

“Análisis de la capacidad de producción de radionucleidos en el reactor RA10”

**CARRERA: ESPECIALIZACIÓN EN REACTORES NUCLEARES
Y SU CICLO DE COMBUSTIBLE**

Alumno: Ing. Lan, Luis Eugenio
Director: Ing. Romero, Luis
Co-director: Ing. Bazzana, Santiago

Octubre 2017



UNSAM
UNIVERSIDAD
NACIONAL DE
SAN MARTÍN

Índice

Índice	2
Resumen	3
1. Introducción	4
1.1 Radionucleidos	4
1.2 Ecuación de balance neutrónico	9
1.3 Producción de Radionucleidos	10
1.4 Objetivos	11
1.5 Códigos y bibliotecas utilizados	11
1.6 Reactor RA-10	13
1.7 Radionucleidos analizados en el presente trabajo	18
2. Verificación del uso de la línea de cálculo	24
2.1 Comparación con cálculos de ingeniería básica del RA-10	24
2.2 Impacto de las simplificaciones realizadas	28
3. Análisis de producción de radionucleidos seleccionados ...	31
3.1 Análisis de la producción de ^{188}W en ORI	30
3.2 Análisis de la producción de ^{225}Ac en ORI	32
3.3. Análisis de producción de radionucleidos las posiciones internas del reactor RA-10	36
4. Conclusiones	41
5. Referencias Bibliográficas	43
Anexos	45
Anexo 1: Entrada de COUPLE y ORIGEN-S	45

Resumen

Desde el 2010 la CNEA lleva adelante el proyecto de diseño del reactor multipropósito RA-10, uno de principales objetivos es la producción de radionucleidos de uso medicinal. Para tal fin, el reactor contará con dispositivos de irradiación para la producción de ^{99}Mo , ^{192}Ir y ^{177}Lu . También contará con otras cuatro posiciones para la producción de otros radionucleidos (ORI). Las posiciones destinadas a la producción de ^{99}Mo , ^{192}Ir y ^{177}Lu han sido analizadas detalladamente en las fases de ingeniería básica y de detalle del proyecto. No obstante el análisis realizado sobre las posiciones de ORI, se centró en cálculos de flujo y potencia depositada en los elementos estructurales correspondientes, relegando el estudio de capacidad de producción para etapas posteriores.

El objetivo de este trabajo se centró en analizar cuál es la capacidad de producción del ^{188}W y del ^{225}Ac en el reactor RA-10, principalmente en las posiciones de irradiación correspondientes a ORI y en las posiciones de irradiación internas al núcleo.

La selección de los radionucleidos a analizar se realizó luego de un estudio bibliográfico y con el asesoramiento de la División de Radioquímica Básica y Datos Nucleares perteneciente al Departamento de Investigación y Desarrollo en Radiofarmacia del Centro Atómico Ezeiza de la CNEA. Se tuvieron en cuenta las características del reactor tales como el espectro neutrónico en las diferentes posiciones de irradiación o los ciclos de operación del reactor, así también como características fisicoquímicas y radioquímicas de los radionucleidos generados, como por ejemplo usos de los mismos en la medicina nuclear, capacidad de ser generadores de otros radionucleido de interés o versatilidad de manipulación fisicoquímica.

Los cálculos se realizaron utilizando el código ORIGEN-S, un código que permite obtener productos de activación neutrónica y términos de fuente radiante (espectro de neutrones y fotones) a partir de la irradiación de materiales que pueden estar compuestos por una mezcla de distintos elementos e isótopos.

Para la validación del método de cálculo se simuló la activación de diferentes elementos bajo el flujo de las posiciones ORI y las posiciones de Ir medicinal/Lu y fueron comparadas con cálculos realizados en la ingeniería básica del proyecto RA-10.

El análisis de producción determinó que el ^{188}W alcanza la saturación de producción al 5to ciclo operación e irradiando 1 g en las posiciones de menor flujo se alcanzaría las actividades de un generador ^{188}W aceptable. Para el caso del ^{225}Ac no se puede generar una óptima relación $^{225}\text{Ac}/^{227}\text{Ac}$ para el uso directo del ^{225}Ac . La simulación de producción en las posiciones internas al núcleo del reactor logró mejores resultados para ambos nucleidos. Sin embargo sigue sin alcanzarse una óptima relación de $^{225}\text{Ac}/^{227}\text{Ac}$.

1. Introducción

En este capítulo se dará una breve introducción para definir qué son y para qué se utilizan los radionucleidos, mencionando qué factores y reacciones están involucrados en su generación. Luego se describirá la ecuación de balance neutrónico el cual es el modelo matemático a resolver para poder calcular la producción de radionucleidos. Se describirá en donde se producen los radionucleidos y se plantearán los objetivos del trabajo. A continuación se describirán los códigos y bibliotecas de datos nucleares que se utilizan para resolver el modelo planteado. Además se dará una breve introducción al reactor RA-10 describiendo qué dispositivos de irradiación contiene el núcleo y el tanque reflector y para qué están destinados. Por último se describirá el proceso de selección de los radionucleidos analizados y se mencionarán e indicarán los usos que tienen los distintos radionucleidos simulados en el trabajo.

1.1 Radionucleidos ^{[1][2]}

Los radionucleidos son elementos con un núcleo atómico inestable que se desintegran liberando energía en exceso en forma de partículas y/o fotones para formar un elemento más estable.

El decaimiento o desintegración radiactiva de un radionucleido es espontáneo y no depende ni del comportamiento de los núcleos vecinos ni de la temperatura, presión u otros parámetros ambientales. Por lo tanto el número de desintegraciones es solamente proporcional a la población N de núcleos radiactivos siendo la constante de decaimiento correspondiente igual a λ , como indica la ecuación 1:

$$\frac{dN(t)}{N} = -\lambda dt \quad (\text{Ec. 1})$$

Donde $N(t)$ es la población de radionucleidos al tiempo t . El signo negativo indica que la población de núcleos radiactivos va disminuyendo con el tiempo debido a la desintegración. Esta expresión constituye la forma diferencial de la ley fundamental del decaimiento radiactivo e indica que la fracción de núcleos que desaparecen por decaimiento en el intervalo dt es proporcional al tiempo transcurrido.

Además se define la velocidad de desintegración o actividad (A), como el número de desintegraciones por unidad de tiempo (ecuación 2)

$$A = \lambda N(t) = -\frac{dN}{dt}(t) \quad (\text{Ec. 2})$$

Integrando la Ecuación 1.2.1 se obtiene la (ecuación 3) conocida como **ley del decaimiento radiactivo** donde N_0 es el número inicial de radionucleidos presentes.

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (\text{Ec. 3})$$

Si se multiplican ambos miembros por λ se obtiene la expresión equivalente (ecuación 4):

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \quad (\text{Ec. 4})$$

Con ellas queda definida la variación temporal de la actividad A y del número N de núcleos radiactivos que hay presentes en función del tiempo.

Los usos de la radiación, de los materiales radiactivos y la disponibilidad de una extensa variedad de radionucleidos artificiales se han extendido desde el descubrimiento y desarrollo de la fisión nuclear. Dentro de las aplicaciones de las fuentes artificiales de radiación se encuentran la medicina, el control en la agricultura y la producción de energía eléctrica, entre otros. En la medicina se aplican en el diagnóstico de enfermedades por imágenes, aplicando una sustancia radiactiva al paciente y mediante un detector se observan las partículas que emiten; en los tratamientos de las células cancerosas, donde por medio de la radiación se destruyen dichas células; y en la esterilización de materiales médicos como jeringas o material quirúrgico. En la industria agroalimentaria se suelen usar fuentes artificiales de radiación para la conservación de alimentos, investigación agrícola y control de plagas. Y en la producción de energía eléctrica se puede utilizar el calor liberado en la fisión del uranio para vaporizar agua, hacer mover turbinas y de esta forma generar energía eléctrica.

1.1.1 Reacciones nucleares en la producción de radionucleidos en reactores ^[2]

Los principales factores que determinan el tipo de reacción nuclear que se producirá y por ende el rango de radionucleidos que se obtienen son:

- La energía de los neutrones y la intensidad de flujo neutrónico.
- Las características del material del blanco a irradiar.
- Las secciones eficaces de activación de las reacciones.

Los neutrones se pueden clasificar según sus energías en los siguientes grupos:

- Neutrones térmicos: son aquellos neutrones que están en equilibrio térmico con las moléculas o átomos del medio. La distribución de energía de este grupo de neutrones se puede representar con una distribución Maxwelliana. Los neutrones tienen una energía más probable de 0,025 eV a la temperatura de 20°C
- Neutrones epitérmicos: son neutrones de energías intermedias normalmente del orden de keV. En los reactores térmicos, el flujo de estos neutrones sigue una distribución proporcional a $1/E$, siendo E la energía del neutrón.
- Neutrones rápidos: son neutrones con altas energías que tienen una distribución de neutrones similares a los neutrones de fisión.

La distribución de neutrones de los tres grupos es diferente en cada posición del reactor. Por ejemplo dentro del núcleo del reactor tendrá un porcentaje mayor de neutrones rápidos respecto a otras posiciones periféricas de irradiación. A su vez existen

diferentes tipos de reactores; en la mayoría las fisiones se producen a partir de neutrones térmicos lo que produce que este sea el flujo predominante. En la figura 1 se muestra el espectro típico de un reactor térmico.

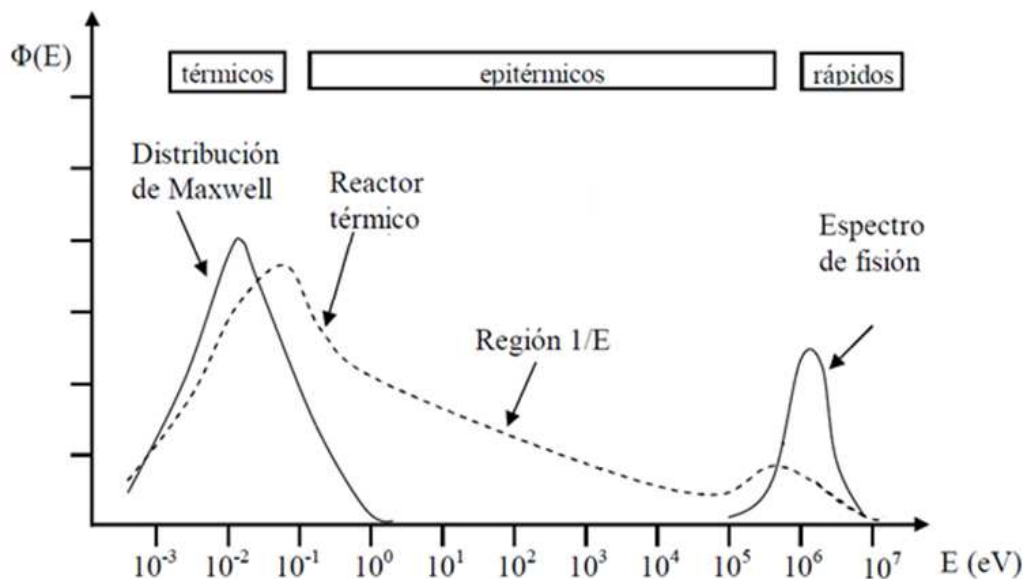


Figura 1: Perfil del espectro neutrónico en reactores nucleares térmicos. [3]

1.1.2 Secciones eficaces

La interacción de un neutrón con un núcleo del material del blanco a irradiar puede expresarse cuantitativamente en términos de sección eficaz, el cual se define como la constante de proporcionalidad que indica, para un determinado nivel de flujo de neutrones, que fracción de los átomos del medio están interactuando por unidad de tiempo. La sección eficaz está asociada a la probabilidad de que la reacción se lleve a cabo. La unidad de la sección eficaz es el barn ($1 \text{ barn equivale a } 10^{-24} \text{ cm}^2$). El valor de la sección eficaz depende de la energía del neutrón, del nucleido con el cual interactúa el neutrón y del tipo de reacción. En general los neutrones con menores energías tienen mayores probabilidades de interactuar con los átomos, por lo tanto los neutrones térmicos tienen los valores máximos de secciones eficaces. En esta región las secciones eficaces son inversamente proporcionales a las velocidades de los neutrones. Pero para núcleos intermedios y pesados, a medida que los neutrones incrementan su energía hacia las regiones epitérmicas las secciones eficaces varían abruptamente con la energía, aparecen picos muy pronunciados denominados resonancias que se corresponden con niveles excitados del núcleo compuesto. Como se puede ver en la figura 2 en las regiones de neutrones con altas energías las secciones eficaces disminuyen considerablemente.

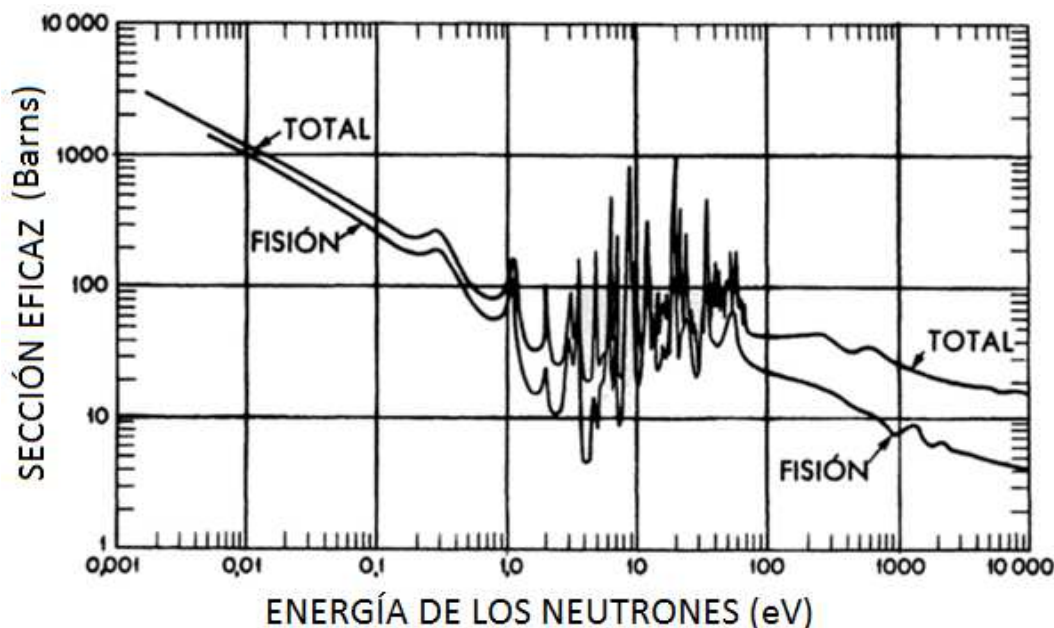


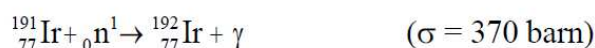
Figura 2: Secciones eficaces total y de fisión del Uranio-235 en función de la energía de los neutrones. ^[4]

1.1.3 Reacciones neutrónicas

Las reacciones que se pueden dar en un reactor nuclear son las siguientes:

Captura neutrónica:

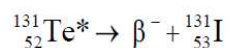
- Reacciones neutrón – gamma, (n,γ): la mayoría de los radionucleidos producidos en reactores son productos de la reacción (n,γ). Esta reacción también es denominada captura radiactiva y es principalmente una reacción que ocurre con neutrones térmicos. Algunas reacciones típicas de captura radiactiva son las siguientes:



En estas reacciones el producto es un isótopo del elemento irradiado por lo que no pueden ser separados químicamente, por lo tanto la actividad específica¹ está limitada al flujo neutrónico disponible en el reactor a menos que se aplique un método de separación radioquímica.

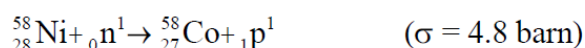
- Reacciones neutrón – gamma → partícula beta negativa, (n,γ) → β⁻: En algunos casos las reacciones (n,γ) producen radionucleidos de muy corta vida los cuales decaen emitiendo una partícula β en diferentes elementos, por ejemplo:

¹La actividad específica es la actividad del radionucleido de interés sobre la masa de todos los isótopos de ese radionucleido. Se detalla en la sección 1.6.



En este caso el producto puede ser separado del blanco irradiado químicamente. Y es posible obtener un radionucleido con alta actividad específica.

