INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**Análise da pureza radioativa de iodo-125 produzido no reator nuclear IEA-R1
pelo método de espectrometria gama e comparação com a exigência
internacional**

RUANYTO WILLY CORREIA

**Dissertação apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Mestre em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Aplicações**

**Orientador:
Prof. Dr. Carlos Alberto Zeituni**

**São Paulo
2021**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**Análise da pureza radioativa de iodo-125 produzido no reator nuclear IEA-R1
pelo método de espectrometria gama e comparação com a exigência
internacional**

Versão Corrigida

Versão Original disponível no IPEN

RUANYTO WILLY CORREIA

**Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do Grau de
Mestre em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Aplicações**

**Orientador:
Prof. Dr. Carlos Alberto Zeituni**

**São Paulo
2021**

Fonte de Financiamento: CNEN

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho,
para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte

Como citar:

CORREIA, R. W. **Análise da pureza radioativa de iodo-125 produzido no reator nuclear IEA-R1 pelo método de espectrometria gama e comparação com a exigência internacional.** 2021. 53 p. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo. Disponível em: (data de consulta no formato: dd/mm/aaaa)

Ficha catalográfica elaborada pelo Sistema de geração automática da Biblioteca IPEN/USP,
com os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

CORREIA, RUANYTO WILLY

Análise da pureza radioativa de iodo-125 produzido no reator nuclear IEA-R1 pelo método de espectrometria gama e comparação com a exigência internacional / RUANYTO WILLY CORREIA; orientador Dr. CARLOS ALBERTO ZEITUNI. -- São Paulo, 2021.

53 p.

Dissertação (Mestrado) - Programa de Pós-Graduação em Tecnologia Nuclear (Aplicações) -- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2021.

1. iodo-125. 2. braquiterapia. 3. HPGe. 4. iodo-126. I. ZEITUNI, Dr. CARLOS ALBERTO, orient. II. Título.

RUANYTO WILLY CORREIA

Análise da pureza radioativa de iodo-125 produzido no reator nuclear IEA-R1 pelo método de espectrometria gama e comparação com a exigência internacional

A Banca examinadora abaixo-assinada aprova a Dissertação de Mestrado apresentado como parte dos requisitos para obtenção do Grau de Mestre em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear – Aplicações.

Aprovado em: 27 / mai / 2021

Prof.: Dr. Carlos Alberto Zeituni

Instituição: CETER – IPEN/USP

Prof.: Dr. Dib Karam Junior

Instituição: EACH-USP

Prof.: Dra. Maria Helena Tirollo Taddei

Instituição: LAPOC/CNEN

Dedico esse trabalho ao meu PAI,
pois ele é o verdadeiro merecedor
de todas minhas conquistas.

AGRADECIMENTO

Agradeço primeiramente a Deus pelo dom do conhecimento e pelo amparo nas horas difíceis. As respostas sempre chegaram a tempo.

Ao meu pai Juanito, minha mãe Valdirene, meu irmão Pedro, e meu avô Pedro, por todas as horas de alegria e motivação. Nós trilhamos esse caminho juntos, todos somos merecedores dessa conquista.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares pela oportunidade de execução deste trabalho.

À Universidade de São Paulo, que me propiciou um ambiente agradável para estudar e executar minha pesquisa.

Ao meu orientador Dr. Carlos Alberto Zeituni, pela oportunidade de trabalho, dedicação e carisma.

À Dra. Maria Elisa Chuery Martins Rostelato pelos ensinamentos, conselhos e colaboração.

À Gerente do Centro de Tecnologia das Radiações, Dra. Margarida Mizue Hamada e ao Gerente Adjunto de Produtos e Serviços Dr. Samir Luiz Somessari.

Aos colegas da Proteção Radiológica, BSc. Francisco Mario Feijó Vasques e Tec. José Laercio de Carvalho pela disponibilidade e atenção nos aspectos relacionados à manipulação de material radioativo, com a nossa segurança pessoal, do laboratório e do meio ambiente.

Aos colegas da secretaria do Centro de Tecnologia das Radiações, Claudia Regina Nolla e Marcos Cardoso da Silva pela colaboração e por toda a paciência que dispõem para suportar um ambiente de pesquisa.

À Comissão Nacional de Energia Nuclear pelos fomentos que financiaram minha pesquisa.

À todos os colegas de Pós-graduação do IPEN e à todos os colegas do Centro de Tecnologia das Radiações.

Agradeço a todos aqueles que, direta ou indiretamente, contribuíram para a realização deste trabalho.

E agradeço principalmente a todos aqueles que não atrapalharam e me deixaram trabalhar em paz.

RESUMO

CORREIA, RUANYTO W. Análise da pureza radioativa de iodo-125 produzido no reator nuclear IEA-R1 pelo método de espectrometria gama e comparação com a exigência internacional. **Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear – Aplicações) – IPEN/CNEN-SP. São Paulo.**

Com a finalidade de otimizar a produção, a irradiação e a quantificação de iodo-125 utilizado na confecção de sementes de iodo para braquiterapia, uma metodologia teórico-experimental foi aplicada baseada no procedimento proposto por COSTA, O. L., 2015, em que iodo-125 é obtido via ativação neutrônica no reator nuclear IEA-R1 a partir da irradiação de xenônio-124 encapsulado em compartimentos de alumínio. Após todo o preparo das amostras seguindo o processo descrito, iniciou-se o processo de irradiação sob o fluxo de nêutrons da ordem de 10^{13} nêutrons.cm⁻².s⁻¹ por diferentes períodos de tempo. Foram irradiadas seis cápsulas (duas contendo Xe-124 natural e quatro contendo Xe-124 enriquecido 99,9%) a fim de comparar a atividade total produzida variando o parâmetro de enriquecimento da amostra. Depois de serem irradiadas, as capsulas foram abertas e lavadas em meio alcalino aquecido para extração do iodo depositado nas paredes internas. As soluções geradas foram armazenadas em diferentes frascos padrões de acrílico, nomeadas e quantificadas via espectrometria gama com Detector de Germânio Hiperpuro (HPGe ORTEC modelo GEM-C5970-B) para determinação da pureza do radionuclídeo de interesse. Para calibração do HPGe foi aplicada uma metodologia experimental utilizando uma fonte de calibração certificada de bário-133 com atividade bem conhecida em que as eficiências dos fotopicos energéticos foram medidos entre 0 - 667 keV. As curvas de eficiência foram determinadas para uma faixa de energia que cobrissem toda a região de interesse espectral para o iodo-125 e seus subprodutos gerados na reação nuclear, além disso, elas foram construídas para diferentes distâncias da janela do detector e dimensões do frasco padrão de análise. No processo de ativação, iodo-126 foi formado como subproduto indesejado, esse radionuclídeo foi quantificado e sua atividade determinada. Finalmente, foi possível determinar a pureza radionuclídica do iodo-125 e compará-la com as exigências internacionais de qualidade que regulam a produção de medicamentos radioativos.

