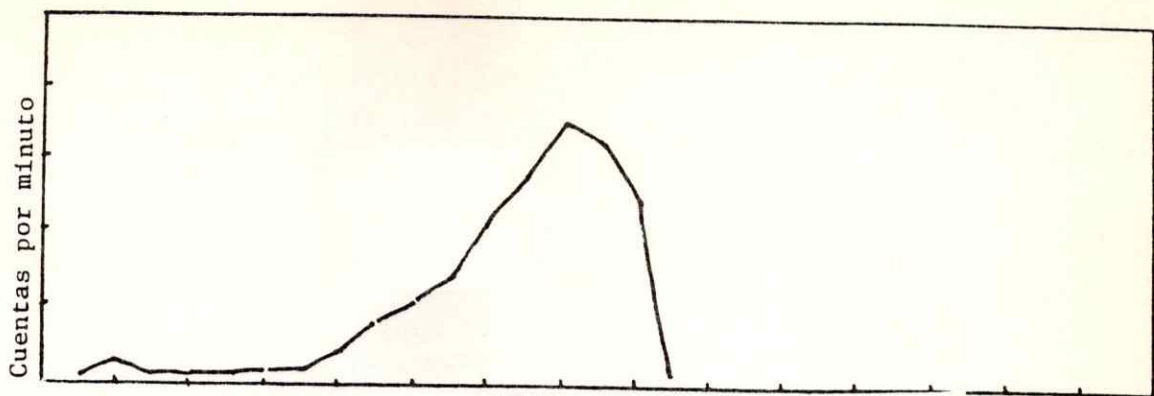


Figura 54, Radiocromatograma $^{101m}\text{Rh-BEDTA}$ a 3 h autoclave cm

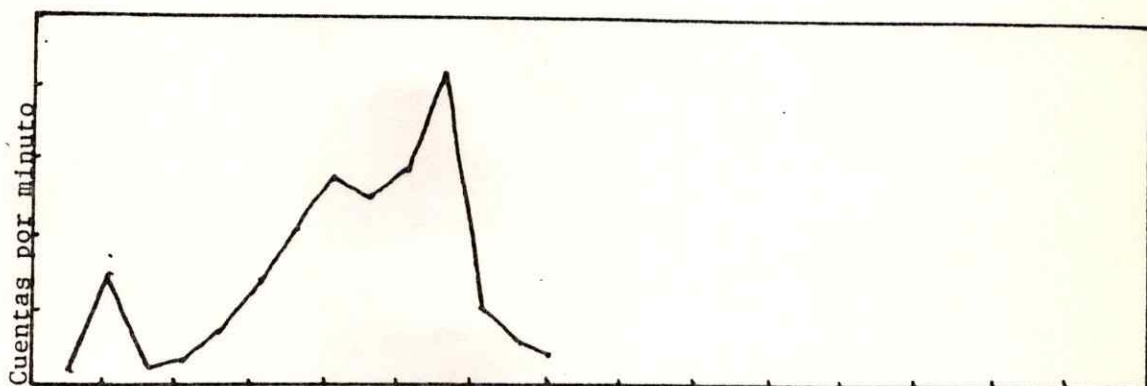


Figura 55, Radiocromatograma $^{101m}\text{Rh-BEDTA}$ a 6 h autoclave cm

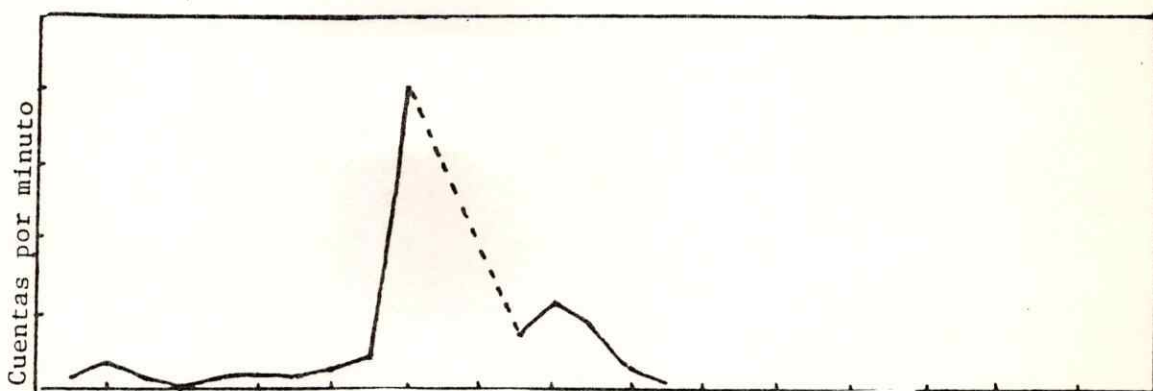


Figura 56, Radiocromatograma $^{101m}\text{Rh-BEDTA}$ a 7 h autoclave cm

Tabla 45 Resultados preliminares para la marcación de BEDTA.

