

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
NO. 1	AÑO 1976

07.76.07

CNEA-NT 16/76

REPUBLICA ARGENTINA
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

DIRECCION DE OPERACIONES
GERENCIA DE RADIOISOTOPOS Y RADIACIONES

OBTENCION DE FUENTES DE IRIDIO-192

Osvaldo A. Curzio

BUENOS AIRES
Julio 1976

OBTENCION DE FUENTES DE IRIDIO-192

Osvaldo A. Curzio*

RESUMEN

Se realiza un analisis teórico de los parámetros a tener en cuenta en la irradiación de iridio para la obtención de fuentes de Ir-192 de alta actividad específica.

SUMMARY

The theoretical parameters to be considered for the irradiation of iridium to obtain high specific activity Ir-192 sources are studied.

* Becario de la C.N.E.A.

Dirección permanente: Universidad Nacional del Sur
BAHIA BLANCA

I.- INTRODUCCION

La obtención de fuentes de Ir-192 de alta actividad específica, mediante la irradiación neutrónica de iridio, presenta problemas que limitan los valores máximos de actividad que se pueden lograr.

La alta sección eficaz de absorción del Ir-192 hace que adquiera importancia la desaparición de núcleos blanco cuando se realizan irradiaciones prolongadas en flujos neutrónicos del orden 10^{13} neutrones/seg. cm^2 . Además en estas circunstancias se suma la desaparición de núcleos activos por segunda reacción nuclear y por decaimiento. Todos estos factores son tenidos en cuenta en la ecuación de activación que se plantea para el cálculo de la actividad específica. Además los valores así determinados se deben corregir en el caso de realizarse una irradiación intermitente.

Por otra parte los fenómenos de depresión de flujo y autoapantallamiento, hacen que la activación de la muestra sea notablemente menor que la estimada considerando un flujo no perturbado por la presencia del absorbente.

En el presente estudio se lleva a cabo un análisis teórico de las cuestiones antes señaladas a fin de disponer de la información necesaria para efectuar una estimación de la actividad específica real del Ir-192, cuando se realiza la irradiación de muestras extensas en un reactor.

II.- ECUACION DE ACTIVACION

La ecuación general para el cálculo teórico de la actividad específica que se obtendría cuando mediante una reacción (n, γ) el elemento X da el núcleo activo Y, es:

$$A_Y = \frac{0,6 \sigma_X \phi \theta \lambda_Y}{3,7 \cdot 10^{10} M (\lambda_Y + \sigma_Y \phi - \sigma_X \phi)} (e^{-\sigma_X \phi t} - e^{-(\lambda_Y + \sigma_Y \phi) t}) \quad (I)$$

Donde A_Y : actividad específica de Y (Ci/g)
 λ_Y : constante de desintegración de Y (1/seg)
 σ_X : sección eficaz de absorción de X (cm^2)
 ϕ : flujo neutrónico (n/seg. cm^2)
 θ : abundancia isotópica de X
 M : masa atómica de X (g)
 σ_Y : sección eficaz de absorción de Y (cm^2)
 t : tiempo de irradiación (seg)

Esta ecuación general tiene en cuenta los tres factores que limitan el valor máximo de la actividad específica que son:

- a) Consumo de material blanco ($e^{-\sigma_X \phi t}$)
- b) Desaparición de núcleos activos por desintegración ($e^{-\lambda_Y t}$)
- c) Desaparición de núcleos activos por segunda reacción nuclear ($e^{-\sigma_Y \phi t}$)

En el caso particular de la obtención de fuentes de alta actividad específica de Ir-192 todos estos factores influyen, haciendo que el máximo de actividad obtenible se alcance más rápidamente. En la Figura 1 se muestran las curvas correspondientes al cálculo de la actividad específica que se puede lograr con un flujo de 10^{13} n/seg. cm^2 en los siguientes casos:

- a) En que se aplica una ecuación simplificada, en la cual se considera que solo hay desaparición de núcleos activos por decaimiento, sin desaparición de núcleos blanco y de núcleos activos por segunda reacción nuclear. (Figura 1-a)

$$A_Y = \frac{0,6 \sigma_X \phi \theta}{3,7 \cdot 10^{10} M} (1 - e^{-\lambda_Y t})$$

- b) En que se considera que hay consumo de blanco y desaparición de núcleos activos por decaimiento, sin segunda reacción nuclear apreciable. (Figura 1-b).

$$A_Y = \frac{0,6 \sigma_X \phi \theta \lambda_Y}{3,7 \cdot 10^{10} M (\lambda_Y - \sigma_X \phi)} (e^{-\sigma_X \phi t} - e^{-\lambda_Y t})$$

c) En que se considere la aplicación de la ecuación general (I). (Figura 1-c).