Palavras chave: iodo-125, braquiterapia, HPGe, iodo-126.

ABSTRACT

CORREIA, RUANYTO W. *Analysis of radioactive purity of iodine-125 produced in the nuclear reactor IEA-R1 by the gamma spectrometry method and comparison with the international requirement*. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear – Aplicações) – IPEN/CNEN-SP. São Paulo.

In order to optimize the production, irradiation and quantification of iodine-125 used in the manufacture of iodine seeds for brachytherapy, a theoretical-experimental methodology was applied based on the procedure proposed by COSTA, O. L, 2015, in which iodine-125 is obtained via neutron activation in the nuclear reactor IEA-R1 from the irradiation of xenon-124 encapsulated in aluminum compartments. After all the preparation of the samples following the described process, the irradiation process started under the neutron flux in the order of 10^{13} neutrons.cm⁻².s⁻¹ for different periods of time. Six capsules were irradiated (two containing natural Xe-124 and four containing 99.9% enriched Xe-124) in order to compare the total activity produced by varying the sample enrichment parameter. After being irradiated, the capsules were opened and washed in a heated alkaline medium to extract the iodine deposited on the inner walls. The generated solutions were stored in different standard acrylic flasks, named and quantified via gamma spectrometry with Hyperpure Germanium Detector (HPGe ORTEC model GEM-C5970-B) to determine the purity of the radionuclide of interest. To calibrate the HPGe, an experimental methodology was applied using a certified barium-133 calibration source with well-known activity in which the efficiency of the energy photopics were measured between 0 - 667 keV. The efficiency curves were determined for an energy range that covered the entire region of spectral interest for iodine-125 and its by-products generated in the nuclear reaction, in addition, the efficiency curves were constructed for different distances from the detector window and dimensions of the standard analysis flask. In the activation process, iodine-126 was formed as an unwanted by-product, this radionuclide was quantified and its activity determined. Finally, it was possible to determine the radionuclide purity of iodine-125 and compare it with the international quality requirements that regulate the production of radioactive drugs.

Key Words: iodine-125, brachytherapy, HPGe, iodine-126.

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 - Comparativo de duas fabricantes de iodo-125 ultrapuro.....	15
Tabela 2 - Parâmetros de irradiação das cápsulas preparadas.....	28
Tabela 3 – Fatores de diluição das amostras.....	37
Tabela 4 – Dados de calibração de eficiência a 3,1 cm da janela do detector por 600 ± 0,005 segundos.....	41
Tabela 5 – Dados de calibração de eficiência a 4,1 cm da janela do detector por 600 ± 0,005 segundos.....	41
Tabela 6 – Dados de calibração de eficiência a 5,1 cm da janela do detector por 600 ± 0,005 segundos.....	42
Tabela 7 – Dados de calibração de eficiência a 6,1 cm da janela do detector por 600 ± 0,005 segundos.....	42
Tabela 8 – Equações para ajuste polinomial de quarta ordem para distâncias de 3,1 e 4,1 cm do detector.	43
Tabela 9 – Equações para ajuste polinomial de quarta ordem para distâncias de 3,1 e 4,1 cm do detector.	44
Tabela 10 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEN001 a 4,1 cm de distância do detector medida por 600 ± 0,005 segundos.	45
Tabela 11 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEN002 a 4,1 cm de distância do detector medida por 600 ± 0,005 segundos.	46
Tabela 12 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEE004 a 4,1 cm de distância do detector medida por 600 ± 0,005 segundos.	46
Tabela 13 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEE005 a 4,1 cm de distância do detector medida por 600 ± 0,005 segundos.	46
Tabela 14 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEE006 a 4,1 cm de distância do detector medida por 1200 ± 0,005 segundos.	46
Tabela 15 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEE007 a 4,1 cm de distância do detector medida por 1200 ± 0,005 segundos.	47

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 - Rota de produção do iodo-125 em reator.	17
Figura 2 - Produção de iodo-125 a partir de um alvo de xenônio natural.....	18
Figura 3 – Exemplo de espectro de energia fornecido por um HPGe.....	19
Figura 4 - Exemplo de calibração de energia utilizando uma fonte de európio-152.	20
Figura 5 – Sobreposição de um pico de energia gama por uma Gaussiana para aproximação e estimativa de largura de pico.....	21
Figura 6 - Especificações dos valores utilizados no cálculo de largura de pico.	22
Figura 7 – Exemplificação do achatamento da largura de picos associado com o aumento da energia.	22
Figura 8 – Curva de eficiência para um detector de germânio do tipo-p.....	24
Figura 9 – Detalhes do cálculo do background. Nota: ROI – <i>Region of interest</i> , é a região demarcada para quantificação absoluta das contagens do fotopico.....	24
Figura 10 - Tubo de alumínio utilizado para fabricação das cápsulas, com e sem compressão.....	26
Figura 11 - Sistema de carregamento de gás.	27
Figura 12 – Cápsula carregada de gás xenônio pronto para irradiação.....	28
Figura 13 - Coelho com as cápsulas carregadas.	28
Figura 14 – <i>Hotcell</i> com telemanipuladores para abertura segura de amostra irradiada.	29
Figura 15 – Blindagens para armazenagem de material irradiado.....	30
Figura 16 - (a) Câmara de vácuo aberta com o sistema pré-montado. (b) Câmara de vácuo fechada e sistema operando.	30
Figura 17 – Medidor de vácuo operando a 6×10^{-2} mbar.	31
Figura 18 – Diagrama do Sistema de abertura das cápsulas de alumínio para recuperação do gás xenônio.	32
Figura 19 – Câmara de vácuo montada no interior da capela com 4 parafusos para fechamento.	32
Figura 20 – Anel de cobre substituído por anel de teflon.	33
Figura 21 – Câmara de vácuo aberta com as flanges desparafusadas e cápsula acomodada pronta para corte.	33
Figura 22 – Posicionamento da faca de corte sobre a cápsula irradiada.....	34