- Reacciones neutrón – protón, (n,p): Hay casos en que la absorción neutrónica conlleva a la emisión de un protón. Esta reacción son más comunes con neutrones rápidos ya que tienen un valor umbral de energía para que esta reacción ocurra. Por lo tanto suelen denominarse reacciones umbrales. Ejemplos:



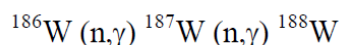
En este caso el radionucleido también puede ser separado químicamente del blanco irradiado obteniendo un producto de alta actividad específica.

- Reacciones neutrón – alfa (n,α): Esta reacción también suele ser una reacción umbral que se produce con neutrones que tienen por lo menos un valor específico de energía y al ser capturados por el núcleo se libera una partícula α. En algunos casos especiales esta reacción se puede producir con neutrones térmicos. Por ejemplo:



Se pueden obtener radionucleidos de alta actividad específica.

- Reacciones de múltiples procesos: hay algunos radionucleidos que se producen mediante múltiples procesos o sucesivas capturas neutrónicas. Por ejemplo:



Fisión:

Las fisiones inducidas por los neutrones térmicos en el Uranio-235 generan varios radionucleidos de interés. Cada fisión provee dos fragmentos de fisión. Los productos de fisión caen dentro de dos grupos definidos, un grupo liviano con número másico de alrededor de 95 y un grupo pesado con número másico alrededor de 140 (figura 3). El rendimiento de fisión de un nucleido es una fracción del número total de fisiones, que conducen directamente o indirectamente a la formación de ese radionucleido. Algunos productos de fisión siguen sucesivos decaimientos generando cadenas de decaimiento. Algunos de los productos de fisión más importantes que tienen aplicaciones útiles son:

Productos de fisión de vida corta: ^{99}Mo , ^{131}I .

Productos de fisión de vida larga: ^{137}Cs , ^{147}Pm , ^{90}Sr .

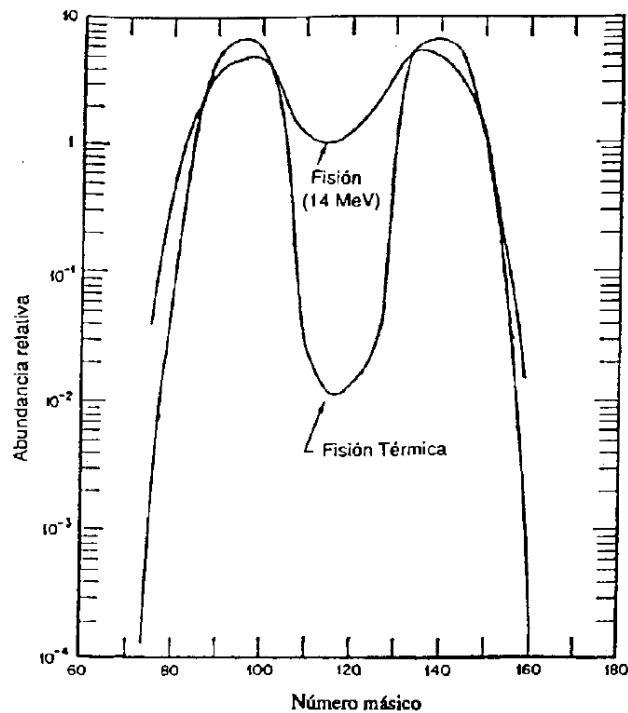


Figura 3: productos de fisión producidos en la fisión del ^{235}U con neutrones térmicos y rápidos en función de su número másico [5].

1.2 Ecuación de balance neutrónico [6]

La variación temporal de la concentración de un nucleido particular (N_i) en términos de procesos de producción y remoción dentro de un reactor nuclear puede representarse con la siguiente ecuación:

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j=1}^m l_{ij} \lambda_j N_j + \bar{\Phi} \sum_{k=1}^m f_{ik} \sigma_k N_k - (\lambda_i + \bar{\Phi} \sigma_i) N_i, \quad (i=1, \dots, m) \quad (\text{Ec. 5})$$

Donde:

N_i = densidad atómica del nucleido i ,

λ_i = constante de desintegración radiactiva del nucleido i ,

σ_i = sección eficaz de absorción neutrónica ponderada en el espectro del flujo neutrónico del radionucleido i ,

$\bar{\Phi}$ = flujo neutrónico promedio en espacio y en energía,

l_{ij} = fracción de desintegración radiactiva del radionucleido j que decae en el nucleido i .

f_{ik} = fracción de absorción neutrónica del radionucleido k que lleva a la formación de la nucleido i .

Esta ecuación está descripta para un medio homogéneo, lo cual implica que las propiedades del medio no dependen de la posición, y a un grupo de energía, donde las

secciones eficaces resultan valores promedios ponderados con el flujo en todo el espectro energético. El primer término indica la formación del nucleido a partir del decaimiento de otros radionucleidos, el segundo término considera la formación del nucleido por la captura neutrónica de otros nucleidos, mientras que el tercer término considera la desaparición del nucleido i a partir del decaimiento del propio radionucleido como también por la transformación del nucleido debido absorciones neutrónicas.

Hay códigos que pueden resolver esta ecuación considerando que el flujo neutrónico promedio en espacio y energía sea constante en un intervalo de tiempo pequeño. A su vez asumen que las secciones eficaces ponderadas con el flujo neutrónico pueden ser utilizadas en ese mismo intervalo de tiempo. Bajo estas condiciones la ecuación 5 se puede resolver como una ecuación diferencial lineal de primer orden.

Para determinar la concentración de varios nucleidos en simultáneo se plantean tantas ecuaciones como nucleidos se quieran determinar y se resuelve el sistema de ecuaciones.

1.3 Producción de Radionucleidos

Las dos principales fuentes de producción de radionucleidos artificiales son los aceleradores de partículas y los reactores nucleares. Los aceleradores se utilizan generalmente para producir aquellos radionucleidos que no pueden ser producidos en los reactores ya que se generan por reacción con protones a altas energías (30 MeV o mayores), o se generan aquellos radionucleidos que tienen corto tiempo de decaimiento lo que imposibilita el transporte desde el reactor a los centros médicos. Mientras que en los reactores nucleares de producción de radionucleidos que pueden contener varias posiciones de irradiación permiten la irradiación de varias muestras en simultáneo, pudiendo producir mayor cantidad y/o una amplia variedad de radionucleidos de forma más económica respecto otros métodos.

En Argentina la producción de radionucleidos en reactores se concentra en el reactor RA-3 localizado en el Centro Atómico Ezeiza de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA). Entre los radionucleidos que produce se encuentran el ^{99}Mo , ^{131}I y ^{153}Sm ^{177}Lu entre otros.

A su vez desde el año 2010 la CNEA lleva adelante el proyecto de diseño, construcción y puesta en marcha del reactor multipropósito RA-10. Uno de principales objetivos ampliar la producción de radioisótopos para sostener la demanda futura a nivel local y regional. Para tal fin, el reactor contará con dispositivos de irradiación exclusivas para la producción de ^{99}Mo , ^{192}Ir de uso medicinal y ^{177}Lu . También contará con 4 posiciones para la producción de ^{192}Ir para uso industrial y otros radionucleidos (ORI). Las posiciones destinadas a la producción de ^{99}Mo , ^{192}Ir y ^{177}Lu han sido analizadas detalladamente en las fases de ingeniería básica y de detalle del proyecto. El análisis realizado sobre las posiciones de ORI, no obstante, se centró en cálculos de flujo y

potencia depositada en los elementos estructurales correspondientes, relegando el estudio de capacidad de producción para etapas posteriores.

1.4 Objetivos

El objetivo de este trabajo fue analizar cuál es la capacidad de producción de radionucleidos en las posiciones de irradiación del reactor RA-10 en particular en las posiciones correspondientes a los dispositivos de Otros Radioisótopos de interés (ORI) y a las posiciones de irradiación internas al núcleo que pueden llegar a estar libre en algún momento de la operación del reactor. Se propuso abarcar desde el estudio de los radionucleidos utilizados en medicina que pueden ser generados en reactores nucleares, hasta la actividad de extracción del radioisótopo una vez irradiado.

1.5 Códigos y bibliotecas utilizados ^{[6] [7] [8] [9] [10] [11]}

1.5.1 Código SCALE

SCALE es un código multifunción utilizado para modelar y simular casos relacionados con el análisis y diseño de seguridad nuclear. Contiene herramientas para la física de reactores, el blindaje de las radiaciones, la caracterización del término fuente radiactivo, y el análisis de sensibilidad e incertezas. SCALE incluye bibliotecas de datos nucleares y herramientas de procesamiento para cálculos neutrónicos de energía continua y para varios grupos de energías, cálculos neutrones-gamma acoplados a varios grupos de energía, como también cálculos de activación y de decaimiento.

1.5.2 Código ORIGEN-S

El código ORIGEN-S fue desarrollado como un módulo del sistema del código SCALE que aplica el modelo de expansión de matriz exponencial ^[6] para calcular concentraciones, actividades y términos fuentes de radiaciones dependientes del tiempo para varios nucleidos en simultáneo que se generan o transmutan por captura neutrónica, fisión, y decaimiento radiactivo al resolver la ecuación 6 descrita en el marco teórico.

El código ORIGEN-S puede utilizar bibliotecas de secciones eficaces a un grupo de energía, ya sea generadas por códigos de transporte o por códigos de acoplamiento que generan estas bibliotecas al modelar sistemas definidos por el usuario y calcula las secciones eficaces ponderadas con el espectro neutrónico deseado. Estas secciones eficaces suelen ser representativas de las condiciones dentro de un reactor o de elementos combustibles dados.

El código ORIGEN-S contiene bibliotecas de datos nucleares que incluyen 903 productos de activación y materiales estructurales, 174 actínidos y 1149 productos de fisión. Los rendimientos de productos de fisión dependientes de la energía son provistos por 30 actínidos fisionables.

Los datos de decaimiento nuclear están basados en las bibliotecas evaluadas ENDF/B-VII. Estos datos incluyen los periodos de semidesintegración, modos de decaimiento, rendimiento por reacción y energías involucradas por desintegración.

ORIGEN-S utiliza bibliotecas de secciones eficaces neutrónicas a un grupo de energía. La creación de estas bibliotecas puede realizarse utilizando el código ORIGEN-ARP o el código COUPLE.

1.5.3 Código COUPLE

La función principal del código COUPLE es la producción de bibliotecas de datos nucleares binarios requeridos por el código ORIGEN-S. El código COUPLE utiliza bibliotecas de secciones eficaces a varios grupos de energía de neutrones con formato AMPX para calcular las secciones eficaces ponderadas a un grupo de energía requeridas por el código ORIGEN-S en sus cálculos. En las bibliotecas AMPX se consideran más de 20 reacciones para 774 nucleidos, incluyendo información de los estados metaestables de los nucleidos para contemplar todas las cadenas de decaimiento.

El código COUPLE condensa las secciones eficaces a un grupo de energía utilizando espectros de flujos neutrónicos definidos por el usuario y genera una biblioteca binaria para el código ORIGEN-S. La condensación de secciones eficaces se realiza mediante la siguiente ecuación:

$$\sigma_{1G} = \frac{\sum_{i=1}^{238} \sigma_i \cdot \phi_i}{\bar{\phi}} \quad (\text{Ec. 6})$$

Donde:

σ_{1G} : Sección eficaz a 1 grupo de energía

σ_i : Sección eficaz del grupo i de los 238 grupos de energía.

ϕ_i : Flujo neutrónico del grupo i de los 238 grupos de energía.

$\bar{\phi}$: Flujo promedio ponderado de los 238 flujos correspondientes a los 238 grupos de energía.

En el caso de las reacciones de fisión COUPLE calcula el rendimiento de los productos de fisión del sistema analizado, interpolando los rendimientos según la energía de los neutrones que producen fisión. El archivo de salida de COUPLE incluye un listado detallado de las secciones eficaces a un grupo que genera.

Los archivos de entrada que procesa el código COUPLE utilizan el formato FIDO [12] en donde los datos se agrupan por bloques, cada bloque de datos contienen un arreglo de datos seguidos de un carácter de terminación de bloque de datos.

1.5.4 Código ORIGEN-ARP

ORIGEN-ARP es un módulo del sistema SCALE que utiliza al código ORIGEN-S para resolver problemas de quemado y activación de combustibles nucleares con

espectros de reactores típicos. Las bibliotecas de secciones eficaces son generadas por un procesador automático, ARP por sus siglas en inglés (*Automatic Rapid Processing*), que considera el cambio de las mismas en función del quemado del material utilizando algoritmos de interpolación entre bibliotecas pregeneradas. Una importante herramienta que contiene el código ORIGEN-ARP es una interfaz para el sistema operativo *Windows* amigable para el usuario, con el cual se pueden cargar datos y crear archivos de entrada tanto para el procesador automático como para el código ORIGEN-S. Además cuenta con una función graficadora que proporciona la visualización y el análisis rápido de los datos solicitados.

1.6 Reactor RA-10 ^[13] ^[14] ^[15]

El reactor RA-10 (figura 4) es un reactor nuclear multipropósito destinado principalmente a la producción de radioisótopos, al ensayo de combustibles y materiales nucleares, y a la investigación y desarrollo basado en técnicas neutrónicas.



Figura 4: Maqueta virtual del reactor RA-10

El RA-10 es un reactor de piletas abiertas (figura 5), utilizará combustibles tipo MTR (combustibles utilizados originalmente en reactores de ensayos de materiales de la industria nuclear). Cada placa combustible consistirá de un núcleo de polvo de siliciuro de uranio (U_3Si_2 , con enriquecimiento menor al 20% en peso) disperso en una matriz de aluminio puro, herméticamente sellado entre dos cubiertas de aleación de aluminio. Se utilizarán alambres de cadmio como venenos quemables para obtener un flujo parejo de neutrones a lo largo del ciclo de operación. El reactor operará en forma continua a una potencia de 30 MW durante 29,5 días y estará en parada durante 2,5 días para realizar mantenimiento y recambio de combustibles. La gestión de combustibles se realizará mediante dos subciclos, cada subciclo comprende un período de 29,5 días de operación y 2,5 días de parada donde se reacomodarán los elementos combustibles y se ingresarán cuatro elementos combustibles frescos al núcleo en cada subciclo.

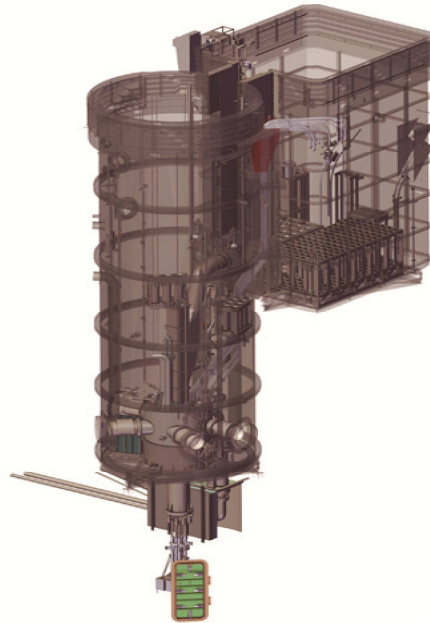


Figura 5: Tanque del reactor RA-10 y su pileta de servicio

El reactor utilizará agua liviana desmineralizada como moderador/refrigerante que ocupará los canales ubicados entre placas combustibles permitiendo que los neutrones de alta energía (neutrones rápidos) nacidos por fisión del uranio sean moderados hasta bajas energías (neutrones térmicos) para permitir nuevas fisiones que mantengan la reacción en cadena. Se utilizará reflector líquido de agua pesada (D_2O), que estará contenida en un tanque del reflector, rodeando la superficie lateral del núcleo y manteniendo una estricta estanqueidad.

El núcleo cuenta con una grilla de 25 posiciones en un arreglo de 5x5. Dentro de la grilla se encuentran 6 posiciones de irradiación internas, de las cuales 2 de ellas ocupan posiciones centrales en el núcleo donde predomina un espectro rápido de neutrones y las otras 4 se ubican en las esquinas donde predomina un espectro térmico de neutrones (figura 6), el resto del arreglo será completado con 19 elementos combustibles. Entre columnas de elementos combustibles se ubicarán dos hileras con 3 cajas guías de barras de control cada una, dando un total de 6 elementos de control y extinción del reactor independientes.

