

CÁLCULO DE ATIVIDADES E PERSPECTIVAS DE PRODUÇÃO DO IODO-131 E IRÍDIO-192 IRRADIADOS NO REATOR IEA-R1

Mitsuo Yamaguchi, Graciete Simões de Andrade e Silva, Adimir dos Santos e Adolfo Marra Neto

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, CNEN
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
05422-970, São Paulo, Brasil

RESUMO

Atualmente o uso de radioisótopos na medicina e na indústria é cada vez crescente. Neste trabalho são apresentados cálculos de atividades do iodo-131 e do irídio-192 e comparados com valores experimentais. É feita também uma perspectiva de produção desses radioisótopos no reator IEA-R1 a 5 MW. A metodologia de cálculo se baseia no sistema acoplado NJOY/AMPX-II para montagem de bibliotecas de dados nucleares e nos programas HAMMER-TECHNION para geração de seções de choque em 4 grupos de energia e CITATION para cálculo dos fluxos de nêutrons.

Palavras-chave: radioisótopo, radiofármaco, atividade, irradiação de materiais.

I. INTRODUÇÃO

A demanda de radioisótopos para uso na medicina nuclear e na indústria no país é cada vez mais crescente. Hoje o Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) é responsável pelo fornecimento de radioisótopos para clínicas e centros de medicina nuclear, atendendo a aproximadamente um milhão de pacientes por ano no diagnóstico e terapia de diversas enfermidades.

Alguns radioisótopos, como o samário-153 (^{153}Sm), vêm sendo produzidos no reator IEA-R1 operando a 2 MW num regime contínuo de 64 horas semanais. Outros são importados, tais como o molibdênio-99 (^{99}Mo), o mais importante radiofármaco utilizado no diagnóstico de enfermidades. A demanda atual deste radioisótopo, importado do Canadá, é de 6290 GBq (170 Ci) por semana. O IPEN produz os geradores de tecnécio-99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$) a partir do ^{99}Mo e distribui às clínicas e hospitais. O processo de produção no IPEN deste radioisótopo via captura no ^{98}Mo irradiado sob a forma de óxido de molibdênio (MoO_3) natural está em fase de testes. Uma perspectiva de produção deste radioisótopo já foi feita [1] e efetivamente deverá se iniciar em 2001 a 5 MW.

Os processos de produção de outros dois radioisótopos no IPEN, o iodo-131 (^{131}I) e o irídio-192 (^{192}Ir) também estão em fase de testes. Atualmente o iodo-131 é totalmente importado e é utilizado na medicina nuclear para diagnóstico e terapia da tireóide, entre outras aplicações. A utilização do irídio-192 é industrial para realização de gamagrafias.

Este trabalho tem por objetivo calcular e comparar as atividades de amostras desses radioisótopos e apresentar também uma perspectiva de produção no reator IEA-R1 a 5

MW com operação contínua de 64 e 120 horas por semana em algumas posições de irradiação no núcleo.

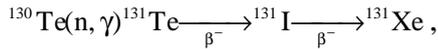
A metodologia de cálculo se baseia no sistema acoplado NJOY/AMPX-II para obtenção de dados nucleares a partir da biblioteca básica ENDF/B-VI em 55 grupos rápidos e 30 térmicos; esses dados são incorporados às bibliotecas do programa HAMMER-TECHNION, que os condensa em 3 grupos rápidos e 1 térmico. O cálculo do núcleo para obtenção dos fluxos de nêutrons é feito com o programa CITATION, que utiliza as seções de choque em 4 grupos de energia.

II. IODO-131

O IPEN fornece a centros de medicina nuclear as seguintes substâncias contendo o iodo-131:

- iodeto de sódio em solução de NaOH para diagnóstico e terapia da tireóide com atividade de 111 a 3700 MBq/ml;
- I-131 – HIPURAN para diagnóstico de função renal com atividade de 37 MBq/ml;
- I-131 – MIBG (metaiodobenzilguanidina) para diagnósticos de feocromocitoma e neuroblastoma (tumores da glândula adrenal) e terapia com atividade de 182 MBq/ml;
- I-131 – RISA (soro albumina humana) para determinação de volumes de plasma e sangue e estudos circulatórios com atividade de 37 MBq/ml.