Figura 23 – Preparação final para fechamento da câmara e corte da cápsula.	34
Figura 24 – Acomodação da cápsula aberta no frasco de vidro com base de resina epóxi.....	35
Figura 25 – Pipetagem de alíquota de NaOH para lavagem das cápsulas.....	35
Figura 26 – Porta cápsulas e banho ultrassônico.	36
Figura 27 – Soluções prontas para análise.....	36
Figura 28 – Detector HPGe conectado ao reservatório de LN2.....	37
Figura 29 - Fonte de calibração pontual de bário-133.....	38
Figura 30 - Configuração do porta-amostras para medidas em posição fixa. (a) Janela do detector; (b) porta-amostras encaixada; (c) parte móvel do porta-amostras com a fonte afixada; (d) Encaixamento da parte móvel; (e) Fonte de calibração preparada para leitura.....	39
Figura 31– Espectro de energia do bário-133.....	40
Figura 32 – Curvas de ajuste dos pontos experimentais obtidos para calibração de eficiência.	43
Figura 33 – Espectro de energia para a amostra XEN002.....	47
Figura 34 – Espectro de energia para a amostra XEE006.....	48

LISTA DE EQUAÇÕES

Equação 1:

$$FWHM = 0.939 \frac{A}{C_T - C_0}$$

Equação 2:

$$\varepsilon = \frac{A_n}{S \cdot P_\gamma \cdot t}$$

Equação 3:

$$B = \left(\sum_{i=l}^{l+(n-1)} C_i + \sum_{i=h-(n-1)}^h C_i \right) \frac{h-l+1}{2n}$$

Equação 4:

$$A_g = \left(\sum_{i=l}^h C_i \right)$$

Equação 5:

$$A_{ag} = \left(\sum_{i=l+n}^{h-n} C_i \right)$$

Equação 6:

$$A_n = A_{ag} - \frac{B(h-l-(n-1))}{(h-l+1)}$$

Equação 7:

$$\sigma_{An} = \sqrt{A_{ag} + B \left(\frac{h-l-(n-1)}{2n} \right) \left(\frac{h-l-(n-1)}{(h-l+1)} \right)}$$

Equação 8:

$$\sigma_\epsilon = \sqrt{\left(\frac{\partial \epsilon}{\partial A_n} \right)^2 \sigma_{A_n}^2 + \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial S} \right)^2 \sigma_S^2 + \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial P_\gamma} \right)^2 \sigma_{P_\gamma}^2 + \left(\frac{\partial \epsilon}{\partial t} \right)^2 \sigma_t^2}$$

Equação 9:

$$S = \frac{A}{\varepsilon(E) \cdot P \cdot t}$$

LISTA DE ABREVIATURAS

CE – Comissão Europeia ou Captura Eletrônica

CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear

CTR - Centro de Tecnologia das Radiações

HEPA - High Efficiency Particulate Arresting Air, Filtro de Ar de Alta Eficiência de Retenção de Particulados

HPGe – High Purity Germanium, Espectrômetro gama com detector de germânio hiperpuro.

IAEA – International Atomic Energy Agency, Agência Internacional de Energia Atômica

IPEN – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares

USFDA – United States Food and Drug Administration, Administração de Remédios e Alimentos dos Estados Unidos

USP-NF - United States Pharmacopeial Convention – National Formulary, Convenção da Farmacopeia dos Estados Unidos – Formulário Nacional

LISTA DE SÍMBOLOS

a - ano

Al – alumínio

bar – unidade de medida de pressão equivalente a 105 pascals

b – barn, unidade para área, seção de choque; $1 \text{ b} = 10^{-28} \text{ m}^2$

Ba – bário

Bq – bequerel

Ci – curie

cm – centímetro

cpm – contagens por minuto

Cs – cézio

d – dêuteron, dia

h - hora

I – iodo

m – mili, minuto

min - minuto

n – nêutron, negativo

N₂L – nitrogênio líquido

NaI – iodeto de sódio

NaOH – hidróxido de sódio

p – próton, positivo

Pa – pascal, unidade de pressão

psi - pound-force per square inch, unidade de pressão

s – segundo

Sv – sievert

Ti – titânio

Xe – xenônio

°C – graus Celsius

α – alfa

β - beta

γ – gama

μ – mi, micro

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	14
2	OBJETIVOS	16
	2.1 Objetivos específicos	16
3	FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA	17
	3.1 Rota de Produção do Iodo-125	17
	3.2 Processo de Análise do Iodo-125 produzido	18
	3.2.1 Calibração de energia	19
	3.2.2 Calibração de largura de pico	20
	3.2.3 Calibração de eficiência absoluta	23
	3.2.3.1 Cálculo e consideração do <i>background</i>	24
4	METODOLOGIA	26
	4.1 Escolha da Cápsula	26
	4.2 Sistema de carregamento de gás	26
	4.3 Parâmetros de irradiação	28
	4.4 Abertura de coelho	29
	4.5 Abertura de cápsula e recuperação de gás	30
	4.6 Lavagem das cápsulas com NaOH e análise radionuclídica	35
	4.7 Diluição das amostras	37
	4.8 Calibração do HPGe	37
5	RESULTADOS	45
6	CONCLUSÃO	49
	REFERÊNCIAS	51

1 INTRODUÇÃO

O iodo-125 é um radionuclídeo utilizado para uma variedade de aplicações médicas devido às suas características nucleares favoráveis. Sua meia-vida de 59,4 dias (NUCLEIDE LARA, 2020) fornece vantagens logísticas para facilitar o fornecimento para demandas distantes do reator. Ele é muito utilizado em procedimentos de radioimunoensaio para estimar concentrações nanomolares de biomoléculas e na fabricação de sementes de iodo-125 para tratamento de câncer por braquiterapia (JOSHI, P.V. et al., 2012).