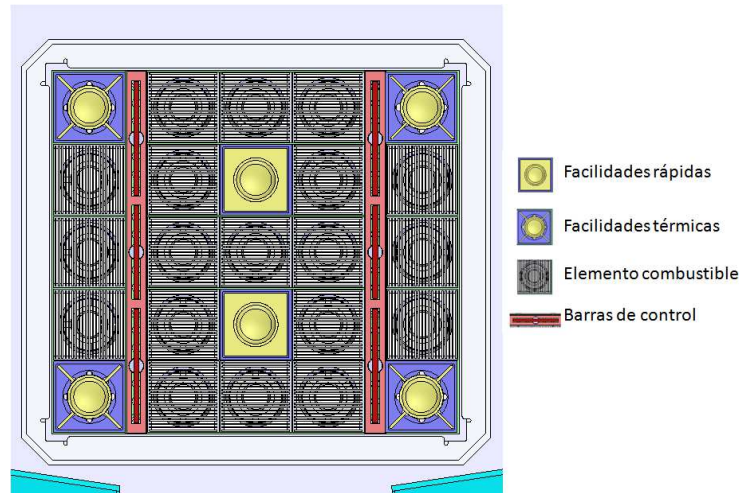


Figura 6: núcleo de Reactor RA-10

1.6.1 Dispositivos de irradiación internas al núcleo

Existen 6 posiciones fijas donde se ubican los dispositivos experimentales internos al núcleo, de las cuales 2 poseen un espectro rápido y 4 poseen un espectro térmico. Las posiciones de irradiación internas al núcleo brindan una contención estructural a los dispositivos experimentales. Estos dispositivos permiten el estudio de materiales para reactores experimentales y centrales de potencia, y también son aptos para la irradiación y producción de isótopos que requieran flujos rápidos y flujos térmicos muy altos.

Para poder irradiar blancos en las posiciones internas al núcleo se utilizan dispositivos experimentales no instrumentados que consisten en cápsulas estancas que contienen las muestras a irradiar. En los dispositivos con espectro rápido el espacio entre la caja de irradiación y la cápsula es relleno con aluminio para minimizar la termalización de los neutrones y posee un espacio para la refrigeración, la cual es realizada con el refrigerante del reactor (Figura 7 izquierda). Los dispositivos con espectro térmico son similares pero la cantidad de agua contenida en la caja de irradiación es mayor para favorecer la termalización de los neutrones sobre la muestra (Figura 7 derecha).

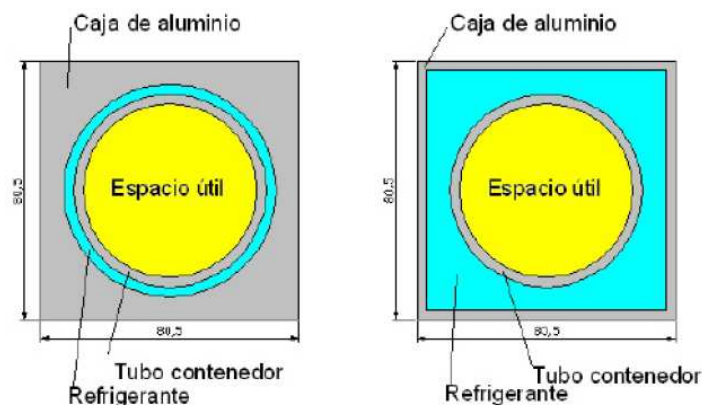


Figura 7: Sección transversal de los dispositivos experimentales internos al núcleo no instrumentadas. Izquierda: dispositivos con espectro rápido. Derecha: dispositivos con espectro térmico.

1.6.2 Dispositivos de irradiación externas al núcleo

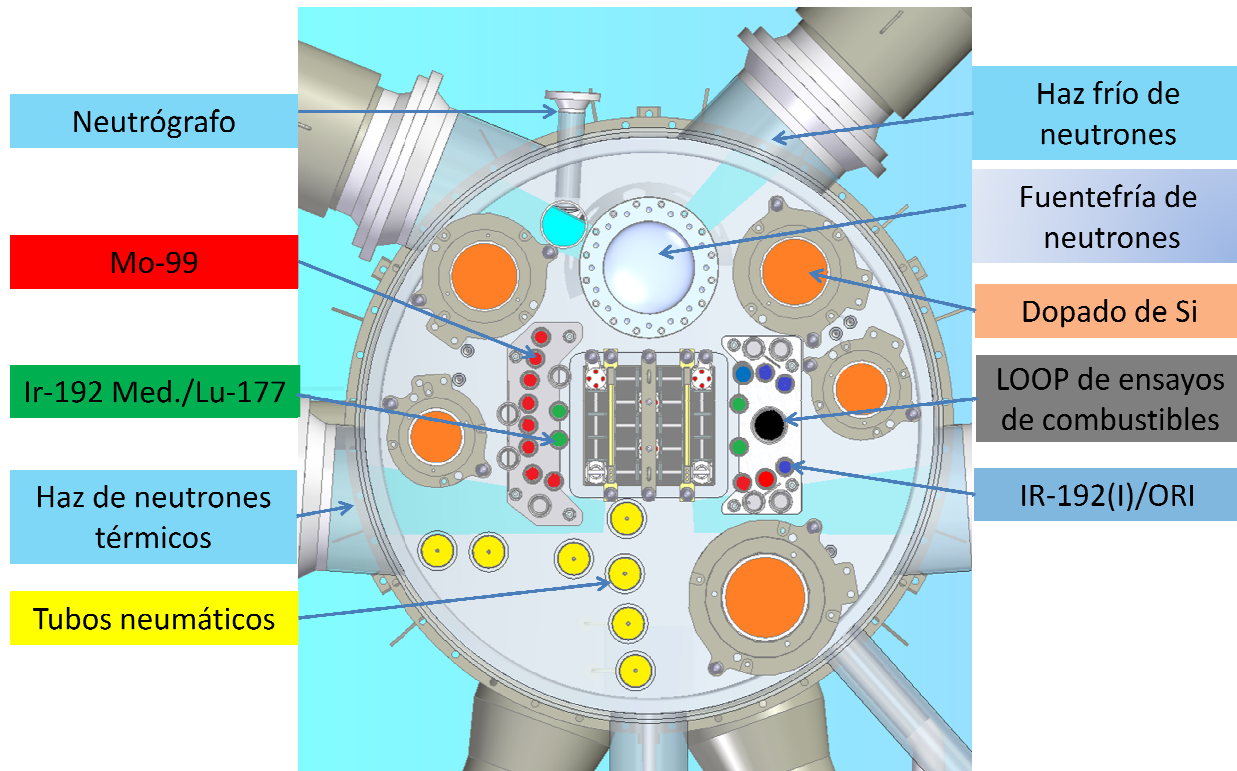


Figura 8: Posiciones de irradiación en el tanque reflector del reactor RA-10

Los dispositivos de irradiación externos al núcleo se encuentran en el tanque reflector (figura 8) que contiene agua pesada (D_2O) el cual provee grandes volúmenes con flujo de neutrones de bajo gradiente, es decir un flujo uniforme en la dirección axial dentro del tanque, permitiendo una gran capacidad de irradiación de elementos, o numerosas posiciones de irradiación con intensidad de flujo y aspectos similares. Los dispositivos de irradiación serán utilizados para la producción de radioisótopos y dopado de silicio. 10 dispositivos están destinados para la producción de Molibdeno-99 (^{99}Mo), 4 para la producción de Iridio-192 (^{192}Ir) para uso medicinal y Lutecio-177 (^{177}Lu), 5 para el dopado de silicio, y 4 dispositivos serán destinados a la producción de otros radioisótopos de interés (ORI).

El silicio es utilizado como semiconductor en la industria de la electrónica. Para adquirir la propiedad de semiconductor es necesario que contengan trazas de elementos adyacentes en la tabla periódica. En el reactor se podrá realizar un dopado muy uniforme de fósforo por captura neutrónica con propiedades eléctricas superiores a los obtenidos por otras técnicas de dopado químico convencional. Esto se debe a la uniformidad axial del flujo por las características del tanque reflector y al agregado de un aplanador de flujo [16].

Las posiciones destinadas a la producción de ^{99}Mo , ^{192}Ir de uso medicinal y ^{177}Lu han sido analizadas detalladamente en las fases de ingeniería básica y de detalle del proyecto. El análisis realizado sobre las posiciones para los ORI, no obstante, se centró

en cálculos de flujo y potencia depositada en los elementos estructurales correspondientes.

El tanque reflector cuenta además con un circuito de alta presión para ensayos de combustibles de potencia, sistemas neumáticos para introducción y extracción de cápsulas selladas utilizadas tanto para la producción de radionucleidos como con fines de investigación, una fuente fría de neutrones con deuterio líquido como moderador que es refrigerado con un sistema de helio criogénico que permite producir neutrones en un rango de energía menor a los 10^{-6} eV. El reactor contará con haces de neutrones de alta tecnología que permiten transportar neutrones térmicos y fríos largas distancias sin experimentar pérdidas significativas desde sus respectivas fuentes para luego ser proyectadas en un edificio lindante al reactor que será utilizado para investigación y desarrollo basado en técnicas neutrónicas. También contará con haz para neutrografía, una técnica no destructiva de radiografía con neutrones que permite inspeccionar la estructura interna de objetos.

1.6.3 Posiciones ORI

El propósito de estas posiciones de irradiación consiste en la activación neutrónica del blanco, con el fin de la obtención del material base para la posterior producción de radioisótopos de uso medicinal. De las cuatro posiciones ORI una fue asignada para la producción de Iridio de uso industrial. En las posiciones para los ORI se colocarán dispositivos de fijación específicos en los cuales se podrán introducir tubos porta blancos que se sellarán con un tapón de cierre. Los dispositivos de fijación tienen un diámetro exterior de 50 mm, la longitud final del dispositivo armado es 1011mm y la longitud sin el Tapón de cierre es de 820 mm. Los blancos consisten en cápsulas de aluminio selladas que contienen una dada masa del material a irradiar, las dimensiones exteriores de estas cápsulas son 100 mm x 32 mm de diámetro (Figura 9).

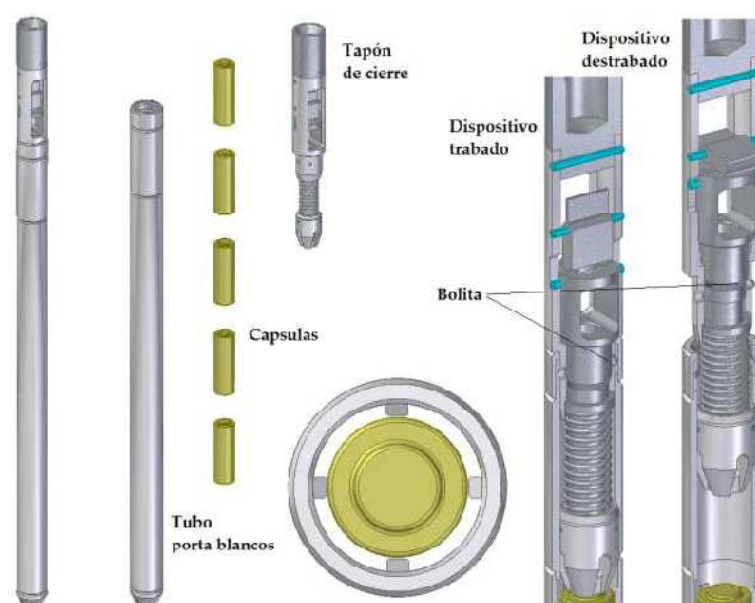


Figura 9: Dispositivos de fijación y tubos portablancos para las posiciones de irradiación ORI del reactor RA-10.

1.7 Radionucleidos analizados en el presente trabajo

La selección de los radionucleidos que se analizaron en el presente trabajo se basó en las características propias del reactor RA-10 tales como el espectro neutrónico en las diferentes posiciones de irradiación, días continuos de operación y tiempos de parada. También se tuvieron en cuenta las características de los posibles radionucleidos producidos, por ejemplo sus características radioquímicas y físico-químicas, que sean aplicables en la medicina nuclear o en la industria, o que tengan la capacidad de ser generadores de otros radionucleidos de interés.

Los generadores de radionucleidos representan un sistema óptimo de provisión de radionucleidos, consisten en la obtención de radionucleidos con períodos de semidesintegración de varios días que decaen en radionucleidos de interés para uso medicinal. Estos radionucleidos de interés suelen tener bajos períodos de semidesintegración ya que una parte de estos permanecerán dentro del cuerpo de los pacientes y se busca que estén el menor tiempo posible. Por lo tanto la producción directa del radionucleido de interés no es conveniente ya que condiciona a usarlo de inmediato y cerca del lugar de producción. El generador Molibdeno-99 (^{99}Mo) / Tecnecio-99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$) representa el mejor ejemplo, el ^{99}Mo tiene un periodo de semidesintegración de 2,75 días mientras que el $^{99\text{m}}\text{Tc}$ decae con un periodo de semidesintegración de 6 horas. Debido a la producción del generador $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, el $^{99\text{m}}\text{Tc}$ es uno de los radioisótopos más utilizados en el diagnóstico por imágenes, actualmente se utiliza en más de 30 millones de estudios anuales en el mundo ^[16] ^[17]. Además de la ventaja estratégica de acceder al radionucleido de interés a tiempo en los lugares demandados, el generador permite la obtención de radionucleidos con alta actividad específica y generalmente sin portador agregado (NCA por sus siglas en ingles *No Carrier Added*) ^[18] ^[19]. En la medicina nuclear se busca que la actividad específica del radionucleido de interés sea la más alta posible ya que estos se tienen que unir a una molécula biológica para poder ser utilizadas en las aplicaciones médicas. Una alta actividad específica implica que haya poca cantidad de elementos con igual propiedades químicas que compitan con el radionucleido al ser adquiridas por la molécula biológica. Que el elemento sea NCA hace referencia a la obtención de un radionucleido de interés sin agregado de un portador que generalmente contiene otros isótopos del radionucleido de interés, lo que asegura una mayor actividad específica. Por lo general los portadores se agregan para facilitar la extracción del radionucleido del blanco irradiado ^[19]. En el caso de los generadores el radionucleido de interés es la hija generador por lo tanto se pueden obtener sin agregado de un portador. Los generadores de emisores β suelen tener actividades mínimas de entre 70 a 100 mCi, mientras que los emisores α suelen tener actividades de un orden de magnitud menor ^[20] ^[21].

Se seleccionaron al Tungsteno-188 (^{188}W) y Actinio-225 (^{225}Ac) para evaluar su capacidad de producción en el reactor.

1.7.1 Tungsteno-188 ^{[17][22]}

El Tungsteno-188 (¹⁸⁸W) es utilizado como generador del Renio-188 (¹⁸⁸Re). El ¹⁸⁸W decae con un periodo de semidesintegración de 69,7 días lo que permite la provisión de ¹⁸⁸Re durante largos periodos (2 a 4 meses). El ¹⁸⁸Re decae con periodo de 17 horas emitiendo partículas β^- (2,12 MeV y 1,965 MeV con rendimiento 71,1 % y 25,6 % respectivamente) y fotones gamma (155 KeV con rendimiento de 15,1 %). El ¹⁸⁸Re es un radionucleido útil para radioterapia dado que puede unirse químicamente a ciertos anticuerpos que atacan a los tumores, reduciéndolos significativamente por la energética radiación β^- que emiten. A su vez la distribución del ¹⁸⁸Re en el cuerpo puede ser fácilmente monitoreada debido a los fotones que emite. Entre las aplicaciones del ¹⁸⁸Re se encuentran el tratamiento de enfermedades tales como metástasis ósea, artritis reumatoide y cánceres primarios ^[17].

En un reactor nuclear, el ¹⁸⁸Re puede obtenerse a partir de la irradiación de ¹⁸⁷Re o ¹⁸⁶W. A partir de la irradiación de ¹⁸⁷Re se puede obtener ¹⁸⁸Re con alta actividad específica dada su alta sección eficaz de captura neutrónica, pero se obtendría un producto de corto periodo para el abastecimiento debido al tiempo de decaimiento del ¹⁸⁸Re generado. Por otro lado a partir de la irradiación del ¹⁸⁶W se puede obtener el generador ¹⁸⁸W/¹⁸⁸Re el cual es importante por su capacidad de proveer una fuente a largo plazo de ¹⁸⁸Re con alta actividad específica y NCA.