No reator IEA-R1, o iodo-131 será obtido irradiando óxido de telúrio (TeO_2) e no processo será produzido o iodeto de sódio. Através da seguinte reação é obtido o iodo-131:



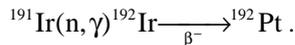
onde a meia vida do telúrio-131 é de 25 minutos e do iodo-131 é de 8,02 dias. O telúrio natural (Te-nat) é composto de 8 isótopos, onde a abundância do telúrio-130 é de 33,8 % (Tabela 1).

TABELA 1. Abundância dos Isótopos do Telúrio

Isótopo	Abundância (%)
¹²⁰ Te	0,096
¹²² Te	2,60
¹²³ Te	0,908
¹²⁴ Te	4,816
¹²⁵ Te	7,14
¹²⁶ Te	18,95
¹²⁸ Te	31,69
¹³⁰ Te	33,80

III. IRÍDIO-192

O irídio-192 como radioisótopo é utilizado na indústria para realização de gamagrafias. O irídio natural (Ir-nat) é metálico e é irradiado na forma de pequenos discos de 4 mm de diâmetro e espessura de 0,35 mm. Atualmente são importados com atividade de até 13 Ci. O ¹⁹²Ir (T_{1/2} = 74 dias) é obtido através da reação:



O irídio na forma natural é composto de 2 isótopos, onde a abundância do ¹⁹¹Ir é de 37,3 % (Tabela 2).

TABELA 2. Abundância dos Isótopos do Irídio

Isótopo	Abundância (%)
¹⁹¹ Ir	37,3
¹⁹³ Ir	62,7

IV. DESCRIÇÃO DO REATOR IEA-R1

O reator IEA-R1, localizado nas dependências do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) em São Paulo, é um reator de pesquisas do tipo piscina destinado à produção de radioisótopos para uso na medicina e indústria, testes de materiais e combustíveis nucleares, irradiação de amostras com nêutrons, realização de pesquisas fundamentais em diversas áreas tais como física, radioquímica, radiobiologia, análise por ativação, auxílio à formação de recursos humanos a nível de pós-

graduação e treinamento de pessoal especializado para operação de reatores.

A configuração atual do núcleo do reator (Fig. 1) consiste de um arranjo de 24 elementos combustíveis tipo MTR (LEU, enriquecido a 20 %), sendo 20 padrão, constituídos de 18 placas de combustível e 4 de controle com 12 placas de combustível e refletores de grafita, além dos dispositivos de irradiação. Todos os elementos combustíveis são de fabricação IPEN, sendo 3 com densidade de 1,9 gU/cm³ (U₃O₈-Al), 16 com densidade de 2,3 gU/cm³ (U₃O₈-Al, em negrito na Fig. 1) e 5 com densidade de 3,0 gU/cm³ (U₃Si₂-Al, em negrito e itálico na Fig. 1). A espessura do cerne é de 0,76 mm, do revestimento 0,38 mm e a do canal refrigerante 2,89 mm. As barras de controle são do tipo garfo com espessura de 3,1 mm, constituídas de uma liga de Ag-In-Cd (80-15-5 % em peso) e são introduzidas entre duas placas de alumínio do elemento de controle. O elemento de irradiação de berílio (conhecido como EIBE), localizado no centro do núcleo, se destina à produção de ⁹⁹Mo via captura no ⁹⁸Mo a potência de 5 MW.