A braquiterapia pode ser utilizada de maneira eficaz contra o câncer de próstata, mama, colo do útero, cérebro ou junto à área que necessite de tratamento. É um procedimento semi-cirúrgico, em que fontes de radiação seladas são inseridas no corpo humano em contato direto e preciso com o tumor, irradiando uma pequena área localizada e evitando assim a exposição de tecidos saudáveis.

O iodo-125 produzido para utilização em pesquisas laboratoriais apresenta pureza radionuclídica maior ou igual a 99,1%, ou seja, a quantidade de contaminante deve ser de no máximo 0,9%, enquanto que a produção destinada ao uso clínico e cirúrgico exige métodos mais qualificados de purificação que alcancem a ordem de 99,9% de pureza (COSTA, O. L., 2015). Na produção de iodo-125 para uso no corpo humano são exigidos padrões de qualidade rigorosos, estes padrões estão estabelecidos em regulamentações como a 21CFR361.1 do USFDA (*United States Food e Drug Administration*), que trata de medicamentos radioativos para braquiterapia e pesquisa (USFDA, 2018), e a Diretiva Europeia 93/42/EEC modificada pela diretiva 2007/47/EC sobre dispositivos médicos (EC, 2018). Dos fabricantes que produzem o iodo-125 ultrapuro se destacam a Universidade canadense McMaster e a empresa alemã Eckert & Ziegler BEBIG, que apresentam as seguintes características de pureza radionuclídica:

Tabela 1 - Comparativo de duas fabricantes de iodo-125 ultrapuro.

McMaster	Eckert & Ziegler BEBIG
Iodo-125 > 99,9%	Iodo-125 $\geq$ 99,9%
Iodo-126 < 0,005%	Iodo-126 $\leq$ 0,005%
Césio-137 < 0,001%	Césio-137 < 0,0001%

Fonte: MACMASTER, 2018. ECKERT & ZIEGLER BEBIG, 2018. COSTA, O. L., 2015.

Atualmente, a Universidade McMaster é o único fornecedor no mundo de iodo-125, devido ao desligamento de dois reatores de pesquisas também produtores destes radionuclídeos no Uzbequistão e outro na Rússia. A McMaster Nuclear Operations conseguiu acompanhar a demanda global porque havia iodo-125 armazenado por precaução aos desligamentos, porém a situação será crítica nos próximos anos e pode-se entrar em um período de escassez do radionuclídeo (MCMMASTER, 2017).

Diante deste episódio a Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN, por meio do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN, está investindo no desenvolvimento, produção e distribuição de sementes de iodo-125 para suprimento de clínicas e hospitais em todo território nacional (IPEN, 2020). O iodo-125 é fabricado em poucos lugares do mundo, que disponham de um reator nuclear com um alto fluxo de nêutrons, e equipe técnica especializada que dominem a produção (COSTA, O. L., 2015).

2 OBJETIVOS

Analisar e avaliar a pureza radionuclídica de iodo-125 produzido pelo reator nuclear IEA-R1 – IPEN, a fim de avaliar o grau de contaminação por iodo-126.

2.1 Objetivos específicos

Produzir iodo-125 a partir do método de ativação neutrônica, irradiando xenônio-124 natural e enriquecido.

Fazer abertura segura do compartimento utilizado para irradiação e armazenamento do iodo produzido.

Obter o iodo-125 a partir de lavagem e extração química após o período de irradiação.

Armazenar de forma segura o iodo-125 produzido em frascos padrões de acrílico e nomeá-los para análise radionuclídica.

Quantificar a contaminação de iodo-126 presente no iodo-125, com o intuito de verificar a pureza radionuclídica do material e avaliar se ele segue o padrão de qualidade exigido pelas regulamentações internacionais ($\geq 99,9\%$ pureza).

3 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

3.1 Rota de Produção do Iodo-125

O iodo-125 é produzido em reator nuclear a partir da ativação do gás xenônio-124, que posteriormente decai por captura eletrônica e conversão interna para o telúrio-125 (Figura 1). No processo, emite fótons de 27 keV, 31 keV e 35 keV (NUCLEIDE LARA, 2020), com energia média de 29 keV. Em virtude da baixa energia média de emissão, seus fótons têm pouco poder de penetração (COSTA, O. L., 2015).

Figura 1 - Rota de produção do iodo-125 em reator.

Fonte: COSTA, O. L., 2015.

No decorrer da ativação nuclear, paralelo à formação de iodo-125 é produzido iodo-126 como subproduto. Isso ocorre devido à seção de choque para nêutrons térmicos do iodo-125 (892 barns) (IAEA, 2011) formado ser maior que a seção de choque do xenônio-124 (165 barns) (MUGHABGHAB, 2003) que ainda está presente na amostra sofrendo irradiação. Sendo assim a probabilidade do iodo-125 receber um nêutron e gerar um subproduto da reação nuclear é maior. É possível observar que a relação entre a quantidade produzida de iodo-125 e iodo-126 apresenta grande vantagem para o iodo-125 nas primeiras horas de irradiação, esta vantagem diminui gradativamente com o aumento do período de irradiação dado pelo consumo de xenônio-124 e formação de iodo-125 como pode ser visto na Figura 2 (MIRZADEH et al., 2003 – modificado por COSTA, O. L., 2015).

Ao fim da reação nuclear o mais indicado para eliminar a contaminação de iodo-126 seria esperar que ele decaísse e diminuísse sua atividade na amostra irradiada. Sua quantificação é indispensável, pois o iodo-126 é um contaminante indesejável da reação nuclear que apresenta altas energias de emissão gama (388,6 keV, 666,3 keV) e tempo de meia vida de 12,9 dias (NUCLEIDE LARA, 2018) o que faz com que tenha alta constante de decaimento. Essa energia proporciona altas doses radioativas às células do corpo humano, sendo considerada maléfica para utilização no tratamento por braquiterapia e fabricação de fontes seladas.