Como se podrá apreciar la actividad específica de máxima estimada teóricamente mediante la ecuación general es un 27% menor que la calculada para el caso (a) en que se considera que influye solamente el decaimiento. Además la misma se alcanza en, prácticamente, la mitad del tiempo de irradiación, respecto al calculado por la ecuación simplificada. La disminución del valor máximo de actividad específica que se puede alcanzar, se debe principalmente a la disminución de núcleos blanco (20%) y la desaparición de núcleos activos por segunda reacción nuclear (7%).

Los cálculos anteriores se realizaron para los siguientes valores de secciones eficaces de absorción de neutrones térmicos:

$$\sigma_{\text{Ir-191}} = 940 \text{ barns} \quad (1)$$

$$\sigma_{\text{Ir-192}} = 1100 \text{ barns} \quad (2)$$

III.- ACTIVACION MEDIANTE IRRADIACION INTERMITENTE

El cálculo de la actividad específica estimada por la ecuación anterior se basa en la irradiación continua de la muestra, durante el lapso de tiempo considerado. Pero generalmente la obtención de fuentes radiactivas se lleva a cabo en reactores de investigación, los cuales no funcionan en forma continua, por lo cual el material blanco está sometido a períodos de irradiación y enfriamiento. Esto hace que la actividad específica lograda difiera de la estimada para una irradiación continua, especialmente en aquellos casos, como el de Ir-192, en que las muestras permanecen en el reactor durante tiempos que superan el período de desintegración del nucleído activo. Se ha propuesto un método de cálculo gráfico para determinar la actividad específica a obtener en estas circunstancias. (3).

Para aplicar el método mencionado se calculó la relación A/A_s . Los valores de actividad específica (A) se obtuvieron mediante la ecuación general de activación para distintos tiempos de irradiación y enfriamiento. La actividad específica obtenida por irradiación a saturación (A_s) se calculó mediante:

$$A_S = \frac{0,6 \sigma \phi \theta}{3,7 \cdot 10^{10} M}$$

Con los datos así obtenidos, resumidos en la Tabla I, para distintos tiempos y $A_S = 295 \text{ Ci/g}$, se traza la curva de crecimiento normalizada, para el caso de un flujo de $10^{13} \text{ n/seg. cm}^2$.

TABLA I

t	A	A/A _S
días	Ci/g	
10	26,6	0,09
30	71	0,24
100	180	0,61
200	250	0,85
300	280	0,95
500	294	0,99
1000	295	1,00

Para el caso de $A_S = 215 \text{ Ci/g}$, obtenida mediante la ecuación general de activación, y considerando que un período del reactor comprende 20 días de irradiación por 10 días de enfriamiento, se obtuvieron los valores de la Tabla II, mediante el método gráfico mencionado.

TABLA II

Períodos del reactor	A/A _S	A (Ci/g)
1	0,2	43
2	0,25	54
3	0,33	71
4	0,40	86
5	0,44	95
6	0,49	106
7	0,53	114
8	0,55	118
9	0,57	123
10	0,59	127
11	0,61	132

En la Figura 2 se representan los valores anteriores. De los mismos se deduce que no se justifica una permanencia de la muestra en el reactor superior a los 300 días (10 períodos) ya que prácticamente la relación A/A_S se mantiene

constante por encima de esos valores. Para ese lapso de tiempo se lograría una actividad específica de aproximadamente 130 Ci/g. Es decir que la máxima actividad específica a obtener se reduce en un 40% respecto a la que se lograría en el caso de tratarse de una irradiación continua, para iguales tiempos y flujos neutrónicos.

En base a estas consideraciones se puede estimar más ajustadamente la actividad total (A_t) a desarrollar en muestras cilíndricas de iridio de distintos tamaños. En la Tabla III se resumen los valores para $A = 130$ Ci/g y $t = 10$ periodos del reactor.