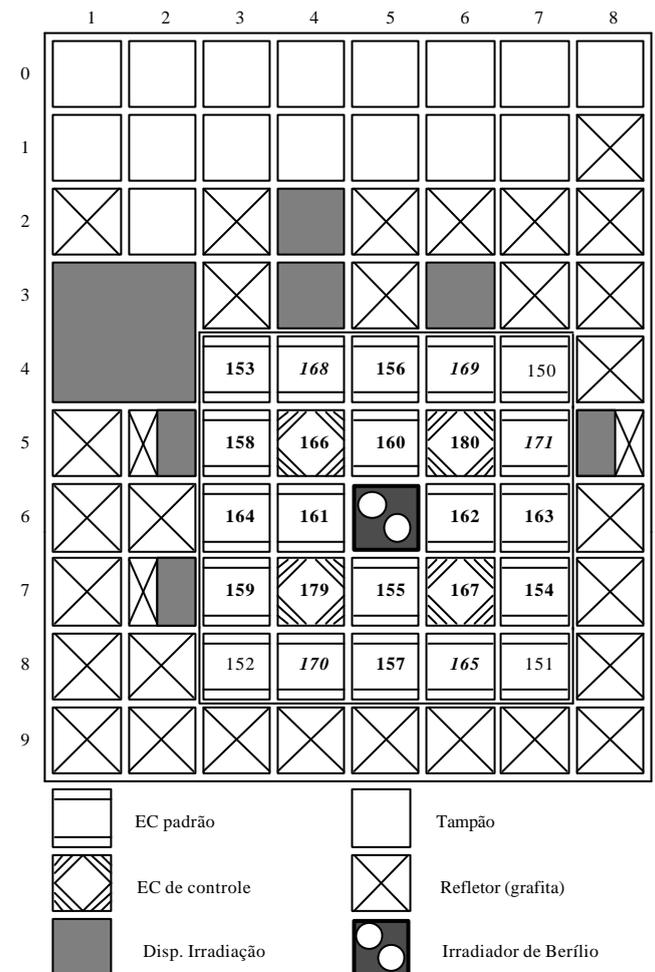


Figura 1. Seção Transversal do Núcleo do Reator IEA-R1.

V. METODOLOGIA DE CÁLCULO

A metodologia de cálculo da atividade dos radioisótopos utilizada na Divisão de Física de Reatores do IPEN se baseia nos programas HAMMER-TECHNION [2] para geração seções de choque e CITATION [3] para cálculo dos fluxos de nêutrons.

Os dados nucleares contidos nas bibliotecas do programa HAMMER-TECHNION são processados com o sistema NJOY [4], o qual acessa a biblioteca básica de dados nucleares ENDF/B-VI [5], produzindo bibliotecas de seções de choque em multigrupos (55 grupos epitérmicos e 30 grupos térmicos). Os parâmetros de multigrupo provenientes do NJOY são transformados na biblioteca MASTER do sistema AMPX-II utilizando o programa AMPXR (efetua a interface NJOY-AMPX-II) [6].

As bibliotecas térmica e epitérmica utilizadas pelo HAMMER-TECHNION são formatadas, respectivamente, com os módulos NITATH e NITAEP, os quais são versões modificadas do módulo NITAWL do AMPX-II. Essas seções de choque são condensadas em 4 grupos de energia com o programa HAMMER-TECHNION conforme a estrutura mostrada na Tabela 3. Nesta tabela estão mostradas também as seções de choque microscópicas de captura condensadas do telúrio-130 e irídio-191 nesta estrutura.

TABELA 3. Seções de Choque do Telúrio-130 e Irídio-191

Grupo Energia	Limite Superior de Energia (eV)	σ_c (barns)	
		¹³⁰ Te	¹⁹¹ Ir
1	10×10^6	0,003584	0,1208
2	$0,825 \times 10^6$	0,01356	0,8791
3	$5,53 \times 10^3$	0,02693	60,98
4	0,625	0,2319	564,8

VI. EXPERIMENTO DE IRRADIAÇÃO DE AMOSTRAS A 2 MW

Com o intuito de se obter uma perspectiva de produção do ¹³¹I e ¹⁹²Ir, algumas amostras de óxido de telúrio e de irídio metálico foram irradiadas a 2 MW com a configuração atual do núcleo (Fig. 1).