Após o processo de irradiação, o iodo-125 produzido é preparado e conduzido ao processo de análise de pureza radionuclídica por espectrometria gama com detector de germânio hiperpuro, a fim de quantificar os subprodutos oriundos da reação nuclear.

Figura 2 - Produção de iodo-125 a partir de um alvo de xenônio natural.

Fonte: MIRZADEH et al., 2003 – modificado por COSTA, O. L., 2015.

3.2 Processo de Análise do iodo-125 produzido

Os detectores de germânio de alta pureza (HPGe) são compostos por diodos semicondutores com uma estrutura p-i-n em que a região intrínseca (i) é sensível à radiação ionizante, particularmente raios-x e raios gama. Quando os fótons interagem com o material dentro do volume confinado de um detector, os portadores de carga (elétrons) são produzidos e arrastados pelo campo elétrico

para os eletrodos p e n. Essa carga, que é proporcional à energia depositada no detector pelo fóton de entrada, é convertida em um pulso de tensão por um pré-amplificador integral sensível à carga. Um analisador discrimina os pulsos que são quantificados em um espectro de energia na interface do software. O programa fornece a contagem acumulada dos decaimentos do material analisado em seus respectivos níveis de energia, esse número de decaimentos é utilizado para calcular a atividade (ORTEC, 2020). É necessário pré-calibrar o equipamento para determinar sua capacidade de detecção e eficiência.

Figura 3 – Exemplo de espectro de energia fornecido por um HPGe.

Fonte: GILMORE, G., R., 1995 – modificado pelo autor.

3.2.1 Calibração de energia

A finalidade da calibração de energia é fornecer a relação entre a posição do pico de energia no espectro e a energia de seu raio gama correspondente. A calibração é feita medindo o espectro de uma fonte que emite raios gama conhecidos com uma energia precisa e comparando-a com a posição do pico de energia de uma fonte desconhecida. Não importa se a fonte apresenta um ou muitos nuclídeos, seja qual for a fonte utilizada, é aconselhável assegurar que as energias de calibração cubram toda a faixa sobre a qual o espectrômetro será usado. Na prática, é necessário medir o espectro por tempo suficiente para obter

uma boa precisão estatística para os picos a serem usados na calibração. Normalmente, vários pontos são utilizados para ajustar uma linha reta de calibração de energia em um gráfico de energia por posições no espectro (canais) (GILMORE, G., R., 1995).

A linearidade integral de alguns amplificadores de espectroscopia apresenta cerca de 0,02% até 0,05% de erro dentro de sua faixa espectral, o que vale dizer que em uma calibração linear de energia em um espectro de 0 a 2000 keV, cada ponto de calibração apresentaria cerca de 1 keV de erro associado. Os erros são mais comumente aumentados nas extremidades da faixa de energia. Extrapolações além dos pontos calibrados podem conduzir a erros maiores (GILMORE, G., R., 1995). A Figura 3 apresenta um exemplo de calibração de energia utilizando uma fonte de calibração de európio-152.

Figura 4 - Exemplo de calibração de energia utilizando uma fonte de európio-152.

Fonte: GILMORE, G., R., 1995 – modificado pelo autor.

3.2.2 Calibração de largura de pico

O conhecimento da largura do pico de energia é fundamental para a medida de sua área e de seu posicionamento. O software controlador (MAESTRO, 2019) do sistema aproxima o pico de energia em análise à uma curva Gaussiana, de forma a levar em consideração a contagem absoluta da zona de baixa energia da parte inferior do pico. Essa consideração deve ser feita pois o nível contínuo no lado de baixa energia do pico é mais alto do que no lado de alta energia como pode ser notado na Figura 5.

A largura do pico depende de diversas incertezas estatísticas envolvidas no processo, tais como: processamento, coleta e transmissão de sinais para o sistema (GILMORE, G., R., 1995). Ela pode ser representada por 3 fatores:

- Incerteza do número de pares de elétrons-buracos criados pela interação gama;
- Incerteza de carga coletada;
- Ruído eletrônico.

Figura 5 – Sobreposição de um pico de energia gama por uma Gaussiana para aproximação e estimativa de largura de pico.

Fonte: GILMORE, G., R., 1995 – modificado pelo autor.

Para moldar o formato do pico o software (MAESTRO, 2019) utiliza-se a Equação 1 de distribuição Gaussiana, em que FWHM (*full width half at maximum*) é a largura do pico na metade da altura, A é a área do pico, C_T é a altura total do pico, C_0 é a altura do fundo. A Figura 6 ilustra essas especificações.

Figura 6 - Especificações dos valores utilizados no cálculo de largura de pico.

Fonte: GILMORE et al., 1995 – modificado pelo autor.

A calibração de largura de picos fornece a variação dessas larguras ao longo do espectro de energia. É de se esperar que com o aumento de energia seja observado um leve achatamento dos picos, resultando em uma dispersão homogênea crescente de pontos, que pode ser notado como exemplificação na Figura 7.

Figura 7 – Exemplificação do achatamento da largura de picos associado com o aumento da energia.

Fonte: GILMORE et al., 1995 – modificado pelo autor.

A calibração de largura de picos é intuitiva, uma vez que analisando a dispersão de pontos no gráfico é possível avaliar os picos com maior qualidade estatística e excluir picos com formas anômalas. O elétron quando sofre aniquilação ou fuga simples, apresenta como resultado um alargamento das bandas de energia, e conseqüentemente um achatamento e anomalia da largura dos picos de energia, como pode ser notado nas legendas da Figura 7. Com essa avaliação é possível notar eventuais distorções e diferenciar picos verdadeiros de picos soma.

3.2.3 Calibração de eficiência absoluta

O intuito da técnica é relacionar a área do pico de energia do espectro à quantidade de radioatividade que ela representa. Para isso é necessário conhecer a eficiência absoluta para cada faixa de energia do espectro. A calibração de eficiência relaciona a área do pico com o número de raios gama emitidos pela fonte e depende do arranjo geométrico da fonte e da proximidade entre a fonte e o detector.