En la figura 10 se observa el esquema la obtención del ¹⁸⁸Re a partir de ambos métodos.

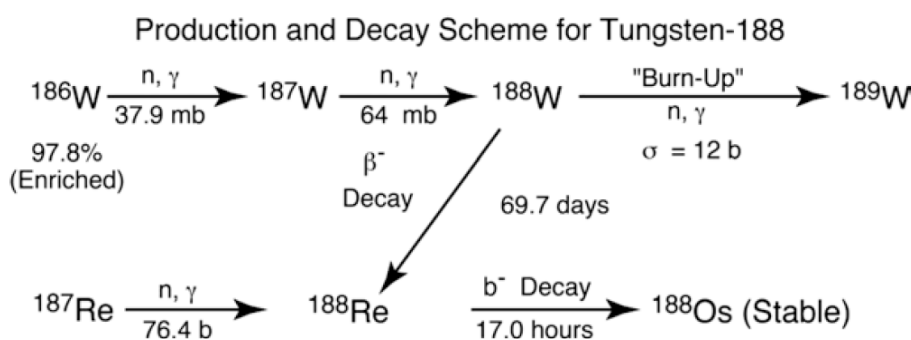


Figura 10: Esquema de producción y decaimiento del Tungsteno-188.

1.7.2 Actinio-225 ^{[17][23]}

El Actinio-225 (²²⁵Ac) decae sucesivamente emitiendo partículas α en Francio-221, Astatio-217 y Bismuto-213 (²¹³Bi), con periodos de semidesintegración de 4,8 minutos, 32,3 milisegundos y 46 minutos respectivamente (figura 11). El ²¹³Bi decae mediante dos mecanismos que llegan al ²¹³Po como se indica en la figura 12 también emitiendo partículas α . Esto hace que el ²²⁵Ac sea un radionucleido efectivo para la terapia con partículas α , este tipo de terapias tienen una alta energía de transferencia (LET) en un rango de aplicación de 50 a 90 micrones, es decir que pueden liberar mucha energía en poco recorrido. Las partículas α tienen varias ventajas para muchas terapias

especializadas de enfermedades microscópicas o subclínicas, como por ejemplo el tratamiento de enfermedades micrometásticas [17].

Por otro lado el ^{225}Ac con su periodo de semidesintegración de 10 días (incluyendo los productos intermedios cuyos periodos de decaimiento son despreciables) permite la producción del generador $^{225}\text{Ac}/^{213}\text{Bi}$ que abastece de ^{213}Bi con tiempo útil de uso de varias semanas.

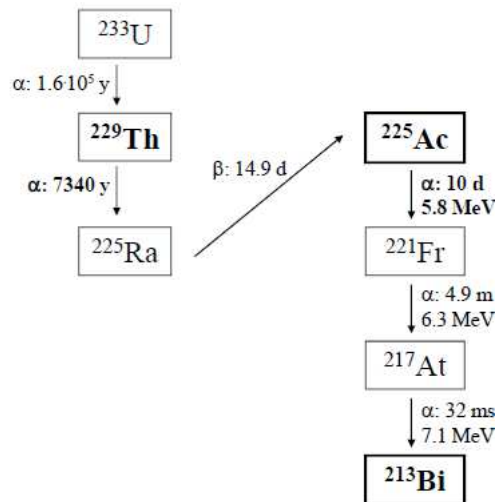


Figura 11: Esquema de generación y decaimiento del ^{225}Ac a partir del ^{233}U .

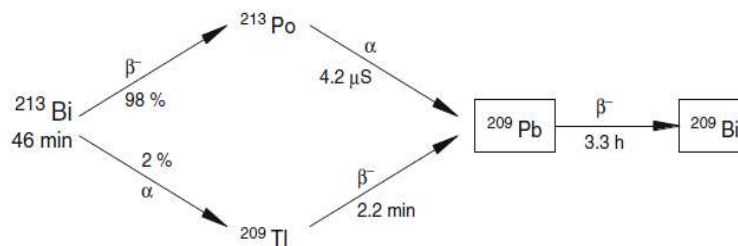
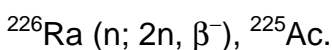
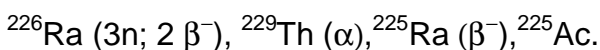


Figura 12: Esquema de decaimiento del ^{213}Bi .

El ^{225}Ac es un producto del decaimiento del Thorio-229 (^{229}Th) proveniente de la producción artificial ^{233}U proveniente de la irradiación del Torio natural ^{232}Th o del decaimiento del ^{237}Np . Por lo tanto el ^{229}Th se obtiene de material nuclear que se han acumulado a lo largo de los años. Sin embargo debido al largo tiempo de decaimiento del ^{237}Np ($t_{1/2}$: $2,14 \times 10^6$ años) y del ^{233}U ($t_{1/2}$: $1,6 \times 10^5$ años) no existe una alta disponibilidad del producto de interés.

Como alternativas el ^{225}Ac se puede producir a partir de la irradiación de blancos de Radio-226 (^{226}Ra) debido a que el ^{226}Ra es abundante en la naturaleza. La generación del ^{225}Ac se realiza según los siguientes mecanismos [24]:

Múltiple captura neutrónica Del ^{226}Ra :



El rendimiento de este proceso depende del flujo térmico de neutrones. Para el uso directo del ^{225}Ac se debe minimizar la actividad de los subproductos generados con un largo periodo de desintegración, como es el caso del ^{227}Ac .

Irradiación del Ra-226 con protones en un ciclotrón:

$^{226}\text{Ra} (p; 2 n), ^{225}\text{Ac}$.

1.7.3 Otros radionucleidos mencionado en el trabajo:

Molibdeno-99 [16] [17] [25]

El Molibdeno-99 (^{99}Mo) es utilizado como generador del Tecnecio-99, un radionucleido utilizado en diagnósticos médicos de alta calidad y baja dosis. Se utiliza principalmente para analizar el flujo de sangre a los músculos desde el corazón y para trazar mapas de metástasis de cáncer de huesos. El RA-10 se producirá a partir de miniplacas de uranio enriquecidas al 20% (de ^{235}U), siendo el ^{99}Mo uno de los productos de fisión del ^{235}U con un rendimiento del 6,05%.

Iodo-131 [25] [26]

El Iodo-131 (^{131}I) al igual que el ^{99}Mo es un producto de fisión del ^{235}U con un 2,82% de rendimiento. Otro método de producción es mediante la captura neutrónica del ^{130}Te mediante una reacción $(n,\gamma) \rightarrow \beta^-$. Se emplea en el diagnóstico de enfermedades de tiroides. La gammagrafía tiroidea con ^{131}I posibilita determinar la estructura de la glándula respecto a su forma, tamaño y posición en el cuello.

Iridio-192 [16] [17]

El Iridio-192 (^{192}Ir) es utilizado tanto en medicina nuclear como en industria. Se genera a partir de la captura neutrónica del ^{191}Ir . Decae principalmente en partículas β^- (de diversas energías con rendimiento total de 95,1% y de energía máxima de 0,672 MeV) y fotones gamma de diversas energía (317 keV la de mayor rendimiento con un 83%).

En medicina nuclear es utilizado en braquiterapia, una técnica que involucra la colocación de un material radioactivo directamente dentro o cerca del tumor. La braquiterapia permite utilizar una dosis alta, para tratar un área pequeña en menor tiempo que con el tratamiento de radioterapia externa y es utilizada para tratar varios tipos de cáncer puntuales, como por ejemplo el cáncer de próstata o de mama. En el RA-10 se irradiarán alambres de iridio natural (37,3% ^{191}Ir y 62,7% ^{193}Ir).

En la industria son utilizados en gammagrafía, una técnica de radiografía con rayos gamma que involucran el testeo de las soldaduras de cañerías presurizadas, recipientes a presión, contenedores de alta capacidad y determinadas soldaduras estructurales. En el RA-10 se irradiarán hojuelas de iridio natural para generar el radionucleido con estos fines.

Lutecio-177 ^[16]^[17]

El Lutecio-177 (¹⁷⁷Lu) se utiliza para el tratamiento de diversos tipos de cáncer como tumores neuroendócrinos o cánceres de tiroides, se produce a partir del Lutecio natural el cual contiene 97,4% ¹⁷⁵Lu y 2,6% ¹⁷⁶Lu generándose reacciones de simple y doble captura neutrónica. El ¹⁷⁷Lu decae con periodo de semidesintegración de 6,65 días emite partículas β^- (497 keV y 385 keV con rendimientos de 78,6 % y 9,1 %) y fotones gamma (208 keV y 113 keV con rendimiento de 11 % y 6,4 %). En el RA-10 se producirán en ampollas de cuarzos que contienen lutecio natural (97,4% ¹⁷⁵Lu y 2,6% ¹⁷⁶Lu) vaporizado.

Fósforo-32 ^[17]^[26]

El Fósforo-32 (³²P) decae con un periodo de semidesintegración de 14,26 días, es un emisor β^- de 1,7MeV de energía máxima y 0,7 MeV de energía media. Se utiliza en diversas aplicaciones entre ellas como radiotrazador para determinar el grado de ingestión de fósforo en las plantas, como marcador de insectos, y en medicina nuclear es utilizado para la detección de cáncer de piel y para el tratamiento de leucemia.

El ³²P se puede obtener por la captura neutrónica del Fósforo-31(³¹P) o el Azufre-32 (³²S) mediante reacciones (n, γ) y (n,p) respectivamente, siendo este último el utilizado para su producción ya que no requiere una separación radioquímica en el procesamiento posterior a la irradiación.

Sodio-24 ^[27]

El Sodio-24 (²⁴Na) decae con un periodo de semidesintegración de 14,96 horas emitiendo principalmente fotones γ de 2.75 MeV (100%) y 1.37 MeV (100%). El ²⁴Na es uno de los principales productos de activación dentro de un reactor nuclear. Éste proviene de la activación neutrónica del ²³Na disuelta en el agua del refrigerante la cual no puede ser desmineralizada totalmente. También puede ser generada por la activación del ²⁷Al mediante una reacción (n, α) con neutrones rápidos. El Aluminio está presente en los elementos estructurales del núcleo, y en el agua del refrigerante que provienen de la corrosión de elementos estructurales de aluminio presentes en el núcleo y en los dispositivos experimentales.

2. Verificación del uso de la línea de cálculo

En este capítulo se describe como se realizó la verificación del uso de los códigos y se plantean las simplificaciones utilizadas en el cálculo para poder comparar los resultados con los cálculos realizados en la etapa de ingeniería básica del proyecto del reactor RA-10 [25]. En la segunda parte se analiza el impacto de las simplificaciones realizadas con el fin de evaluar la diferencia de cálculo que puede haber para cada elemento al no considerar tales simplificaciones.

2.1. Comparación con cálculos de ingeniería básica del RA-10

Para verificar el correcto uso del código ORIGEN-S se procedió a simular la irradiación de varios elementos en distintas posiciones del reactor con el fin de compararlos con cálculos realizados en la etapa de ingeniería básica del proyecto RA-10. En la ingeniería básica del proyecto se obtuvieron ritmos de reacción (de activación y de fisión) de varios blancos en diferentes posiciones de irradiación del reactor y se calcularon las actividades de los elementos generados.

Los elementos producidos en las diferentes posiciones de irradiación que se utilizaron en la verificación fueron los siguientes:

Posición de irradiación	Elemento Generado	A partir de:
ORI#2 ORI#3	Sodio-24 (^{24}Na)	1 miligramo de Sodio Natural (100% ^{23}Na)
	Fósforo-32 (^{32}P)	1 miligramo de Fósforo Natural (100% ^{31}P)
	Iridio-192 (^{192}Ir)	1 miligramo de Iridio Natural (37,3% ^{191}Ir y 62,7% ^{193}Ir)
	Molibdeno-99 (^{99}Mo)	1 miligramo de Uranio-235 (100% ^{235}U)
	Iodo-131 (^{131}I)	1 miligramo de Uranio-235 (100% ^{235}U)
Ir med/Lu #1 Ir med/Lu #2	Iridio-192 (^{192}Ir)	10 alambres de 12 cm, en total 21,26232g de Iridio Natural (37,3% ^{191}Ir y 62,7% ^{193}Ir)
Ir med/Lu #3 Ir med/Lu #4	Lutecio-177 (^{177}Lu)	1 miligramo de Lutecio Natural (97,4% ^{175}Lu y 2,6% ^{176}Lu)

Tabla 1: Elementos generados a partir de la simulación de irradiación de blancos en las diferentes posiciones del reactor RA-10

Las posiciones de irradiación correspondientes a ORI comparadas en esta verificación fueron las posiciones de ORI#2 y de ORI#3 debido a que la posición de ORI#1 fue asignada para la producción de iridio industrial mientras que la posición ORI#4 se cambió con la posición de un dispositivo de molibdeno en la ingeniería de detalle. Además se compararon las cuatro posiciones de Iridio medicinal/Lutecio. Asignándole la

producción de ^{192}Ir en las posiciones 1 y 2, y la producción de ^{177}Lu en las posiciones 3 y 4.

Según los informes de ingeniería básica del reactor RA-10 ^{[25] [28] [29]} se utilizaron las siguientes ecuaciones para el cálculo de actividad para los radionucleidos generados en las diferentes posiciones de irradiación del reactor:

Para el cálculo de actividad de los elementos generados por activación se utilizó la siguiente ecuación:

$$A^{(A+1X)} = N_{at}^{(AX)} \cdot R^{(AX, act.)} \cdot \left[1 - e^{-\lambda^{(A+1X)} \cdot t_{irr.}} \right] \cdot e^{-\lambda^{(A+1X)} \cdot t_w} \quad (\text{ec. 7})$$

Donde:

$A^{(A+1X)}$: es la actividad en Becquerel del nucleido producto de activación "A+1X",

$N_{at}^{(AX)}$: es el número de átomos por gramo del nucleido madre "AX",

$R^{(AX, act.)}$: es el ritmo de activación de cálculo del nucleido madre,

$\lambda^{(A+1X)}$: es la constante de decaimiento del producto de activación,

$t_{irr.}$: es el tiempo de irradiación en el reactor.

t_w : es el tiempo de decaimiento posterior a la finalización de la irradiación del blanco.

Mientras que para las reacciones de fisión se utilizó la ecuación:

$$A(PF) = Y(PF, fis^{235U}) \cdot N_{at}^{(235U)} \cdot R^{(235U, fis)} \cdot \left[1 - e^{-\lambda^{(PF)} \cdot t_{irr.}} \right] \cdot e^{-\lambda^{(PF)} \cdot t_w} \quad (\text{ec. 8})$$

Donde:

$A(PF)$: es la actividad en Becquerel del nucleido producto de fisión "PF",

$Y(PF, fis^{235U})$: es la fracción de producción del "PF", por la fisión del ^{235}U ,

$N_{at}^{(235U)}$: es el número de átomos por gramo del nucleido madre, el ^{235}U ,

$R^{(235U, fis)}$: es el ritmo de fisiones de cálculo del nucleido madre, el ^{235}U ,

$\lambda^{(PF)}$: es la constante de decaimiento del producto de fisión.

Estas ecuaciones asumen ausencia de quemado del nucleido madre y no tienen en cuenta el quemado de los productos generados.

Las condiciones de irradiación utilizadas fueron 28 días de irradiación a plena potencia y a un ritmo de activación promedio entre los flujos neutrónicos a principio de ciclo y fin de ciclo.

2.1.1 Generación de archivos de entrada

Para crear los archivos de entrada (ver Anexo 1) para el cálculo de actividad de los nucleidos mediante los códigos seleccionados, se utilizaron los espectros neutrónicos de las diferentes posiciones de irradiación principio del primer subciclo del ciclo de

equilibrio del reactor RA-10 (BOC1) generados mediante el código MCNP con el modelo de cálculo correspondiente a la etapa de ingeniería de detalle del proyecto ^[30] en el esquema a 238 grupos de energía requeridos por el código COUPLE.

Con estos datos de entrada COUPLE condensa las secciones eficaces multigrupos que están en formato AMPX a secciones eficaces a 1 grupo de energía requeridas por ORIGEN-S.

Por otro lado en la interfaz con Windows del código ORIGEN-ARP se cargaron las composiciones de los blancos a irradiar, las condiciones de irradiación y de decaimiento a simular, y se especificó la información que se quiere obtener a la salida del programa.