TABLA III

Diámetro por altura	masa	A_t
mm . mm	g.	Ci
1 x 1	18×10^{-3}	2,35
2 x 2	140×10^{-3}	18
3 x 3	475×10^{-3}	62

IV.- DEPRESION DE FLUJO Y AUTOAPANTALLAMIENTO

La anterior estimación teórica de la actividad específica que puede alcanzarse en una muestra de iridio, se hace considerando que la misma se somete a un flujo neutrónico no perturbado. Es conocido el hecho de que todo absorbente introducido en un campo de neutrones produce una perturbación del mismo, originándose una depresión de flujo en sus vecindades. Por otra parte las capas exteriores del material blanco producen un efecto de pantalla sobre las más internas. La combinación de estos dos factores, computados a través del denominado factor de perturbación total (F), hacen que la actividad específica realmente obtenida en la muestra sea inferior a la calculada en base al valor del flujo neutrónico existente en ausencia del absorbente. El factor de perturbación total se define como:

$$F = \phi / \phi_0$$

ϕ : flujo efectivo medio en la muestra

ϕ_0 : flujo en ausencia del absorbente

Para el caso particular de la activación de muestras de iridio, dada la elevada sección eficaz de absorción

que presenta el Ir-191, es importante determinar el factor F a efectos de calcular más aproximadamente la actividad específica real que se puede obtener en determinadas condiciones de irradiación. Alternativamente el valor F puede utilizarse para establecer cual debe ser el valor del flujo neutrónico en el reactor para disponer de determinado flujo medio efectivo en la muestra.

Tratándose de muestras en forma de cilindros finitos, el factor F se puede estimar según Gilat y Gurfinkel (4), mediante la siguiente expresión:

$$F = \frac{r \cdot F_L + h \cdot F_C}{r + h}$$

Siendo:

F_L : factor de perturbación para lámina infinita
 F_C : factor de perturbación para cilindro infinito
 r : radio del cilindro finito
 h : altura del cilindro finito

Los factores F_L y F_C se obtienen en función del parámetro ξ definido como:

$$\xi = \frac{2V}{S} N \sigma$$

V : volumen de la muestra
 S : superficie de la muestra
 N : número de núcleos por unidad de volumen
 σ : sección eficaz de absorción para neutrones térmicos

Para valores de $\xi > 1,5$ el factor de perturbación total es independiente de la forma geométrica y se puede estimar mediante la aproximación de Nisle, siendo:

$$F = \frac{1 - e^{-2\xi}}{2\xi}$$

Para $\xi > 2$ la fórmula anterior se reduce a:

$$F = 1 / 2\xi$$

De esta manera se obtienen los valores resumidos en la Tabla IV, para cilindros de iridio de distintas dimensiones.

TABLA IV

Diámetro por altura	ξ	F
mm . mm		
1 x 1	1,24	0,35
2 x 2	2,46	0,20
3 x 3	3,67	0,14

Es decir que para lograr, por ejemplo, actividades de Ir-192 del orden de las representadas en la Figura 1, calculadas para un flujo efectivo medio (ϕ) de 10^{13} n/seg.cm², los flujos neutrónicos reales (ϕ_0) en el reactor deben tener los siguientes valores, para distintos tamaños de muestras cilíndricas (Tabla V)

TABLA V

Diámetro por altura	F	$\phi_0 = \phi/F$
mm . mm		n/seg.cm ²
1 x 1	0,35	$2,85 \times 10^{13}$
2 x 2	0,20	5×10^{13}
3 x 3	0,14	$7,2 \times 10^{13}$

V.- CONCLUSIONES

El presente estudio teórico permite arribar a las siguientes conclusiones, aplicables a la estimación de la actividad que se puede lograr en la irradiación neutrónica de muestras extensas de iridio, con el fin de obtener fuentes de Ir-192 de alta actividad específica, lo que implica tiempos de irradiación prolongados.

a) Debe tenerse en cuenta la desaparición o quemado

de núcleos blancos, dada la elevada sección eficaz de absorción del Ir-191 (140 barns). Asimismo es apreciable la influencia de la desaparición o quemado de núcleos activos por segunda reacción nuclear, ya que la sección eficaz de absorción del Ir-192 es de 1100 barns. Estos dos fenómenos hacen que la actividad específica a desarrollar sea un 27% menor que la estimada sin considerar el efecto de los mismos.

b) En el caso de llevarse a cabo una activación mediante irradiación intermitente, es necesario tener en cuenta esta circunstancia, dado que el tiempo de permanencia de la muestra en el reactor supera en varias veces el periodo de semidesintegración del Ir-192. De esta manera se obtienen actividades específicas bastante menores que las estimadas para una irradiación continua llevada a cabo durante igual tiempo.

c) La depresión de flujo y el autoapantallamiento producidos en una muestra real de iridio, hacen que el flujo efectivo en la misma, sea notablemente menor que el existente en su ausencia. Esto es debido a la alta sección eficaz de absorción del Ir-191 y se traduce en una menor actividad específica a obtener. Por esta razón es necesario estimar el factor de perturbación total, para conocer más aproximadamente la actividad que se puede desarrollar o el valor del flujo real en el reactor para lograr un determinado flujo efectivo en la muestra.

d) La considerable desaparición de núcleos de iridio en la irradiación de pequeños cilindros durante tiempos prolongados, restringen las posibilidades de reactivación de las fuentes decaídas. Se ha estimado que para un flujo no perturbado de 10^{13} n/seg.cm² se puede lograr una reactivación de hasta un 80% de la actividad original en un cilindro de 1 mm x 1 mm. En cilindros de 2 mm x 2 mm se alcanza hasta un 90% de este valor.