A eficiência total do pico é o parâmetro de maior significância na espectrometria gama. O cálculo é dado pela razão entre o número de contagens líquidas detectados em um pico e as contagens emitidas pela fonte, segundo Equação 2, em que: A_n - Contagem da área líquida do pico subtraída de seu respectivo *background*. S - Atividade da fonte em Bq, corrigida para o tempo presente desde a data da calibração inicial. P_γ - Probabilidade de emissão de do fóton. t - Tempo de contagem.

É convencional construir uma curva de eficiência medindo muitos raios gamas e plotando a eficiência por energia. A Figura 8 mostra esse gráfico para um detector de germânio coaxial tipo-p utilizando escala logarítmica. Nesse tipo de plotagem, a relação é aproximadamente linear em grande parte do espectro, na faixa de 130 a 2000 keV. Abaixo de 130 keV, a eficiência cai devido à absorção pela janela do detector. Em energias acima de 3000 keV, a eficiência cai ainda mais rapidamente.

Figura 8 – Curva de eficiência para um detector de germânio do tipo-p.

Fonte: GILMORE et al., 1995 – modificado pelo autor.

3.2.3.1 Cálculo e consideração do *background*

Para o cálculo do *background*, o software (MAESTRO, 2019) contabiliza toda a área de fundo, canal por canal, e faz um ajuste de mínimo quadrado aproximando-se de uma função gaussiana. As larguras aferidas são interpoladas linearmente entre os canais subtraídos de fundo (JELENA K. N. *et al*, 2018).

Os componentes de espectro utilizados no cálculo do *background* estão ilustrados na Figura 9.

Figura 9 – Detalhes do cálculo do *background*. Nota: ROI – *Region of interest*, é a região demarcada para quantificação absoluta das contagens do fotopico.

Fonte: MAESTRO Manual, 2019.

A área do background é dada pela Equação 3, em que: B = a área de fundo
 l = o limite inferior do ROI; h = o limite superior do ROI; C_i = conteúdo do canal i
 n = número de pontos de fundo.

A área bruta é a soma de todos os canais marcados pelo ROI de acordo com a Equação 4, em que: A_g = as contagens brutas no ROI; l = o limite baixo do ROI; h = o limite alto do ROI; C_i = o conteúdo do canal i ;

A área bruta ajustada é a soma de todos os canais marcados pelo ROI, mas não utilizados em segundo plano de acordo com a Equação 5, em que: A_{ag} = as contagens brutas ajustadas no ROI; l = o limite baixo do ROI; h = o limite alto do ROI; C_i = o conteúdo do canal i ; n = o número de pontos de fundo.

A área líquida é a área bruta ajustada subtraída da área de fundo, calculada a partir da Equação 6.

A incerteza na área líquida é a raiz quadrada da soma dos quadrados da incerteza da área bruta ajustada, e do erro ponderado do fundo ajustado. A incerteza de fundo é ponderada pela razão entre a largura de pico ajustada e o número de canais utilizados, a fim de se calcular o fundo ajustado. Portanto, a incerteza líquida da área de pico é dada pela Equação 7, em que: A_{ag} = a área bruta ajustada; A_n = a área líquida; B = a área de fundo; l = o limite inferior do ROI
 h = o limite superior do ROI; n = o número de pontos de fundo.

A incerteza do pico de eficiência é calculada pela propagação da incerteza a partir da Equação 8:

4 METODOLOGIA

4.1 Escolha da Cápsula

Para aprisionamento e irradiação do gás xenônio foram utilizadas cápsulas de alumínio trefilado, sem costura, com liga 6061 T6 em formato de ampola com as duas extremidades comprimidas, conforme proposto por COSTA, O. L., 2015. A cápsula foi projetada com um canal no meio para facilitar a abertura, podendo atingir no máximo 60 mm de comprimento, diâmetro externo de 9,5 mm e espessura da parede de 1,6 mm.

Figura 10 - Tubo de alumínio utilizado para fabricação das cápsulas, com e sem compressão

Fonte: Autoria própria.

4.2 Sistema de carregamento de gás

Para preenchimento das cápsulas de alumínio foi utilizado o sistema de carregamento de gás projetado por COSTA, O. L., 2015 (Figura 11).

Figura 11 - Sistema de carregamento de gás.

Fonte: COSTA, O. L., 2015 – modificada pelo autor.

Neste sistema, inicialmente, acoplou-se a cápsula de alumínio selada em uma das extremidades (representado por E) na extremidade do sistema. Em seguida abriram-se as válvulas pneumáticas 1, 2 e 3; uma bomba de vácuo (representado na imagem por A) retirou todo o ar do sistema. O vácuo foi medido por um sensor de vácuo tipo Pirani (representado na imagem por B), e foi mantido até uma pressão de 6×10^{-2} mbar. Attingido o vácuo necessário, fechou-se a válvula número 1 e foi aberta a válvula 4, que controla a vazão do gás xenônio (natural ou enriquecido em Xe-124) que está no cilindro (representado por D). Por gradiente de pressão, o gás xenônio carregou todo o sistema, e sua pressão de carregamento foi medida utilizando um manômetro (representado por C). Attingida uma pressão de aproximadamente 1 bar, foi utilizado o cabeçote hidráulico de compressão (representado por F) para comprimir o tubo e selar a cápsula por completo. O gás remanescente no sistema foi recuperado utilizando uma *trap* fria com nitrogênio líquido no cilindro (D). As cápsulas finalizadas foram obtidas em semelhança a Figura 12:

Figura 12 – Cápsula carregada de gás xenônio pronto para irradiação.

Fonte: Autoria própria.

4.3 Parâmetros de irradiação

Depois de carregadas, as cápsulas foram seladas em um coelho e enviadas ao reator nuclear IEA-R1 para irradiação.

Figura 13 - Coelho com as cápsulas carregadas.

Fonte: COSTA, O. L., 2015 – modificada pelo autor.

Foram irradiadas 6 cápsulas (duas preenchidas com xenônio natural e quatro com xenônio enriquecido em Xe-124). Os parâmetros de irradiação foram dispostos na Tabela 2:

Tabela 2 - Parâmetros de irradiação das cápsulas preparadas.