Una vez cargado y guardado los datos en el programa se buscaron los archivos de entrada generados, se modificaron para agregar los datos de los espectros neutrónicos de las posiciones de irradiación armados para COUPLE y se especificaron los flujos neutrónicos totales. Estos archivos de entrada son ejecutadas primero por el código COUPLE que genera las secciones eficaces a un grupo de energía y luego es ejecutado por el código ORIGEN-S para calcular la actividad de los elementos producidos en la simulación.

2.1.2 Simplificaciones realizadas

Para simular las simplificaciones realizadas en la ingeniería básica se procedió a modificar las tarjetas de entradas en la sección procesada por el código COUPLE. COUPLE permite asignar valores de secciones eficaces de producción o desaparición de radionucleido a 1 grupo de energía. En las simplificaciones realizadas en el presente trabajo sólo se le asignaron valores a las secciones eficaces de desaparición de diversos elementos para simular las ecuaciones 6 y 7.

- Para simplificar el quemado y la producción del nucleido madre se igualaron las producciones del nucleido madre con el quemado de la misma y se obtiene que la sección eficaz de captura de la madre según la ecuación 9:

$$\sigma_m = \frac{\sum_{g=1}^k \sigma_g \cdot N_g}{N_m} \text{ (ec. 9)}$$

Donde:

σ_m : Sección eficaz de desaparición por captura neutrónica del nucleido madre a modificar a 1 grupo de energía.

σ_g : Sección eficaz de desaparición por captura neutrónica del nucleido g a 1 grupo energía, generador del nucleido madre m. Los elementos generadores de la madre pueden ser más de uno (desde 1 a k).

N_g : Concentración inicial del nucleido g a 1 grupo energía, generador del nucleido madre m.

N_m : Concentración inicial del nucleido madre a modificara 1 grupo energía.

Otra forma de realizar esta simplificación fue anulando las secciones eficaces de desaparición por captura neutrónica de la madre y las secciones eficaces de desaparición por de captura neutrónica de los nucleidos generadores de la madre asignándoles valor cero.

- Para simplificar el quemado de los productos generados se modificaron las secciones eficaces de desaparición asignándoles valor cero.

2.1.3 Normalización de los resultados obtenidos

Debido a que los cálculos se realizaron utilizando los flujos neutrónicos calculados a partir de un modelo del reactor correspondiente a la ingeniería de detalle y se los pretende comparar con los resultados obtenidos durante la ingeniería básica del proyecto, al comparar los valores de actividad obtenidos se normalizaron con ambos flujos térmicos mediante la ecuación 10:

$$A_{Norm.} = A_{Cal.} \cdot \frac{\phi_{ID}}{\phi_{IB}} \text{ (ec. 10)}$$

Siendo:

$A_{Norm.}$: La actividad normalizada

$A_{Cal.}$: La actividad calculada por el código ORIGEN-S

ϕ_{ID} : El flujo térmico calculado por MCNP en la etapa de ingeniería de detalle

ϕ_{IB} : El flujo térmico calculado en la ingeniería básica del proyecto.

2.1.4 Resultados

Al comparar los resultados obtenidos con ORIGEN-S respecto los resultados de la ingeniería básica (IB) normalizando con los flujos térmicos se obtuvieron diferencias menores al 4% para ^{24}Na , ^{192}Ir , ^{99}Mo e ^{131}I en las posiciones de ORI, diferencias menores al 6% para ^{192}Ir y ^{177}Lu en las posiciones de Iridio medicinal y Lutecio. Mientras que para el ^{32}P se obtuvo una diferencia de alrededor del 20%.

Nucleido producido	Posición de irradiación ORI#2 factor de normalización=1,0476			Posición de irradiación ORI#3 factor de normalización=1,0604		
	Actividades específicas ORIGEN-S	Actividades específicas IB	diferencia normalizada	Actividades específicas ORIGEN-S	Actividades específicas IB	diferencia normalizada
^{24}Na	1,13E+09	1,22E+09	-3,2%	1,06E+09	1,16E+09	-3,5%
^{32}P	1,94E+08	2,52E+08	-19,2%	1,82E+08	2,39E+08	-19,3%
^{192}Ir	2,21E+10	2,38E+10	-2,6%	2,12E+10	2,28E+10	-1,5%
^{99}Mo	7,14E+09	7,76E+09	-3,6%	6,68E+09	7,35E+09	-3,6%
^{131}I	3,10E+09	3,30E+09	-1,6%	2,90E+09	3,12E+09	-1,4%

Tabla 2: Actividad específica de los diversos elementos en blancos (Bq/mg de blanco irradiado) simuladas en posiciones de irradiación ORI. Las actividades específicas calculadas se obtienen asumiendo: ausencia de quemado y producción del nucleido madre, y ausencia de quemado de los productos generados

Nucleido producido	Posición de irradiación Ir med./Lu#1 factor de normalización=1,0496			Posición de irradiación Ir med./Lu#2 factor de normalización=1,0472		
	Actividades específicas ORIGEN-S	Actividades específicas IB	diferencia normalizada	Actividades específicas ORIGEN-S	Actividades específicas IB	diferencia normalizada
¹⁹² Ir	2,89E+12	2,88E+12	5,6%	2,79E+12	2,76E+12	5,7%

Tabla 3: Actividad específica de ¹⁹²Ir en blancos (Bq/cm de blanco irradiado) simuladas en posiciones de irradiación para Iridio medicinal. Las actividades específicas calculadas se obtienen asumiendo: ausencia de quemado y producción del nucleido madre, y ausencia de quemado de los productos generados

Nucleido producido	Posición de irradiación Ir med./Lu #3 factor de normalización=1,1974			Posición de irradiación Ir med./Lu#4 factor de normalización=1,1989		
	Actividades específicas ORIGEN-S	Actividades específicas IB	diferencia normalizada	Actividades específicas ORIGEN-S	Actividades específicas IB	diferencia normalizada
¹⁷⁷ Lu	5,98E+10	5,94E+10	3,7%	5,69E+10	5,73E+10	4,6%

Tabla 4: Actividad específica de ¹⁷⁷Lu en blancos (Bq/mg de blanco irradiado) simuladas en posiciones de irradiación para lutecio. Las actividades específicas calculadas se obtienen asumiendo: ausencia de quemado y producción del nucleido madre, y ausencia de quemado de los productos generados.

Debido a que se están comparando resultados que se obtienen con modelos que refieren a distintas etapas del diseño del reactor es esperable que puedan encontrarse diferencias en las posiciones de irradiación y a sus alrededores que puedan afectar a la intensidad de flujo y a su espectro con lo cual se obtienen secciones eficaces diferentes. Por este motivo se considera que las diferencias obtenidas son aceptables para todos los radioisótopos excepto, quizás, para el ³²P. La diferencia de 20% se aleja de los valores obtenidos para el resto y su causa resulta incierta. Sin embargo, dado que los resultados obtenidos para el resto de los radioisótopos son significativamente menores, se considera que la utilización de la línea de cálculo se encuentra aceptablemente verificada.

2.2. Impacto de las simplificaciones realizadas

Para poder realizar la verificación de la línea de cálculo fue necesario realizar una serie de simplificaciones que pueden llegar a tener algún efecto significativo sobre la actividad calculada. Para poder evaluar el impacto de estas se procedió a simular los casos de verificación sin cambiar las secciones eficaces en las entradas de COUPLE.

En un primer caso se evaluó el quemado y generación del nucleido madre y se compararon los resultados con los obtenidos anteriormente. Se puede observar que no hay diferencias para el ²⁴Na y ³²P, mientras que para los demás elementos evaluados en las posiciones de ORI se obtuvieron un 10% de diferencia. En el caso del ¹⁹²Ir en las posición de irradiación de Iridio medicinal/Lutecio se obtuvo un 7% de diferencia y alrededor de un 55% de diferencia para el ¹⁷⁷Lu.

Si se observan las masas iniciales y finales de los nucleidos madres en las simulaciones con quemado prácticamente no hay desaparición del ²³Na y ³¹P. El ²³⁵U disminuye un 12% a 13%, mientras que el ¹⁹¹Ir disminuye un 18% en las posiciones de

ORI y un 13% en las posiciones de Iridio medicinal/Lutecio. Para el caso del ^{176}Lu la disminución es del 66% al 68%. Estas disminuciones se pueden ver también en el ritmo de reacción o desaparición del nucleido madre. En el caso del ^{23}Na y ^{31}P sus secciones eficaces son muy bajas por lo que no se aprecia su disminución. Para el resto de los elementos la sección eficaz es mayor (tres a cuatro órdenes de magnitud mayor que el ^{23}Na y ^{31}P) por lo tanto la disminución es considerable. En el caso del ^{176}Lu debido a su ritmo de reacción alto, dada su alta sección eficaz y alto flujo neutrónico en las posiciones de irradiación, debería quemarse más de un 80%, sin embargo la presencia del ^{175}Lu en el blanco natural de Lutecio genera ^{176}Lu por captura neutrónica con lo cual la disminución global del ^{176}Lu es un poco menor.

Posición de irradiación	Nucleido	Nucleido madre	Sección eficaz madre (barns)	Masa madre inicial (g)	Masa madre final (g)	Act. con quemado madre (Bq/mg)	Act. sin quemado madre (Bq/mg)	Diferencia
ORI#2	^{24}Na	^{23}Na	0,39	1,00E-03	1,00E-03	1,13E+09	1,13E+09	0,0%
	^{32}P	^{31}P	0,12	1,00E-03	1,00E-03	1,94E+08	1,94E+08	0,0%
	^{192}Ir	^{191}Ir	745,01	3,73E-04	3,06E-04	2,00E+10	2,21E+10	-9,6%
	^{99}Mo	^{235}U	490,74	1,00E-03	8,78E-04	6,39E+09	7,14E+09	-10,5%
	^{131}I	^{235}U	490,74	1,00E-03	8,78E-04	2,82E+09	3,10E+09	-9,2%
ORI#3	^{24}Na	^{23}Na	0,37	1,00E-03	1,00E-03	1,06E+09	1,06E+09	0,0%
	^{32}P	^{31}P	0,12	1,00E-03	1,00E-03	1,82E+08	1,82E+08	0,0%
	^{192}Ir	^{191}Ir	708,87	3,73E-04	3,09E-04	1,92E+10	2,12E+10	-9,2%
	^{99}Mo	^{235}U	456,63	1,00E-03	8,86E-04	6,02E+09	6,68E+09	-9,9%
	^{131}I	^{235}U	456,63	1,00E-03	8,86E-04	2,65E+09	2,90E+09	-8,7%
Ir med./Lu #1	^{192}Ir	^{191}Ir	254,32	7,93	6,86	2,68E+12 ²	2,89E+12 ²	-7,2%
Ir med./Lu #2	^{192}Ir	^{191}Ir	245,24	7,93	6,90	2,59E+12 ²	2,79E+12 ²	-7,0%
Ir med./Lu #3	$^{177}\text{Lu}^3$	^{176}Lu	1981,16	2,60E-05	8,13E-06	2,59E+10	5,98E+10	-56,8%
Ir med./Lu #4	$^{177}\text{Lu}^3$	^{176}Lu	1894,16	2,60E-05	8,69E-06	2,58E+10	5,69E+10	-54,7%

Tabla 5: Comparación de actividades específicas de nucleidos con y sin quemado del nucleido madre (Bq/mg de blanco irradiado). Las actividades específicas calculadas se obtienen asumiendo: ausencia de quemado de los productos generados.

En segundo lugar se analizó el quemado de los radionucleidos producidos respecto los resultados obtenidos en el primer caso. En este caso se observó que no hubo diferencias para ^{24}Na , ^{32}P y los productos de fisión del ^{235}U (^{99}Mo y ^{131}I), mientras que para ^{192}Ir y ^{177}Lu hubo diferencias del 15% al 20%.

Si se observan las secciones eficaces de captura neutrónica de los nucleidos producidos, los elementos en los cuales no se aprecian diferencias (^{24}Na , ^{32}P y los productos de fisión del ^{235}U) tienen una sección eficaz de captura baja por lo que el ritmo

² Las actividades del ^{192}Ir en las posiciones de Iridio medicinal se expresan en Bq/cm.

³ Para el cálculo del Lutecio sin quemado de la madre no se consideró la producción del ^{176}Lu a partir de la captura neutrónica del ^{175}Lu presente en el blanco de irradiación.

de reacción es muy bajo y los productos no desaparecen por captura neutrónica. Mientras que los demás elementos tienen una sección eficaz de 3 a 4 órdenes de magnitud mayor, por lo tanto el quemado de estos elementos es considerable.

Posición de irradiación	Nucleido producido	Sección eficaz del nucleido producido (barns)	Flujo total (n/cm ² *s)	Act. con quemado de la madre y productos	Act. Sin quemado de productos	diferencia
ORI#2	²⁴ Na	0,02	1,092E+14	1,13E+09	1,13E+09	0,0%
	³² P	0,21		1,94E+08	1,94E+08	0,0%
	¹⁹² Ir	1414,00		1,67E+10	2,00E+10	-16,4%
	⁹⁹ Mo	1,47		6,39E+09	6,39E+09	0,0%
	¹³¹ I	0,57		2,82E+09	2,82E+09	0,0%
ORI#3	²⁴ Na	0,02	1,099E+14	1,06E+09	1,06E+09	0,0%
	³² P	0,19		1,82E+08	1,82E+08	0,0%
	¹⁹² Ir	1360,89		1,62E+10	1,92E+10	-15,9%
	⁹⁹ Mo	1,47		6,02E+09	6,02E+09	0,0%
	¹³¹ I	0,56		2,65E+09	2,65E+09	0,0%
Ir med./Lu #1	¹⁹² Ir	688,96	2,359E+14	2,23E+12	2,68E+12	-17,0%
Ir med./Lu #2	¹⁹² Ir	672,25	2,358E+14	2,16E+12	2,59E+12	-16,6%
Ir med./Lu #3	¹⁷⁷ Lu	696,97	3,587E+14	2,11E+10	2,59E+10	-18,4%
Ir med./Lu #4	¹⁷⁷ Lu	686,15	3,571E+14	2,12E+10	2,58E+10	-17,9%

Tabla 6: Comparación de actividades específicas de nucleidos con quemado del nucleido madre y quemado de productos respecto con quemado de la madre (las actividades se expresan en Bq/mg de blanco irradiado a excepción del ¹⁹²Ir en las posiciones de Ir medicinal que se expresan en Bq/cm).

3. Análisis de producción de los radionucleidos seleccionados

En este capítulo se desarrolla el análisis de la producción de los radionucleidos ^{188}W y ^{225}Ac en las posiciones de los ORI #2, #3 y #4 del reactor RA-10. En el alcance del presente trabajo sólo se analizará la generación del radionucleido en función del nivel de flujo y el espectro neutrónico en cada posición de irradiación del reactor y de los tiempos de operación. No se tiene en cuenta el post-procesamiento para la obtención del radionucleido para su uso final, los cuales podrían ser los procesos de extracción para poder separar el radionucleido de interés de los demás subproductos o la producción de la columna del generador. Se describen las condiciones de irradiación y se muestran los resultados de actividad del radionucleido de interés a diferentes ciclos de operación del reactor. También se muestra la actividad del radionucleido de interés y la actividad de los otros isótopos a diferentes tiempos de decaimiento, con el fin de evaluar el tiempo necesario para dejar decaer los isótopos que presentan una alta actividad.³

Por último se realizará un análisis de la producción de ambos radionucleidos en posiciones internas al núcleo del reactor debido a que en esas posiciones se obtienen flujos neutrónicos (tanto térmico como total) mayores que en las posiciones ORI, lo que permitiría evaluar cuál es la máxima capacidad de producción de estos radionucleidos en el RA-10.

Todos los resultados se obtienen considerando ciclos de 29,5 días continuos de operación y 2,5 días de paradas programadas para mantenimiento del reactor. A lo largo del ciclo se utilizan las secciones eficaces calculadas para el principio del primer subciclo del ciclo de equilibrio del reactor, sin considerar cambios en las secciones eficaces debido a cambios en el espectro neutrónico a lo largo del ciclo.