Isótopo	Control #	Tiempo de autoclave (min)	Valor de R_f	Porcentaje de marcación
^{97}Ru	0	0,0	0,55	-----
^{97}Ru	1	60,0	0,68 ^a	86
^{97}Ru	2	180,0	0,50	83
^{97}Ru	3	360,0	0,52 ^a	85
^{97}Ru	4	420,0	0,63 ^a	79
^{100}Pd	0	0,0	0,80	-----
^{100}Pd	1	60,0	0,68	86
^{100}Pd	2	180,0	0,76	85
^{100}Pd	3	360,0	0,71	85
^{100}Pd	4	420,0	0,84	87
^{101m}Rh	0	0,0	0,65	-----
^{101m}Rh	1	60,0	0,83	
^{101m}Rh	2	180,0	0,84	
^{101m}Rh	3	360,0	0,79	
^{101m}Rh	4	420,0	----- ^b	

^a se consideró un promedio entre los picos obtenidos

^b falló teletipo

Los espectros obtenidos se presentan a continuación. Es claro de ellos que en el caso de ^{101}mRh no parece haberse logrado una marcación. Es posible que con un solvente diferente del empleado se logre separar a los picos de ^{101}mRh y $^{101}\text{mRh-BEDTA}$, si algún porcentaje de marcación se produjese.

Por el contrario ^{97}Ru parece responder algo mejor a este solvente mostrando que parte de la actividad se encuentra presente como $^{97}\text{Ru-BEDTA}$. Un valor de marcación de 80% debiera reflejar objetivamente los resultados. Al igual que en el caso anterior deben ensayarse diferentes solventes para la radiocromatografía

En el caso de ^{100}Pd los resultados no son alentadores, los porcentajes reportados corresponden a un solo pico, véase los valores de R_f .

Los resultados obtenidos están limitados por la forma en como el solvente desarrolla los radiocromatogramas. No se consigue resolver los picos de ^{100}Pd y $^{100}\text{Pd-BEDTA}$, como tampoco a ^{101}mRh de $^{101}\text{mRh-BEDTA}$.

Mayor investigación debe ser realizada para obtener resultados cuantitativos que permitan conocer la pureza química en que se encuentran las actividades producidas. Si consideramos como significativos estos primeros ensayos para el caso de ^{97}Ru , debemos reconocer entonces que un tiempo de autoclave, para la mezcla de reacción de entre 1,5 y 2,0 horas sería suficiente para un rendimiento de alrededor del 85%

VIII.- CONCLUSIONES

Un método para producir ^{97}Ru , ^{100}Pd y $^{101\text{m}}\text{Rh}$ libre de portadores (no-carrier-added) ha sido desarrollado. Rendimientos de 1,0 mCi/uAh para ^{97}Ru son posibles con haces de protones de 58 MeV o menores. Mayores rendimientos son posibles (1,36 mCi/uAh) con haces de protones de 67 MeV, pero es necesario separar las actividades de ^{95}Tc , $^{95\text{m}}\text{Tc}$ y ^{96}Tc que son producidas y se comportan químicamente en forma similar a ^{97}Ru .

En el caso de $^{101\text{m}}\text{Rh}$ el rendimiento obtenido para una irradiación con haces de protones de 67.5 MeV es de 5,72 mCi/uAh (a 32,7 h del final de la irradiación) del cual 4,73 mCi/uAh (83,1%) proviene del decaimiento de ^{101}Pd .

El rendimiento de ^{100}Pd para el mismo rango de energía es de 4,37 mCi/uAh

Experimentos efectuados con blancos delgados para cuantificar el rendimiento práctico que es posible obtener, indican que con una energía del haz de protones de 45 MeV se recuperan $8,5 \cdot 10^{-3}$ mCi/uAh de ^{97}Ru , lo que corresponde a un 85% del rendimiento teórico (véase Figura 38). En el caso de $^{101\text{m}}\text{Rh}$, la energía del haz de protones fue de 36 MeV, el rendimiento obtenido es de 0,11 mCi/uAh siendo un 74% del rendimiento teórico (figura 39). Finalmente, para ^{100}Pd los estudios fueron efectuados con protones de 40 MeV, el rendimiento recuperado fue de 0,20 mCi/uAh lo que significa un 91% del rendimiento teórico (véase Figura 40).