	Fluxo de nêutrons (n.cm ⁻² .s ⁻¹)	Tempo de irradiação (h)	Dispositivo de irradiação/ Posição/Prateleira
XEN001	5,40E+13	23,70	Eira 15 – 34 A - 4
XEN002	6,81E+13	23,70	Eira 15 – 34 A - 5
XEE004	3,60E+13	21,87	Eira 15 – 24 A - 5
XEE005	3,60E+13	21,87	Eira 15 – 24 A - 6
XEE006	4,37E+13	8,00	Eira 14 – 34 B - 7
XEE007	4,57E+13	8,00	Eira 14 – 34 B - 6

*A amostra rotulada como XEE03 não foi utilizada no experimento devido à falha mecânica e vazamento.

Fonte: Autoria própria.

4.4 Abertura de coelho

Após irradiação, os coelhos foram abertos de forma segura dentro de uma *hotcell* com telemanipuladores conforme Figura 14.

Figura 14 – Hotcell com telemanipuladores para abertura segura de amostra irradiada.

Fonte: Autoria própria.

Entretanto, as cápsulas estavam emitindo uma dose de 5 mSv/h, valor acima dos limites estipulados pela norma CNEN-NN-3.01 (2005). Para permitir uma manipulação segura pelo operador, aguardou-se um prazo de cerca de 10 dias para decair a atividade dos metais constituintes da liga de alumínio da cápsula, e iniciar seu processo de abertura. Consequentemente, as cápsulas ficaram armazenadas nas blindagens especiais que vieram do reator nuclear (Figura 15). Após decaída a atividade da amostra para 0,5 mSv/h, o procedimento pôde ser realizado de forma segura com equipamento de proteção individual.

Figura 15 – Blindagens para armazenagem de material irradiado.

Fonte: Autoria própria.

4.5 Abertura de cápsula e recuperação de gás

Depois de esperado o prazo de decaimento, as cápsulas foram abertas utilizando o sistema de abertura e recuperação de gás projetado por COSTA, O. L., 2015, Figura 16:

Figura 16 - (a) Câmara de vácuo aberta com o sistema pré-montado. (b) Câmara de vácuo fechada e sistema operando.

Fonte: COSTA, O. L., 2015 – modificada pelo autor.

Na imagem do lado esquerdo, a cápsula (representado por A) foi acomodada dentro do compartimento B e inserida dentro da câmara de vácuo C. A tampa D foi utilizada para fechar o compartimento B e centralizar a faca E em

direção ao canal da capsula A para corte. O sistema de vácuo foi fechado e parafusado nos flanges. Na imagem da direita a bomba de vácuo A foi ligada à extremidade do sistema, a válvula B foi aberta e o vácuo foi medido pelo sensor E até atingir uma pressão de cerca de 6×10^{-2} mbar conforme indicado pela Figura 17.

Figura 17 – Medidor de vácuo operando a 6×10^{-2} mbar.

Fonte: Autoria própria.

Em seguida a válvula manual de vácuo D foi acionada, empurrando a faca contra o canal usinado na cápsula até quebrá-la. O gás xenônio remanescente, liberado na quebra da cápsula foi recuperado utilizando uma *trap* fria no tubo F, que removido do sistema, foi utilizado para carregar outras cápsulas e depois armazenado. A válvula C foi acionada ao final do processo para aliviar o sistema. Todo o processo foi realizado em capela de fluxo laminar com filtro HEPA. Nas Figuras 18, 19, 20 e 21 é possível observar o processo de abertura de cápsula visto de um ângulo interno e o sistema de recuperação de gás de forma mais elucidativa, além de um procedimento adaptativo para aprimorar o processo de fechamento da câmara.

O processo de fechamento das flanges com parafusos tornou-se um procedimento muito phdemorado. Portanto para diminuir o tempo de exposição do operador à dose da cápsula irradiada foi necessário fazer algumas adaptações no sistema. O anel de cobre que fazia a vedação das flanges foi trocado por um anel

de teflon, o que ocasionou maior vedação e consequentemente mais geração de vácuo. A troca do anel distribuiu uniformemente a pressão de contato entre as flanges, e fez com que uma menor quantidade de parafusos para fechamento da câmara de vácuo fosse utilizada, diminuindo o tempo de fechamento e a exposição à dose.

Figura 18 – Diagrama do Sistema de abertura das cápsulas de alumínio para recuperação do gás xenônio.

Fonte: COSTA, O. L., 2015.

Figura 19 – Câmara de vácuo montada no interior da capela com 4 parafusos para fechamento.

Fonte: Autoria própria.

Figura 20 – Anel de cobre substituído por anel de teflon.

Fonte: Autoria própria.

Figura 21 – Câmara de vácuo aberta com as flanges desparafusadas e cápsula acomodada pronta para corte.

Fonte: Autoria própria.

Figura 22 – Posicionamento da faca de corte sobre a cápsula irradiada.

Fonte: Autoria própria.

Figura 23 – Preparação final para fechamento da câmara e corte da cápsula.

Fonte: Autoria própria.

4.6 Lavagem das cápsulas com NaOH e análise radionuclídica

Após abertura da cápsula, foi feita a lavagem com solução de NaOH 0,01M pH 11,4 (pHmetro MS Tecnopon) a fim de extrair o iodo-125 gerado que ficou adsorvido nas paredes internas (a extração alcalina diminui a perda de iodo-125 por volatilização). Foi pipetada uma alíquota de 400 μ L de solução em cada parte da cápsula conforme Figura 25. As cápsulas foram acomodadas em frascos de vidro com suporte imobilizado de resina epóxi para evitar derramamento e contaminação na bancada.

Figura 24 – Acomodação da cápsula aberta no frasco de vidro com base de resina epóxi.

Fonte: Autoria própria.

Figura 25 – Pipetagem de alíquota de NaOH para lavagem das cápsulas.

Fonte: Autoria própria.

As cápsulas com suas respectivas soluções junto aos frascos de vidro foram imersas em banho ultrassônico (Limp Sonic, LS-1,8DA 40 kHz) à 50 °C por 15 minutos para viabilizar a reação química de formação de iodeto de sódio.