O irradiador de berílio, localizado no centro do núcleo, se destina quase que exclusivamente à produção de ⁹⁹Mo, cujo processo ainda está em fase de testes. A utilização do berílio se deve aos seguintes fatos:

- a seção de choque (n,γ) do ⁹⁸Mo possui ressonâncias entre 10 eV e 10 keV, faixa de maior seção de choque efetiva (grupo 3 conforme a estrutura mostrada na Tabela 3). Por isso, para maximizar a atividade do ⁹⁹Mo, o espectro energético não deve ser tão térmico como na água;

- o berílio é um excelente espalhador de nêutrons, pois o seu peso atômico é relativamente baixo (igual a 9,0122), mas maior do que o hidrogênio e, portanto, seu espectro

energético é mais duro do que o da água; além disso, é um material altamente denso, cuja concentração atômica é igual a $1,236 \times 10^{23}$ átomos/barn.cm; e

- possui baixa seção de choque de absorção e reações (n,2n) e (γ,n), fazendo com que aumente o fator de multiplicação efetivo em relação à água.

As amostras a serem irradiadas são colocadas dentro dos “coelhos”, que são cilindros de alumínio de 7 cm de altura e 2,2 cm de diâmetro externo e espessura de 0,1 cm. Os “coelhos”, por sua vez, são colocados em dispositivos de irradiação de alumínio e estes introduzidos nos canais do irradiador de berílio (EIBE), nos elementos de irradiação de grafite (EIGRA), localizados nas posições 52, 72 e 58 na Fig. 1 (o primeiro dígito é a linha e o segundo a coluna conforme a numeração à esquerda e em cima na Fig. 1) e nos elementos de irradiação refrigerados a água (EIRA), localizados nas posições 24, 34 e 36. No EIBE e nos EIRA's, utiliza-se o mesmo dispositivo de irradiação que contém 8 prateleiras; cada “coelho” ocupa uma prateleira, que é posicionado verticalmente em seu interior. Nos EIGRA's, o dispositivo de irradiação contém 24 prateleiras com um “coelho”, que se posiciona horizontalmente.

Uma amostra de TeO₂ com 13,97 g colocada dentro de um “coelho” foi posicionada na prateleira 4 do EIBE (numeração de cima para baixo) e outra com 13,45 g na prateleira 14 (posição de maior fluxo axialmente) do EIGRA de posição 52 e irradiadas durante 64 horas a 2 MW.

Três discos de irídio com massa de 98,6 mg colocados dentro de um “coelho” posicionado na prateleira 5 do EIBE e outros três na prateleira 14 do EIGRA de posição 72 foram irradiados durante 4 horas a 2 MW.

Para o cálculo das atividades do ¹³¹I e ¹⁹²Ir, as seções de choque das amostras foram geradas em 4 grupos de energia com o programa HAMMER-TECHNION. Os fluxos de nêutrons nas posições das amostras foram calculadas com o programa CITATION em geometria tri-dimensional. A atividade do ¹³¹I ou ¹⁹²Ir é dada por (a Tabela 4 mostra alguns dados necessários para o cálculo):

$$A = \frac{Rf}{3,7 \times 10^{10} \rho} [Ci/gTe] \text{ ou } [Ci/gIr], \quad (1)$$

onde:

$$R = N \sum \sigma \phi ;$$

$$f = 1 - e^{-\lambda t} ;$$

N - concentração do ¹³⁰Te ou ¹⁹¹Ir;

σ - seção de choque microscópica de captura do ¹³⁰Te ou ¹⁹¹Ir (Tabela 3);

φ - fluxo de nêutrons;

λ - constante de decaimento do ¹³¹I ou ¹⁹²Ir;

t - tempo de irradiação; e

ρ - densidade do Te-nat ou Ir-nat.

TABELA 4. Dados do Telúrio e Irídio

. Densidade do TeO ₂	5,67 g/cm ³
. Densidade do Te-nat	4,53 g/cm ³
. Densidade do Ir-nat	22,4 g/cm ³

. Concentração do ^{130}Te	$7,0933 \times 10^{-3}$ át./barn.cm
. Concentração do ^{191}Ir	$2,6178 \times 10^{-2}$ át./barn.cm

A Tabela 5 mostra as atividades do ^{131}I e ^{192}Ir medidas e calculadas no instante da parada do reator. As atividades medidas do ^{192}Ir são valores médios dos três discos colocados dentro do “coelho”. Os valores calculados das atividades das amostras irradiadas no EIGRA apresentam erros mais significativos. A teoria de difusão, utilizada pelo programa CITATION, tende a aumentar o erro nos fluxos de nêutrons a medida que se distancia do centro do núcleo ativo. Também as amostras de irídio apresentam erros maiores do que as amostras de TeO_2 . O minúsculo volume ocupado pelos discos de irídio dificultam sobremaneira sua modelagem.