3.1. Análisis de la producción de ^{188}W en las posiciones de ORI

Para evaluar la capacidad de producción del ^{188}W en las posiciones ORI se procedió a simular la irradiación de un miligramo de Tungsteno enriquecido al 97,8% ^[17] de ^{186}W ⁴ a diferentes ciclos de operación del reactor RA-10. Esto se realizó con el objetivo de determinar cuál sería la actividad máxima que podría alcanzarse dentro de cada posición de irradiación y analizar cuál es el aumento marginal de la actividad en función de la cantidad de ciclos de irradiación.

³Solo se indicarán las actividades obtenidas de los subproductos con periodos de desintegración no despreciables respecto al radionucleido de interés. El análisis de separación del nucleido de interés de los subproductos escapa del alcance del presente trabajo.

⁴El resto de los isótopos se mantuvieron según la proporción natural (0,82% ^{182}W 0,44% ^{183}W y 0,94% ^{184}W).

En la figura 13 se muestran tres curvas a doce ciclos de operación correspondientes a la irradiación del ^{186}W en las tres posiciones analizadas. Como se puede observar se obtienen actividades mayores en la posición de ORI#4 debido a que el flujo neutrónico en esa posición es mayor (tanto térmico como total). En las posiciones de ORI#2 y ORI#3 se obtienen máximos de actividad de 0,23 mCi/mg alcanzando la saturación en el ciclo 9, luego se mantiene constante hasta el ciclo 12. En el caso de la irradiación en la posición de ORI#4 se obtiene una actividad máxima de 1,28 mCi/mg en el ciclo 9 y luego cae levemente en los últimos ciclos. La disminución de los últimos ciclos se debe al quemado considerable del ^{186}W . Resulta importante señalar que, a partir del ciclo 5, el aumento de la actividad de ^{186}W respecto al ciclo anterior resulta menor al 10%.

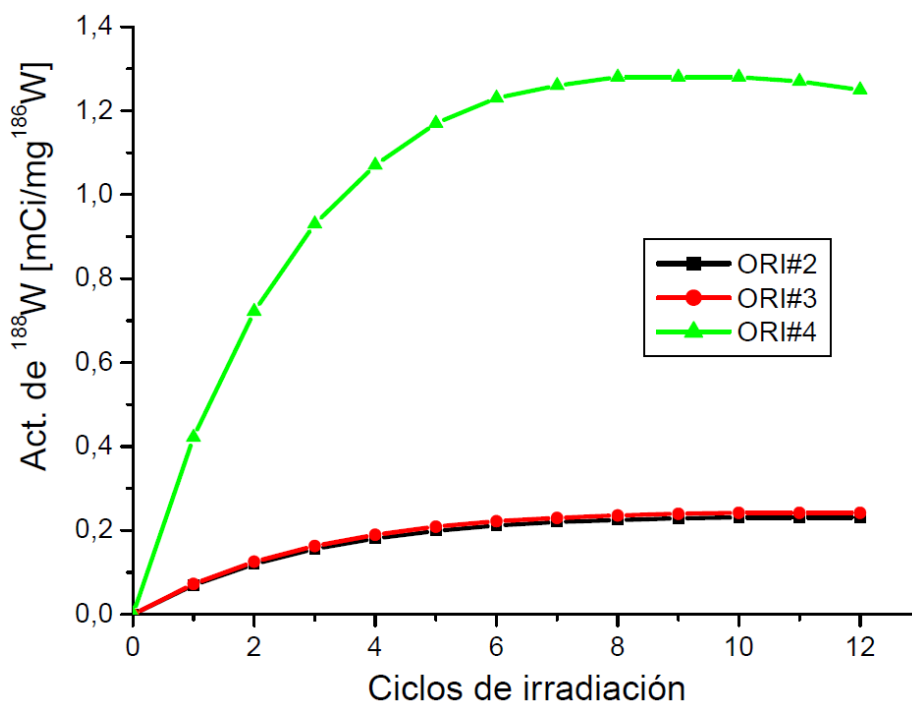


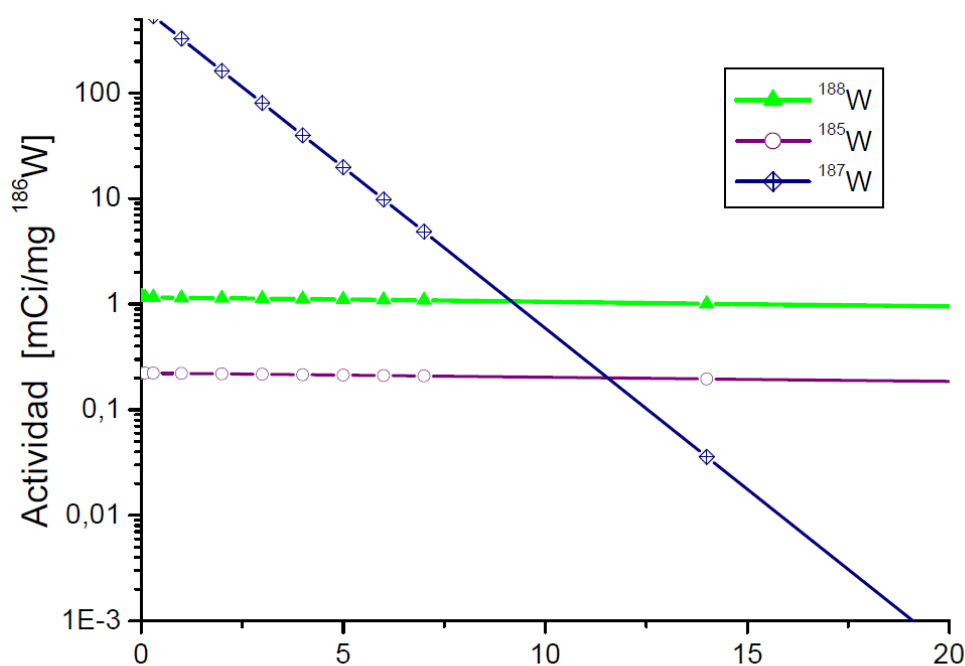
Figura 13: Actividad de ^{186}W generada por ciclo de 29,5 días de irradiación y 2,5 días de parada del reactor RA-10, simulando la irradiación de 1 miligramo de Tungsteno enriquecido al 97,8% de ^{186}W .

	ORI#2	ORI#3	ORI#4
total	1,09E+14	1,10E+14	2,66E+14
térmico	9,69E+13	9,12E+13	2,12E+14
epitérmico	1,13E+13	1,69E+13	4,91E+13
rápido	1,02E+12	1,86E+12	5,65E+12

Tabla 7: Flujo neutrónico en las posiciones de ORI analizadas en $\text{n/cm}^2\cdot\text{s}$ con energías de corte de 0,625 eV para los espectros térmicos/epitérmicos y 0,82 MeV para los espectros epitérmicos/rápidos.

Para un análisis más detallado de la producción se analizó la actividad del producto de interés y sus radioisótopos generados luego de una irradiación de 5 ciclos de operación.

En los primeros días luego de la irradiación la actividad del ^{187}W es de 2 a 3 órdenes de magnitud mayor respecto la actividad del ^{188}W . Luego de 14 días la actividad del ^{187}W cae dos órdenes de magnitud por debajo de la actividad ^{188}W . Esto se debe a que el ^{187}W se genera por la simple captura neutrónica del ^{186}W y al tener un periodo de semidesintegración de 23,7 horas su actividad decrece mucho más rápido que el isótopo de interés. A su vez también se genera el ^{185}W que se produce a partir de la captura neutrónica del ^{184}W presente en el ^{186}W enriquecido. La actividad del ^{185}W es de un orden de magnitud menor que la actividad del ^{188}W , pero por su periodo de semidesintegración de 75,1 días (decaendo al ^{185}Re que es estable) su actividad decae aproximadamente al mismo ritmo que el ^{188}W . El ^{185}W generado se podría disminuir si se irradia un ^{186}W de mayor pureza. En la figura 14 se puede observar como decaen los diferentes isótopos del Tungsteno generados en en la posición de ORI#4.



Días de decaimiento después del 5to ciclo de irradiación

Figura 14: Decaimiento de la actividad del ^{188}W y sus isótopos ^{185}W y ^{187}W en ORI#4, generados por miligramo de Tungsteno enriquecido al 97,8% de ^{186}W simulando la irradiación de 5 ciclos de operación en el reactor RA-10.

3.2. Análisis de producción de ^{225}Ac en las posiciones de ORI

Para el caso de la producción de ^{225}Ac se simuló la irradiación de 1mg de ^{226}Ra en las posiciones de ORI. Luego de la irradiación a 12 ciclos se observa que la producción sigue aumentando sin estabilizarse (figura 15). Para evaluar la producción máxima se simuló una irradiación a 3000 días corridos sin considerar las paradas del reactor (figura 16).

Con la simulación a 3000 días de irradiación se puede observar un máximo de producción del ^{225}Ac que varía según el flujo de cada posición. Para el ORI#4 se obtiene una actividad máxima a los 900 días de 0,172 mCi/mg de ^{226}Ra irradiado, mientras que

para las posiciones de ORI#2 y ORI#3 (cuyos flujos totales y térmicos son muy similares) se obtiene una actividad máxima a los 1900 días de 0,05 mCi/mg y 0,06 mCi/mg respectivamente. Si se observa la cantidad de ^{226}Ra restante a lo largo de los días irradiados (figura 17) se puede ver un quemado aproximado del 25% en los tiempos de máxima producción.

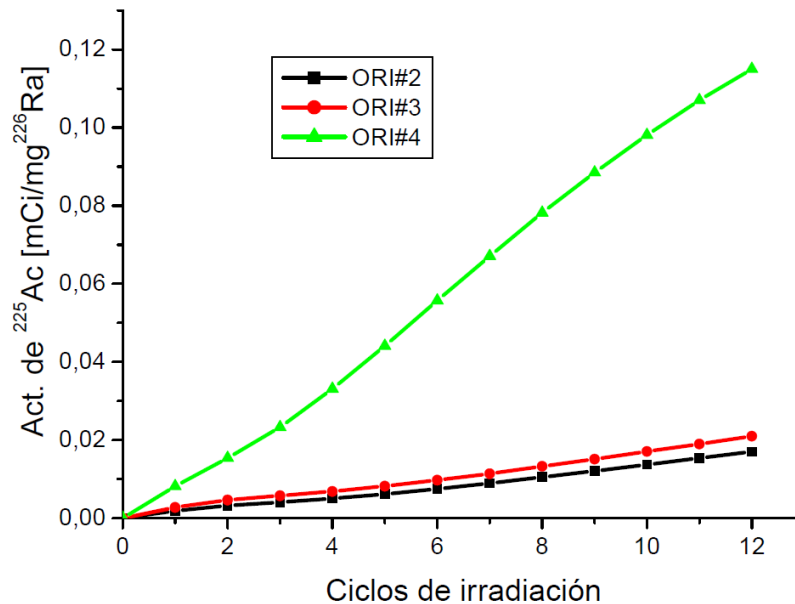


Figura 15: Actividad del ^{225}Ac generada por ciclo de 29,5 días de irradiación y 2,5 días de parada del reactor RA-10, simulando la irradiación de 1 miligramo de ^{226}Ra .

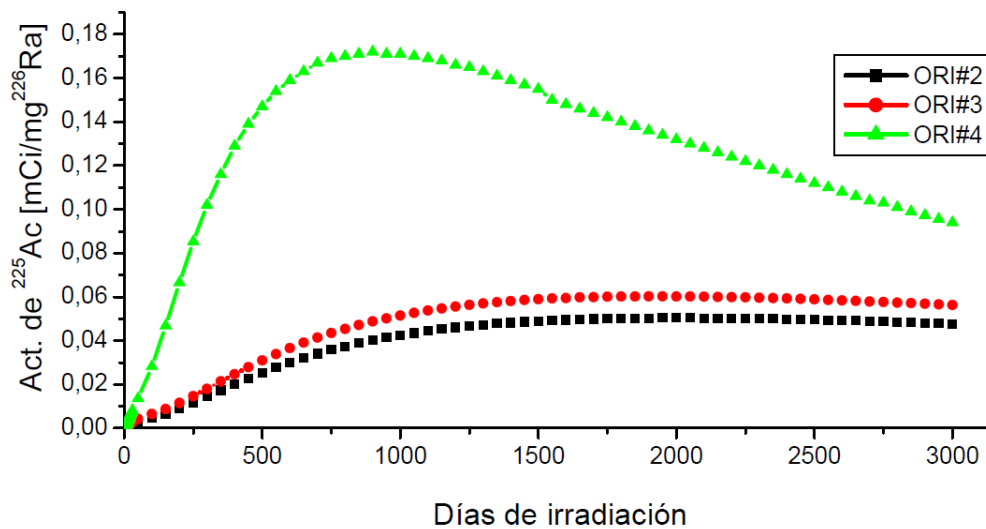


Figura 16: Actividad del ^{225}Ac generada en 3000 días continuos de irradiación en las posiciones ORI del reactor RA-10, simulando la irradiación de 1 miligramo de ^{226}Ra .

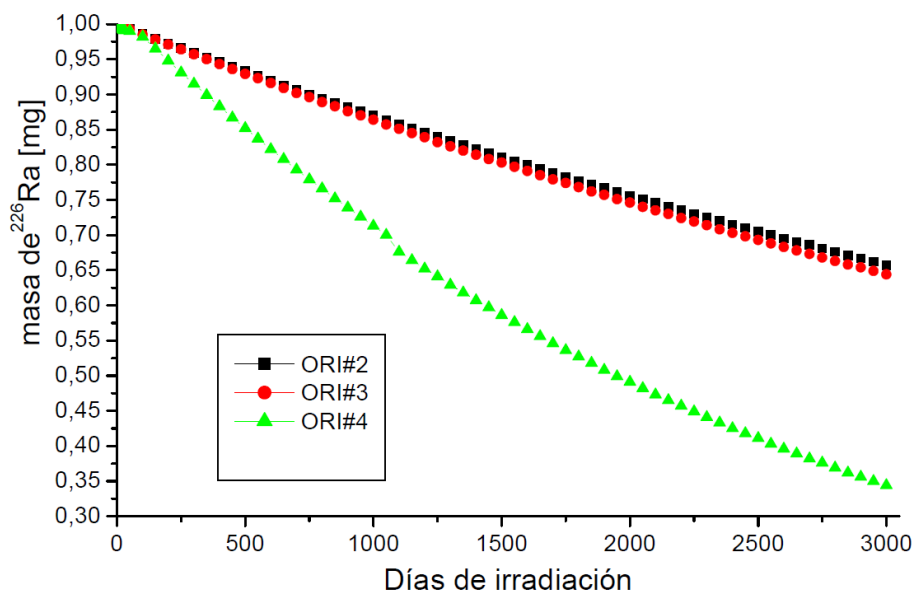


Figura 17: Masa de ^{226}Ra en función de los días continuos de irradiación en las posiciones ORI del reactor RA-10, simulando la irradiación de 1 miligramo de ^{226}Ra .

Para evaluar la capacidad de producción del ^{225}Ac en los ORI en un tiempo razonable de operación se procedió a analizar la actividad total y la actividad de otros isótopos del actinio a 1 ciclo y a 10 ciclos de operación del reactor RA-10. En la figura 18 se puede observar las producciones de ^{225}Ac luego de 1 ciclo de irradiado alcanzando un máximo de 0,01 mCi/mg de ^{226}Ra irradiado en la posición ORI#4.

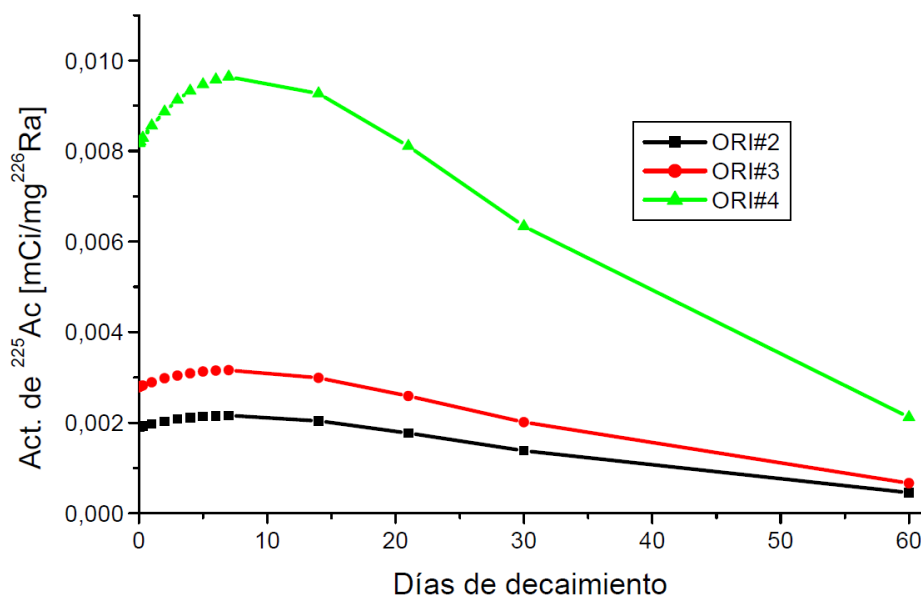


Figura 18: Actividad del ^{225}Ac en Ci/mg de ^{226}Ra durante 60 días de decaimiento. Simulación de irradiado durante un ciclo de 29,5 días en posiciones ORI del Reactor RA-10.