Con estos radionuclidos se han iniciados los estudios para la marcación de la especie química BEDTA (Benzyl, Ethylenediaminetetraacetic acid). Mar-

car dicha molécula es considerada la etapa previa para la marcación de anticuerpos. En efecto, dada la estabilidad que poseen estos elementos en solución, se hace necesario incorporarlos a una especie química más activa químicamente. La incorporación de la molécula BEDTA como agente bifuncional permitirá marcar anticuerpos con ^{97}Ru , ^{100}Pd y $^{101\text{m}}\text{Rh}$.

Promisorios resultados han sido obtenidos para el caso de ^{97}Ru , pero nuevos estudios son necesarios, y están en progreso, para determinar las condiciones óptimas bajo las cuales la marcación de una estructura química como BEDTA sea altamente eficiente.

IX. Referencias

- 1.- W. A. Collier y F. Kraus; Z. Krebsforsch 34, 526 (1931)
- 2.- B. Rosemberg y L. Van Camp; Nature (London) 222, 385 (1969)
- 3.- E. Rosemberg y L. Van Camp; Cancer Res. 30, 1799 (1970)
- 4.- E. Mayhew, E. M. Froe y A. Sulman; Brit. Empire Cancer
Campaign, 4th Annu. Rep., Part II (1962)
- 5.- B. Rosemberg, L. Van Camp y W. Krigas; Nature (London) 205, 698 (1965)
- 6.- T. Giraldi, G. Sava, G. Bertoli, G. Mestroni y G. Zassinovich;
Cancer Res. 37, 2662 (1977)
- 7.- M. C. Lagunas-Solar, S. R. Wilkins. y D. J. Paulson. J. Rad. Anal. Chem.
68,1-2 ,245 (1982)
- 8.- K. L. Scholz, V. J. Sodd y J. W. Blue. Int. J. App. Rad. Isotopes 28,
207 (1977)
- 9.- M. Linder e I. Perlman. Phys. Rev. 73 (10) 1202 (48)
- 10.- J. S. Evans, E. Kashy, R. A. Naumann y R. F. Petry. Phys. Rev. 138, 39
(1965)
- 11.- G. Subramanian y J. G. McAfee. J. Nucl. Med. 11, 365 (1970) (Abstrac)
- 12.- D. Comar y C. Crouzel. Radiochem. Radioanal. Letters 27, 5-6, 307 (1976)

- 13.- D. J. Silvester, F. Helus y W. Maier-Borst. Proc. Second Int. Symp. on Radiopharmaceutical Chemistry (Abst.-22), Oxford England (1978)
- 14.- G. Comparetto y S. M. Qaim. Radiochemica Acta 27, 177 (1980)
- 15.- T. H. Ku, P. Richards, S. C. Srivastava, T. Prach y L. G. Stang. Proc. Second Int. Congress of the World Federation of Nuclear Medicine and Biology. Washington D. C. (1978) (Abstract).
- 16.- S. C. Srivastava, P. Som, G. Meinkein, A. Sewatkar and T. H. Ku Proc. Second Int. Congress of the world Federation of Nuclear Medicine and Biology. Washington D. C. (1978) (Abstract).
- 17.- S. I. Ginzburg, N. A. Ezerskaya, I. V. Prokof'eva, N. F. Fedorenko, V. I. Shlenskaya. Analytical Chemistry of Platinum Metals. John Wiley & Sons. Israel Program for Scientific Translation.
- 18.- W. Scott. Standard Method of Chemical Analysis 1, 742 (1939)
- 19.- S. R. Wilkins, S. T. Shimpse, H. H. Hines, J. A. Jungerman, F. Hegedus and G. L. DeNardo. Int. J. App. Rad. Isotop. 26, 279 (1975).
- 20.- M. C. Lagunas-Solar, J. A. Jungerman, N. F. Peeks and R. M. Theus Int. J. App. Rad. Isotop. 29, 159 (1978)
- 21.- Cotton F. A, and Wilkinson G. "Advanced Inorganic Chemistry". 3rd Edition. Interscience Pub. N.Y. (1972) p. 1025