TABELA 5. Atividades das Amostras de TeO_2 e Irídio

Amostra	Atividade (mCi)		Erro (%)
	Medida	Calculada	
TeO_2 (EIBE)	775,7	809,6	4,4
TeO_2 (EIGRA)	483,3	563,1	16,5
Ir (EIBE)	66,9	78,2	16,9
Ir (EIGRA)	43,2	54,0	25,0

VII. PERSPECTIVAS DE PRODUÇÃO DE ^{131}I E ^{192}Ir A 5 MW

A operação do reator IEA-R1 a potência de 5 MW somente se justifica para produção do ^{99}Mo , cujo processo está previsto para o início de 2001. Durante os 6 primeiros meses, o regime de operação será de 64 horas contínuas semanais, passando a seguir para 120 horas. As prateleiras 4, 5 e 6 dos dois canais do EIBE, por apresentarem maiores fluxos de nêutrons, se destinam à produção do ^{99}Mo , já que este radioisótopo é o de maior valor comercial.

A seguir é feita uma perspectiva de produção de ^{131}I e ^{192}Ir a 5 MW irradiados em outras posições baseando-se nos valores experimentais. A Tabela 6 mostra os valores de atividades do ^{131}I irradiados na prateleira 3 do EIBE e na prateleira 14 durante 64 e 120 horas contínuas a 5 MW no instante da parada do reator. Os dois canais do EIBE apresentam praticamente os mesmos valores de fluxos de nêutrons, assim como os três EIGRA's, já que os elementos combustíveis estão distribuídos no núcleo de uma maneira bastante homogênea.

Os valores do EIBE na Tabela 6 são calculados, mas foi levado em conta o mesmo erro do valor calculado na prateleira 4 apresentado na Tabela 5. No EIGRA, pode-se tomar diretamente o valor experimental da Tabela 5, dividir pela massa do Te-nat e multiplicar por 2,5 para obter a atividade específica a 5 MW. Para 120 horas, multiplica-se

ainda por 1,7. Este fator é a razão entre os fatores f da Eq. (1) com tempo de irradiação de 120 horas ($f = 0,35088$) e de 64 horas ($f = 0,20584$). Cada “coelho” comporta no máximo 50 g de TeO_2 ou 40 g de Te-nat. Multiplicando-se a atividade específica pela massa do TeO_2 , obtém-se a atividade total. A escolha de uma das duas posições analisadas é indiferente, pois as atividades são praticamente idênticas. A demanda esperada de ^{131}I é de 12 Ci por semana, de modo que dois “coelhos” são suficientes para atender as necessidades do mercado.

É preciso lembrar que existe um intervalo de tempo entre a parada do reator e a calibração (medição da atividade quando da entrega do radioisótopo para o usuário). A operação do reator no regime de 64 horas iniciar-se-á às 8 horas de segunda-feira e terminará às 24 horas de quarta-feira. O material irradiado será entregue na quinta-feira de manhã para o processo. A calibração geralmente é feita às 8 horas de segunda-feira, tendo, portanto, um intervalo de 104 horas. No regime de 120 horas, não há previsão de mudança de horário para a entrega do material irradiado, tendo, portanto, o mesmo intervalo de 104 horas. O fator a ser multiplicado devido ao decaimento radioativo neste intervalo é de 0,68762. Deve-se levar em conta ainda que o processo de produção do ^{131}I pode ter perdas. O rendimento somente será quantificado quando o processo estiver pronto.