En la figura 19 se puede observar la actividad generada por el ^{227}Ac bajo las mismas condiciones, pudiéndose observar que la actividad es de 0,6 mCi/mg en la posición de ORI#4. El ^{227}Ac no decae significativamente durante los 60 días debido a su periodo de semidesintegración (21,7 años). Debido a que se obtiene una mayor actividad

del ^{227}Ac respecto ^{225}Ac y éstos no pueden ser separados químicamente, el ^{225}Ac generado en las posiciones ORI no es apto para el uso directo en paciente en los tratamientos médicos.

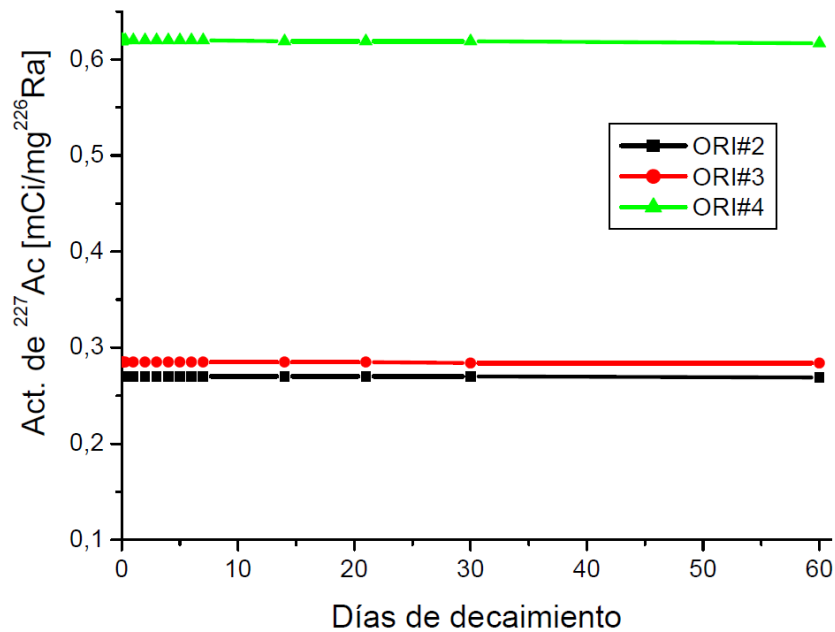


Figura 19: Actividad del ^{227}Ac en Ci/mg de ^{226}Ra durante 60 días de decaimiento. Simulación de irradiado durante un ciclo de 29,5 días en posiciones ORI del Reactor RA-10.

En la figura 20 se muestran las actividades luego de 10 ciclos de irradiación, en lo cual se observa un máximo de 0,1 mCi de ^{225}Ac por cada mg de ^{226}Ra irradiado en la posición ORI#4. Si bien en todos los casos se mejora levemente la relación $^{225}\text{Ac}/^{227}\text{Ac}$, se sigue obteniendo una mayor actividad del ^{227}Ac respecto al ^{225}Ac .

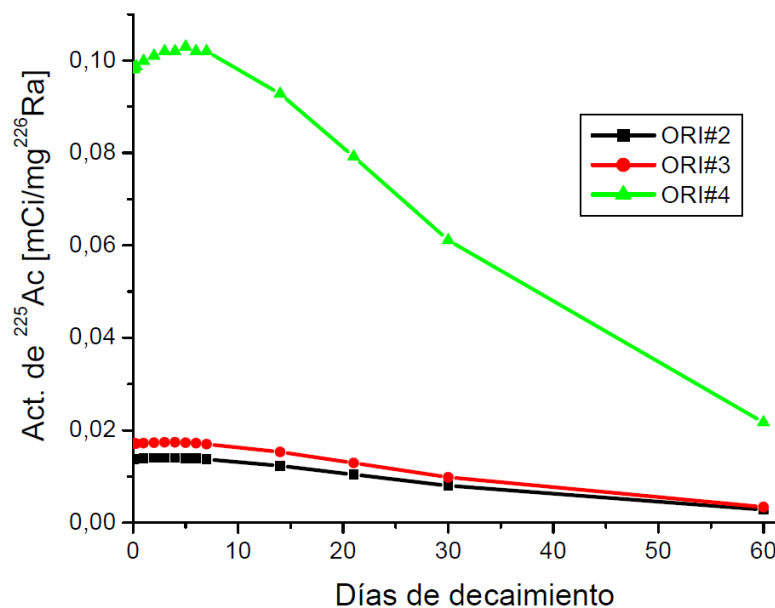


Figura 20: Actividad del ^{225}Ac en Ci/mg de ^{226}Ra durante 60 días de decaimiento. Simulación de irradiado durante 10 ciclos de irradiación de 29,5 días y 2,5 días de parada.

3.3. Análisis de producción de radionucleidos las posiciones internas del reactor RA-10

Para evaluar la capacidad de producción de ^{188}W y ^{225}Ac en otras posiciones del reactor se realizaron simulaciones de producción en posiciones internas al núcleo del reactor RA-10 que son las que presentan mayor intensidad de flujo. Se eligieron una posición periférica donde se tiene el mayor flujo con espectro térmico - la posición de irradiación ubicada en la esquina superior izquierda de la figura 6, y una posición central donde el flujo total (principalmente rápido y epitérmico) es mayor - la posición de irradiación ubicada en el centro superior de la figura 6.

Como se puede ver en la Figura 21 la actividad del ^{188}W al igual que en caso de los ORI llega al nivel de saturación y se estabiliza en el quinto ciclo, pero empieza a decaer en el octavo ciclo debido al quemado significativo del ^{186}W . El valor máximo de actividad alcanzable en el dispositivo interno con perfil rápido/epitérmico (posición interna al núcleo central) es de 5,7 mCi/mg mientras que en el dispositivo interno térmico (posición interna al núcleo periférica) es de 3,5 mCi/mg obteniéndose un aumento relativo de producción de 4,5 y 2,7 veces respecto la posición ORI#4 respectivamente.

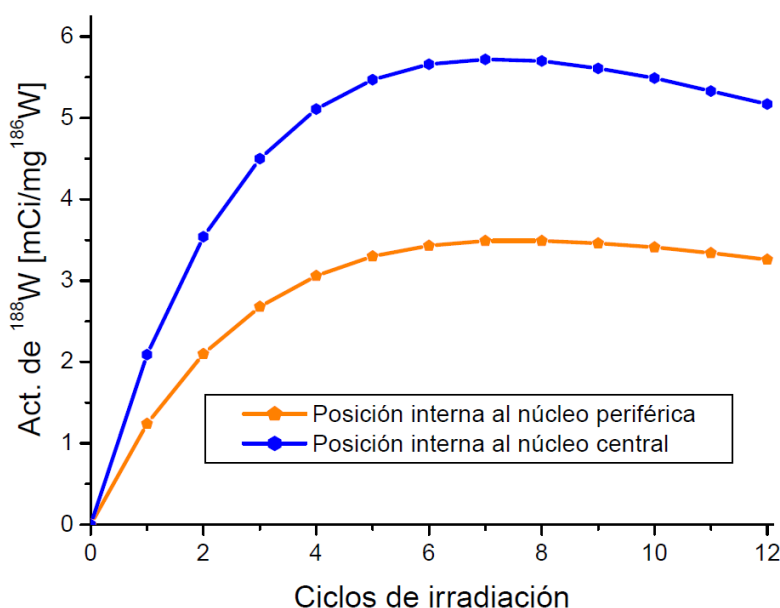
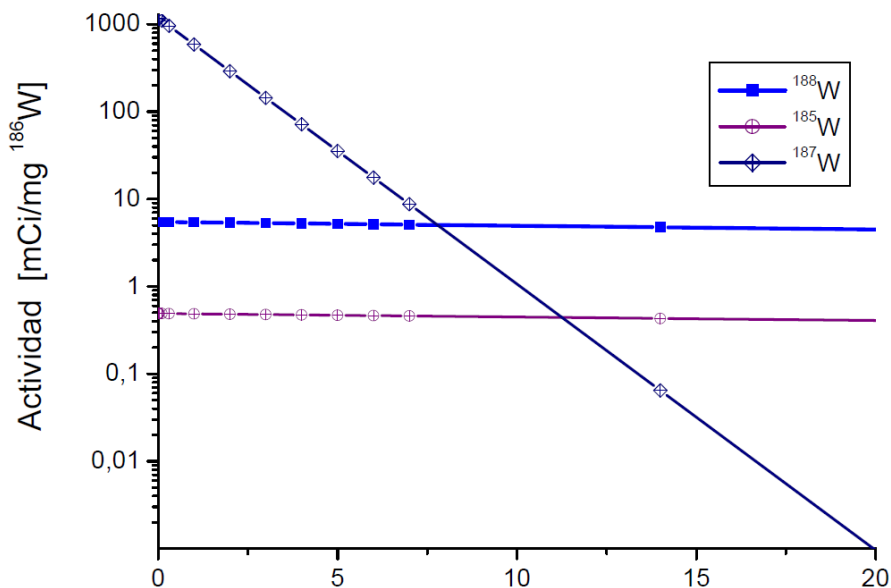


Figura 21: Actividad de ^{188}W generada por ciclo de 29,5 días de irradiación y 2,5 días de parada del reactor RA-10, simulando la irradiación de 1 miligramo de Tungsteno enriquecido al 97,8% de ^{186}W

En un análisis a 5 ciclos de irradiación se puede observar producciones de 5,5 mCi/mg y 3,3 mCi/mg para las posiciones internas de espectro rápido/epitérmico y espectro térmico respectivamente. Para el análisis de los isótopos del ^{188}W generados (figura 22) se puede observar que luego de 14 días de decaimiento el ^{187}W prácticamente es despreciable frente al ^{188}W . Además se puede observar que el ^{185}W representa un 10% de la actividad del ^{188}W mejorando la relación $^{188}\text{W}/^{185}\text{W}$ respecto las posiciones de irradiación ORI.



Días de decaimiento después del 5to ciclo de irradiación
Figura 22: Decaimiento de la actividad del ^{188}W y sus isótopos ^{185}W y ^{187}W en posición interna al núcleo central, generados por miligramo de Tungsteno enriquecido al 97,8% de ^{186}W simulando la irradiación de 5 ciclos de operación en el reactor RA-10.

Para el caso del ^{225}Ac se obtiene un máximo de 1,2 mCi/mg en la posición de irradiación interna al núcleo central y 0,5 mCi/mg en la posición de irradiación interna al núcleo periférica a los 600 días de irradiación continua (Figura 23). En este punto de máxima producción de ^{225}Ac se obtiene la mejor relación $^{225}\text{Ac}/^{227}\text{Ac}$ con la generación de 4,62 mCi/mg y 2 mCi/mg de ^{227}Ac en las posiciones de irradiación internas al núcleo central y periférica respectivamente. Sin embargo sigue habiendo mayor actividad del ^{227}Ac respecto al ^{225}Ac

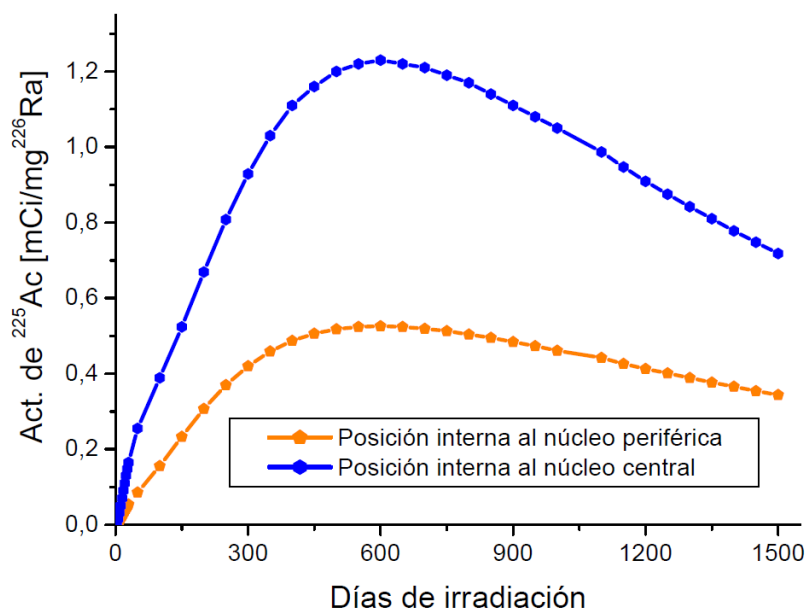


Figura 23: Actividad del ^{225}Ac generada en 1500 días continuos de irradiación en las posiciones ORI del reactor RA-10, simulando la irradiación de 1 miligramo de ^{226}Ra .

4. Conclusiones

Se analizó la capacidad de producción de los radionucleidos ^{188}W y ^{225}Ac en las posiciones de irradiación ORI y posiciones internas al núcleo del reactor RA-10 mediante el código ORIGEN-S. Se verificaron las líneas de cálculo generando simulaciones para comparar con cálculos realizados en la etapa de ingeniería básica del reactor RA-10, para lo cual fue necesario incorporar al cálculo las mismas simplificaciones utilizadas en esa fase del proyecto. Además se realizó un análisis de las simplificaciones realizadas para determinar el impacto de realizar dichas simplificaciones.

En la verificación de línea de cálculo con el código ORIGEN-S se obtuvieron diferencias menores al 6% para todos los isótopos analizados excepto el ^{32}P , que presentó diferencias del 20% y cuya causa se desconoce. Sin embargo, dado que se compararon resultados obtenidos en fases del diseño distintas, se considera que las diferencias son aceptables.

En el análisis de las simplificaciones realizadas se determinó que los elementos irradiados en el reactor con alta sección eficaz de captura neutrónica no se puede considerar que se mantengan constantes durante el ciclo de operación. Lo mismo ocurre para el caso de los productos generados cuyo quemado no es despreciable si sus secciones eficaces de captura son altas.

En el análisis de producción del ^{188}W en las posiciones de ORI, se obtuvo que se pueden generar 0,2 mCi/mg de ^{186}W irradiado en las posiciones de ORI#2 y ORI#3 y 1,2 mCi/mg en la posición de ORI#4. Con la irradiación de un blanco de 1 g de ^{186}W en las posiciones ORI#2 y ORI#3 y 0,17 g en ORI#4 se alcanzan los niveles mínimos de actividad de un generador de ^{188}W . Los principales subproductos generados son el ^{187}W y el ^{185}W . El ^{187}W decae mucho más rápido que el ^{188}W por lo que no representaría un problema para la pureza radiactiva del producto generado. Mientras que el ^{185}W generado a partir del ^{184}W presente en el Tungsteno irradiado está en un orden de magnitud menor respecto al ^{188}W . Al decaer en un nucleido estable en un principio no sería un inconveniente para la producción de ^{188}W ya que lo que se utiliza es el ^{188}Re . Aún así la actividad de este radioisótopo se puede disminuir irradiando un ^{186}W de mayor pureza.

En el análisis de producción de ^{225}Ac en las posiciones de ORI se obtuvo una máxima capacidad de producción 0,17 mCi/mg de ^{226}Ra irradiado, sin embargo esta actividad se alcanza a los 900 días de irradiación en la posición de mayor flujo.

En un análisis a 12 ciclos de operación del reactor RA-10 se obtiene una producción de 0,1 mCi/mg de ^{226}Ra irradiado en la posición de ORI#4.