REFERENCIAS

- 1.- Holden, N.E. - "Tabla de Nucleidos".
- 2.- Weast, R.C. (Editor) - "Handbook of Chemistry and Physics"
Edición 51 (1970-71).
- 3.- Flegenhimer, J. y Yizkah, M. - "Actividades de Radio-
isótopos Producidos por Irradiaciones Intermitentes"
CNEA N° 62 (1962).
- 4.- Gilat, J. y Gurfinkel, Y. - "Self-Shielding Effects in
Activation Analysis" - Nucleonics, 21, 8, 143 (1963).

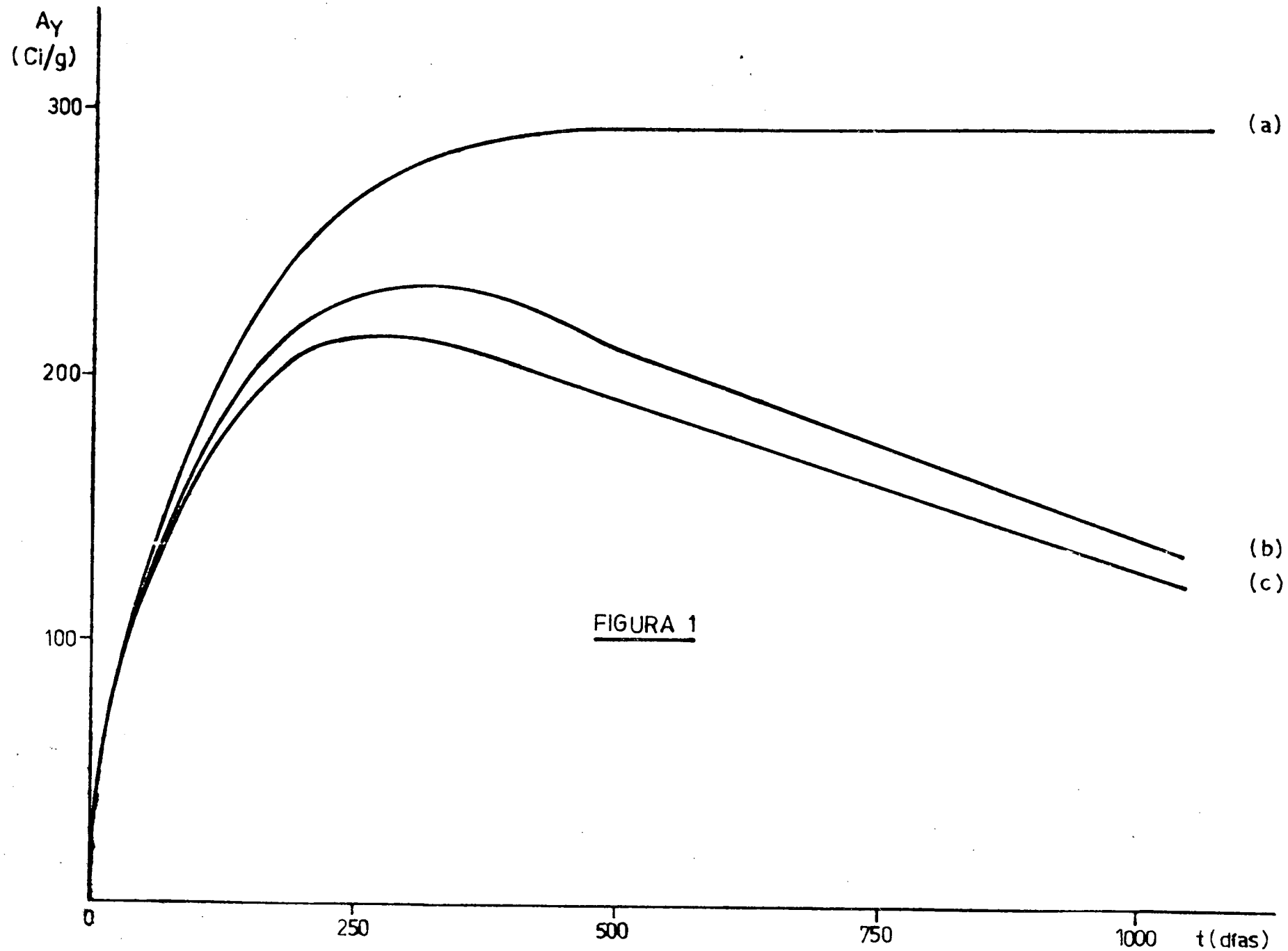


FIGURA 1

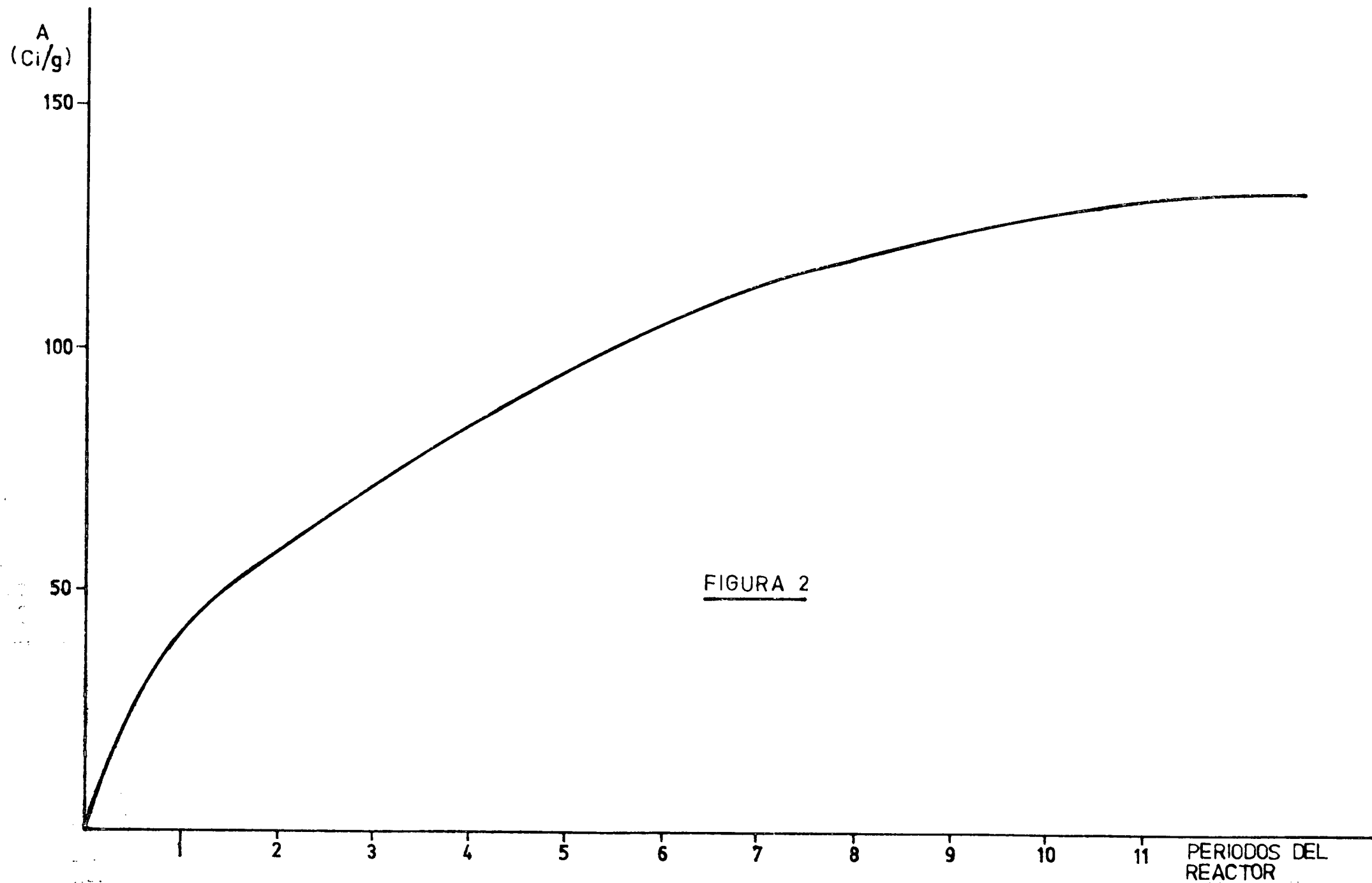


FIGURA 2