TABELA 6. Atividades Específicas e Totais de ^{131}I

Posição	Atividade			
	Espec. (mCi/gTe)		Total (Ci/“coelho”)	
	64 h	120 h	64 h	120 h
EIBE	89,5	152,5	3,58	6,10
EIGRA	89,7	152,6	3,60	6,11

A Tabela 7 mostra as atividades por disco de irídio com 98,6 mg irradiados nas mesmas posições e condições do TeO_2 (prateleira 3 do EIBE e prateleira 14 do EIGRA a 5 MW durante 64 e 120 horas). Igualmente, no EIBE foi levado em conta o mesmo erro do valor calculado na prateleira 5 apresentado na Tabela 5. No EIGRA, o valor experimental da tabela foi multiplicado por 15,8 (relação entre os fatores f) e por 2,5 para obter a atividade a 5 MW durante 64 horas de irradiação. Para 120 horas, multiplica-se ainda por 1,85. Entre as duas posições, no EIGRA obtém-se atividade do ^{192}Ir maior, porque o espectro energético do ^{191}Ir é bem térmico.

Como a meia-vida do ^{192}Ir é longa (74 dias), pode-se irradiar o isótopo por várias semanas para se obter atividades maiores. Em um “coelho” pode-se colocar vários discos formando uma pilha para aproveitamento melhor do fluxo de nêutrons. Porém, não convém carregar muito o “coelho”, pois o ^{192}Ir é um grande absorvedor de nêutrons e um volume grande do material deteriora o fluxo incidente.

TABELA 7. Atividades de um Disco de ^{192}Ir

Posição	Atividade (Ci/disco)	
	64 h	120 h
EIBE	1,53	2,83
EIGRA	1,71	3,17

ABSTRACT

Nowadays, radioisotope demand in nuclear medicine and industries are more and more higher. In this work it is shown the activity calculation of iodine-131 and iridium-192 and the comparison with experimental values. A production perspective of these radioisotopes has been made with the reactor operating at 5 MW. The calculational methodology is based on the NJOY/AMPX-II coupled system to produce the nuclear data libraries and on the HAMMER-TECHNION program to generate the broad cross sections. The neutron fluxes in the sample positions were determined by CITATION code with four energy groups.

VIII. CONCLUSÃO

As atividades das amostras de TeO_2 apresentaram boa concordância com valores experimentais quando calculadas no EIBE, que se localiza na região central do núcleo do reator. No EIGRA, que se localiza no refletor, o erro tende a aumentar em função da utilização da teoria de difusão no cálculo. A dificuldade de uma boa modelagem das amostras também contribui para aumentar o erro, como é o caso dos minúsculos discos de irídio.

O cálculo das atividades do ^{131}I e ^{192}Ir irradiados em duas posições do núcleo mostra que é possível atender a demanda desses radioisótopos quando o reator operar a potência de 5 MW.

REFERÊNCIAS

- [1] Yamaguchi, M.; Mendonça, A. G.; Santos, A.; Osso Jr., J. A., **Perspectiva de Produção de ^{99}Mo Via Captura Radioativa no ^{98}Mo Utilizando o Reator IEA-R1 a 5 MW e Operando Continuamente 5 Dias por Semana**, Anais do XI ENFIR/IV ENAN, Poços de Caldas, MG, Agosto 1997.
- [2] Barhen, J.; Rhotenstein, W. and Taviv, E., **The HAMMER Code System Technion**, Israel Institute of Technology, Haifa, Israel, NP-565, 1978.
- [3] Fowler, T. B.; Vondy, D. R. and Cunningham, G. W., **Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION**, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-TM-2496, Rev. 2, July 1971.
- [4] MacFarlane, R. E., Muir, D. W. and Boicurt, R. M., **NJOY 91.38 - A Code System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross Section from ENDF/B Evaluated Nuclear Data**, Oak Ridge National Laboratory, PSR-171, 1992.
- [5] Lemmel, H. D., **ENDF/B-VI, the U.S. Evaluated Nuclear Data Library for Neutron Reaction Data**, IAEA-NDS-100, June 1990.
- [6] Ferreira, C. R., Santos, A., **Análise de Criticalidade Utilizando os Sistemas NJOY, AMPX-II e KENO-IV**, Anais do VII ENFIR, Recife, PE, Abril 1989.