La producción de ^{225}Ac en el reactor genera muchos subproductos principalmente el ^{227}Ac cuyo periodo de desintegración es mayor que el ^{225}Ac y no puede ser separado químicamente. Por la relación $^{225}\text{Ac}/^{227}\text{Ac}$ generada en las posiciones ORI el ^{225}Ac generado no es apto para el uso directo en pacientes. En el caso de usarlo como

generador del ^{213}Bi en un principio habría que evaluar si la columna en la cual queda atrapado el radionucleido madre puede soportar la alta actividad debido a los subproductos generados que no se pueden separar y cuál sería el tamaño de blindaje a utilizar para proteger a los usuarios de esa actividad.

La capacidad de producción del ^{188}W en las posiciones de irradiación internas al núcleo es mayor respecto las posiciones ORI, pudiéndose alcanzar 3,3 y 5,5 mCi/mg de ^{186}W irradiado en las posiciones periféricas y centrales respectivamente en 5 ciclos de operación. Además se alcanzan mejores relaciones de $^{188}\text{W}/^{185}\text{W}$. Mientras que la producción del ^{225}Ac mejora respecto a las posiciones ORI así también como la relación $^{225}\text{Ac}/^{227}\text{Ac}$, sin embargo sigue siendo inapropiada para el uso directo del ^{225}Ac ya que la actividad del ^{227}Ac sigue siendo mayor que la actividad del ^{225}Ac .

5. Referencias Bibliográficas

1. L. F. Pecos, P. Bellino. *Elementos de Física Nuclear y Radiactividad*. Instituto de tecnología nuclear Dan Beninson. 2013.
2. *Manual for Reactor Produced Radioisotopes*. IAEA, Viena, 2003. IAEA-TECDOC-1340.
3. J. C. Furnari. *Estudio de reacciones nucleares inducidas por neutrons sobre germanio. Determinación, trazabilidad y aplicaciones de los datos nucleares* Biblioteca Digital de la Facultad de Ciencias Exactas y Naturales - Universidad de Buenos Aires. 2012.
4. S. Glasstone, A. Sesonke. *Ingeniería de Reactores Nucleares*. Ed. Reverte. 1990.
5. X. Ortega Aramburu, J. J. Bisbal. *Radiaciones Ionizantes, Utilización y Riesgos*. Ediciones UPC. 1994.
6. I. C. Gauld. *ORIGEN-S: Depletion module to calculate neutron activation actinide, transmutation, fission product generation, and radiation source terms*. Office of Nuclear Material Safety and Safeguards U.S. Nuclear Regulatory Commission. 2011.
7. *Scale: A Comprehensive Modeling and Simulation Suite for Nuclear Safety Analysis and Design*, ORNL/TM-2005/39, Version 6.1, June 2011. Available from Radiation Safety Information Computational Center at Oak Ridge National Laboratory as CCC-785.
8. I. C. Gauld, D. Wiarda. *Origen-S data libraries*. Office of Nuclear Material Safety and Safeguards U.S. Nuclear Regulatory Commission. 2011.
9. S. M. Bowman, M. E. Dunn. *SCALE Cross-section libraries*. Office of Nuclear Material Safety and Safeguards U.S. Nuclear Regulatory Commission. 2011.
10. I. C. Gauld, D. Wiarda. *COUPLE: A nuclear decay and cross section data processing code for creating ORIGEN-S libraries*. Office of Nuclear Material Safety and Safeguards U.S. Nuclear Regulatory Commission. 2011.
11. I. C. Gauld, D. Wiarda, J. E. Horwedel. *ORIGEN-ARP: Automatic rapid processing for spent fuel depletion, decay and source term analysis*. Office of Nuclear Material Safety and Safeguards U.S. Nuclear Regulatory Commission. 2011.
12. L. M. Petrie. *FIDO input system*. Office of Nuclear Material Safety and Safeguards U.S. Nuclear Regulatory Commission Washington, D.C. 2011.
13. F. Brollo. *Descripción general del reactor RA-10*. IT-40/RA10/0000-1-002-0. Rev. 0. 2011.
14. C. Díaz. *Informe de seguridad: Capítulo 11- Utilización del reactor*. IS-40/RA-10/7230-2-011. Rev. 1. 2014.
15. P. Camusso. *Gestión de combustible detallada*. IT-INV/RA-10/0120-3-036 Rev. 1. 2015.
16. F. Casella. *Diseño y optimización de un aplanador de flujo neutrónico para dopaje de silicio en el reactor RA-10*. Departamento de física de reactores y reacciones. Centro Atómico Bariloche. Instituto Balseiro. Comisión Nacional de Energía Atómica. Universidad de Cuyo. 2016.
17. F. F. Knapp, A. Dash. *Radiopharmaceuticals for Therapy*. Ed. Springer. India. 2016.
18. M. L. Bonardi, C. Birattari. *Cyclotron production and quality control of "high specific activity" radionuclides in "no-carrier-added" form for radioanalytical applications in life sciences*. Radiochemistry Laboratory, LASA, Università degli Studi and National Institute of Nuclear Physics, INFN, via F.lliCervi 201, I-20090 Segrate, Milano, Italy. 2004
19. F. F. Knapp, S. Mirzadeh. *The continuing important role of radionuclide generator systems for nuclear medicine*. Nuclear Medicine Group, Health Sciences Research Division, Oak Ridge National Laboratory. 1994.

20. S. Li, J. Z. LIU, Rhenium-188 HEDP To Treat Painful Bone Metastases. *Clinical Nuclear Medicine*. 2001.
21. F. Sundram, T. C. Chau .Preliminary results of transarterial rhenium-188 HDD lipiodol in the treatment of inoperable primary hepatocellular carcinoma.
22. F. F. Knapp, A. P. Callahan. Processing of Reactor-Produced ^{188}W for Fabrication of Clinical Scale Alumina-based $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ Generators. Nuclear Medicine Group, Health Sciences Research Division, Oak Ridge National Laboratory. 1994.
23. A. Morgenstern, F. Bruchertseifer, C. Apostolidis. ^{213}Bi and ^{225}Ac Generator Performance Evolving Therapeutic Applications of 2 Generator-Derived Alpha-Emitting Radioisotopes. European Commission, Joint Research Centre, Institute for Transuranium Elements, PO Box 2340, 76125 Karlsruhe, Germany. 2011.
24. L. Koch, C. Apostolidis. Production of Ac-225 and application of the Bi-213 daughter in cancer therapy. Institute for Transuranium Elements. European Commission - JRC P. O. Box 23 40 - D-76125. Karlsruhe, Germany. 1999.
25. J.M. Longhino. Caracterización por cálculo del DEEN: ORI en ciclo de equilibrio. IT-47/RA10/0430-2-009. Rev. 0. 2013.
26. J. Gutiérrez. Producción de Radioisótopos en el RA-3. Rev. 0. Gerencia de Reactores de Investigación y Producción. Reactor RA-3. Centro Atómico Ezeiza. 2017.
27. R. Rey. Cálculo de actividad del agua en los sistemas de refrigeración primario y de piletas. IT-INV/RA-10/0140-3-024 Rev. 2. 2016.
28. J.M. Longhino. Caracterización por cálculo del DEEN: RI Iridio medicinal en ciclo de equilibrio. IT-47/RA10/0430-2-002. Rev. 0. 2013.
29. J.M. Longhino. Caracterización por cálculo del DEEN: RI Lutecio en ciclo de equilibrio. IT-47/RA10/0430-2-006. Rev. 0. 2013.
30. Bazzana, Cintas, Chiaraviglio, Longhino, Márquez y Weir. IT-47-RA-10-0120-3-003-0.

Anexos:

Anexo 1: Entrada de COUPLE y ORIGEN-S

Simulación de la irradiación de 1 mg de ^{235}U utilizando el flujo neutrónico de la posición ORI#2 durante 28 días, manteniendo la masa inicial del ^{235}U constante y despreciando el quemado de los productos ^{99}Mo e ^{131}I .

```

1 'This SCALE input file was generated by
2 'OrigenArp Version 6.1 Compiled on Thu Oct 7 11:31:00 2010
3 #shell
4 copy "C:\scale\data\origen_data\origen.rev01.decay.data" ft21f001
5 end
6
7 =couple
8
9 *****
10 * cross sections from 238-group JEFF-3.0/A *
11 * external code coupling *
12 * fission product yields for u and pu *
13 * 238 group calculation - external l-group cross sections input *
14
15 0$$$ a3 80 a6 33 e
16 1$$$ a3 1 a14 1 a16 8 0 238 e t
17 'graphite thermal flux spectrum (238group endf/b-vii)
18 9**
19 6.4838E-12 1.2469E-11 2.1875E-11 2.9890E-11 9.0859E-11 1.2662E-09
20 3.6938E-09 1.2868E-08 3.5939E-08 1.7941E-08 6.9718E-08 5.0824E-08
21 1.7840E-08 6.6886E-08 5.2268E-08 1.6404E-08 7.1797E-09 5.6931E-09
22 1.0696E-08 9.2650E-09 1.7311E-08 1.3751E-08 1.4318E-08 4.1070E-09
23 4.7244E-09 3.0941E-09 9.9394E-09 1.9792E-08 2.2010E-08 2.8746E-09
24 2.3271E-08 9.1259E-09 8.4243E-09 1.9709E-08 1.1072E-08 9.6286E-09
25 5.6369E-09 7.2355E-09 3.4015E-08 4.0096E-08 5.8464E-08 5.6838E-08
26 3.1660E-08 5.0556E-08 2.8581E-08 7.1426E-09 1.9073E-08 5.9812E-09
27 4.1036E-08 2.9841E-08 8.3748E-09 2.2213E-08 7.9765E-08 4.1542E-08
28 8.6798E-08 6.3703E-08 7.7253E-08 4.3613E-08 7.3481E-08 1.1656E-07
29 1.1135E-08 6.3365E-08 4.4241E-08 3.6150E-08 1.1360E-08 6.1554E-08
30 4.5755E-08 9.2851E-09 8.5647E-08 6.2604E-08 1.0901E-07 6.2814E-09
31 6.7465E-08 2.1019E-07 2.2900E-08 6.4203E-08 5.1175E-08 4.2735E-09
32 2.7880E-08 1.3229E-08 1.6492E-07 1.0062E-08 1.3586E-08 2.5666E-08
33 3.0473E-08 4.2593E-08 3.7800E-08 1.0330E-08 2.1245E-08 2.2401E-08
34 2.6647E-08 1.6064E-08 2.6792E-08 1.3360E-08 4.2561E-08 1.1048E-08
35 1.1661E-08 1.2193E-08 8.0288E-09 1.1703E-08 1.7152E-08 1.2299E-08
36 1.5807E-08 1.4109E-08 1.4165E-08 5.9804E-09 1.2678E-08 1.1692E-08
37 1.8059E-08 1.1881E-08 1.1340E-08 6.7041E-09 2.0402E-08 7.0700E-09
38 1.8233E-08 3.8112E-08 4.2385E-08 4.6645E-08 3.1282E-08 2.2363E-08
39 2.3548E-08 1.2077E-08 3.8807E-08 2.7668E-08 2.6706E-08 2.1645E-08
40 2.0349E-08 2.9830E-08 3.7890E-08 1.5833E-08 6.5341E-08 4.4594E-08
41 5.6555E-08 6.0747E-08 1.0752E-08 1.7787E-08 1.8829E-08 1.9795E-08
42 2.0254E-08 5.2795E-08 3.8342E-08 2.6465E-08 8.7091E-08 3.5858E-08
43 3.2111E-08 5.5697E-08 1.6368E-08 8.7675E-09 4.9946E-09 1.8696E-08
44 1.8625E-08 1.9790E-08 2.0325E-08 2.1787E-08 2.0006E-08 1.8921E-08
45 2.1982E-08 2.2927E-08 3.1399E-08 1.7384E-08 2.3790E-08 2.7771E-08
46 2.9307E-08 3.1144E-08 3.2894E-08 1.9404E-08 2.0319E-08 2.0720E-08
47 2.2059E-08 2.2983E-08 1.1102E-08 1.2080E-08 1.2181E-08 1.2702E-08
48 5.7959E-09 5.0959E-09 5.4287E-09 4.9528E-09 5.4441E-09 5.6845E-09
49 4.9432E-09 5.2658E-09 5.5112E-09 5.6128E-09 5.4863E-09 5.8178E-09
50 5.9735E-09 5.7911E-09 5.9414E-09 1.5143E-08 1.5084E-08 1.5552E-08
51 1.6346E-08 3.5010E-08 3.7139E-08 4.1230E-08 4.3819E-08 4.6944E-08
52 2.5148E-08 2.6941E-08 5.8122E-08 6.4577E-08 7.3004E-08 8.3081E-08
53 4.8027E-08 5.1691E-08 5.5867E-08 6.6045E-08 7.6404E-08 9.9700E-08
54 1.4000E-07 2.2086E-07 3.9374E-07 6.8911E-07 1.4084E-06 2.6432E-06
55 1.7059E-06 2.0674E-06 2.6794E-06 3.3212E-06 4.0560E-06 4.7732E-06
56 5.3181E-06 2.6243E-06 7.5655E-06 8.3090E-07 6.8240E-07 1.8398E-07
57 1.8263E-07 7.4977E-08 4.5468E-08 3.4550E-08 1.9912E-08 1.2624E-08
58 1.5434E-08 6.0961E-09 4.2875E-09 1.4743E-10 e t
59 15$$$ 5 t

```

```

59 71$$$ 922350 531310 420990 420991 531311
60 72$$$ 922350 102 102 102 102
61 73** 2.48E-07 0 0 0 0
62 t
63 done
64 end
65 #origens
66 0$$$ a4 33 a11 71 e t
67 RA10
68 3$$$ 33 a3 1 238 a10 1 1 1 a16 2 a33 0 e t
69 35$$$ 0 t
70 56$$$ 10 10 a3 1 a6 1 a10 0 a13 1 a15 3 a18 1 e
71 57** 0 a3 1e-05 1 e
72 95$$$ 0 t
73 Case 1
74 1e-009 MTU
75 59** 1.09181E+14 1.09181E+14 1.09181E+14 1.09181E+14 1.09181E+14
76 1.09181E+14 1.09181E+14 1.09181E+14 1.09181E+14 1.09181E+14
77 60** 2.95 5.9 8.85 11.8 14.75 17.7 20.65 23.6 26.55 28
78 66$$$ a1 2 a5 2 a9 2 e
79 73$$$ 922350
80 74** 0.001
81 75$$$ 2
82 t
83 56$$$ 0 0 a3 1 a10 1 e t
84 56$$$ 0 0 a3 1 a10 2 e t
85 56$$$ 0 0 a3 1 a10 3 e t
86 56$$$ 0 0 a3 1 a10 4 e t
87 56$$$ 0 0 a3 1 a10 5 e t
88 56$$$ 0 0 a3 1 a10 6 e t
89 56$$$ 0 0 a3 1 a10 7 e t
90 56$$$ 0 0 a3 1 a10 8 e t
91 56$$$ 0 0 a3 1 a10 9 e t
92 56$$$ 0 0 a3 1 a10 10 e t
93 54$$$ 4 a8 1 a11 0 e
94 56$$$ a2 3 a3 1 a6 1 a10 10 a14 3 a15 3 a17 2 e
95 57** 0 a3 1e-05 e
96 95$$$ 0 t
97 Case 2
98 1e-009 MTU
99 60** 0 72 168
100 61** f0.05
101 65$$$
102 'Gram-Atoms Grams Curies Watts-All Watts-Gamma
103 3z 1 0 0 3z 3z 3z 6z
104 3z 1 0 0 3z 3z 3z 6z
105 3z 1 0 0 3z 3z 3z 6z
106 81$$$ a7 200 e
107 84**
108t
10956$$$ 0 0 a3 1 a10 1 e t
11056$$$ 0 0 a3 1 a10 2 e t
11156$$$ 0 0 a3 1 a10 3 e t
11256$$$ f0 t
113end
114=opus
115LIBUNIT=33
116TYPARAMS=NUCLIDES
117UNITS=BEQUERELS
166 SYMNUC=I-131 Mo-99 end
118LIBTYPE=ALL
119TIME=HOURS
120NPOSITION=11 12 13 end
121end
122#shell
123copy ft71f001 "D:\CNEA\RA10\Trabajo Final\origen\simulacion-plot-U-ORI.f71"
124del ft71f001
125end

```