A representação do banho ultrassônico é mostrada na Figura 26.

Figura 26 – Porta cápsulas e banho ultrassônico.

Fonte: Autoria própria.

As soluções foram pipetadas da cápsula para recipientes padrões de acrílico e armazenadas para análise no HPGe.

Figura 27 – Soluções prontas para análise.

Fonte: Autoria própria.

4.7 Diluição das amostras

Devido à alta atividade das amostras foi necessário diluí-las em diferentes proporções conforme Tabela 3:

Tabela 3 – Fatores de diluição das amostras

Fator de diluição*	
XEN001	40
XEN002	40
XEE004	200
XEE005	200
XEE006	280
XEE007	280

*A diluição é necessária para aumentar a capacidade analítica do HPGe, altas atividades distorcem os resultados e muitas vezes estouram a escala do equipamento.

Fonte: Autoria própria.

4.8 Calibração do HPGe

O detector de germânio hiperpuro utilizado foi o da marca ORTEC, modelo GEM-C5970-B conectado a um reservatório de nitrogênio líquido com reciclo (LN2 dewar - MOBIUS), como pode ser visto na Figura 28.

Figura 28 – Detector HPGe conectado ao reservatório de LN2.

Fonte: Autoria própria.

O detector foi completamente configurado para o estudo em questão. O ganho do amplificador foi ajustado em 2,80 (0,7 para ganho fino e 4 para ganho grosso) e foi utilizado 8192 canais de resolução a uma alimentação de 3500V. A fonte de calibração escolhida foi uma fonte certificada de bário-133 da marca Amersham com 370 kBq de atividade fabricada em 01 de novembro de 1997 (Figura 29) que cobriu toda a faixa espectral de interesse para determinação de atividade do iodo-125 e iodo-126.

Figura 29 - Fonte de calibração pontual de bário-133.

Fonte: Autoria própria.

Foi projetado um porta-amostras para fixar a fonte de calibração e centralizá-la em relação à janela do detector, a fim de garantir que as análises sempre fossem realizadas na mesma posição, diminuindo possíveis interferências de movimentação da fonte e subentendendo sempre um mesmo ângulo sólido da fonte para o detector (NJINGA R. L. *et al*, 2011). A figura 30 ilustra essa configuração. O porta-amostras foi projetado em material de baixa densidade para não comprometer a eficiência de detecção.

Figura 30 - Configuração do porta-amostras para medidas em posição fixa. (a) Janela do detector; (b) porta-amostras encaixada; (c) parte móvel do porta-amostras com a fonte afixada; (d) Encaixamento da parte móvel; (e) Fonte de calibração preparada para leitura.
Fonte: Autoria própria.

O detector foi programado para fazer a contagem durante 600 segundos, obtendo o espectro de energias para o bário-133 conforme Figura 31. Foi efetuada a calibração de energia utilizando os picos encontrados no espectro conforme o procedimento da seção 3.2.1, estabelecendo para cada pico de energia um canal específico na biblioteca do software MAESTRO. Os picos principais do espectro utilizados para calibração foram elucidados na Figura 31.

Figura 31– Espectro de energia do bário-133.

Fonte: Autoria própria.

Com base na área de contagem formada por cada fotopico e sua respectiva probabilidade de emissão foi possível determinar a eficiência para cada fotopico do espectro através da Equação 2, em que: A é área líquida de contagem do pico (área total menos a área do background), S é a atividade da fonte certificada corrigida para a data da medida, P é a probabilidade de emissão de cada fotopico e t é o tempo total de contagem (GURRIARAN, R. *et al*, 2004).

A fonte de calibração foi medida em diferentes alturas em relação à janela do detector, sua atividade corrigida para o tempo presente de medição foi de 85424 ± 4271 Bq. Os dados obtidos foram elencados nas Tabelas 4, 5, 6 e 7:

Tabela 4 – Dados de calibração de eficiência a 3,1 cm da janela do detector por $600 \pm 0,005$ segundos.

Energia (keV)	Probabilidade de emissão do fotopico	Área líquida*	Eficiência*
35,2192	$0,2269 \pm 0,0041$	379463 ± 1160	$0,0326 \pm 0,0017$
53,1622	$0,0214 \pm 0,0006$	39891 ± 580	$0,0364 \pm 0,0022$
80,9979	$0,3331 \pm 0,0030$	617148 ± 1061	$0,0361 \pm 0,0018$
276,3989	$0,0713 \pm 0,0006$	76440 ± 403	$0,0209 \pm 0,0011$
302,8508	$0,1831 \pm 0,0011$	188678 ± 528	$0,0201 \pm 0,0010$
356,0129	$0,6205 \pm 0,0019$	584416 ± 820	$0,0184 \pm 0,0009$
383,8485	$0,0894 \pm 0,0006$	83801 ± 424	$0,0183 \pm 0,0009$

*A área líquida é quantificada através das contagens absolutas, acumuladas dentro de um fotópico e limitadas em suas extremidades por um marcador, formando um ROI – *Region of Interest*. A eficiência é calculada segundo as variáveis da Equação 2. Ambas estão acompanhadas de suas respectivas incertezas de medição. Tanto a eficiência quanto a probabilidade de emissão são dadas em porcentagens decimais

Fonte: Autoria própria.

Tabela 5 – Dados de calibração de eficiência a 4,1 cm da janela do detector por $600 \pm 0,005$ segundos.

Energia (keV)	Probabilidade de emissão do fotopico	Área líquida*	Eficiência*
35,2192	$0,2269 \pm 0,0041$	180341 ± 925	$0,0155 \pm 0,0008$
53,1622	$0,0214 \pm 0,0006$	23776 ± 481	$0,0217 \pm 0,0013$
80,9979	$0,3331 \pm 0,0030$	365665 ± 838	$0,0214 \pm 0,0011$
276,3989	$0,0713 \pm 0,0006$	51694 ± 336	$0,0141 \pm 0,0007$
302,8508	$0,1831 \pm 0,0011$	125209 ± 436	$0,0133 \pm 0,0007$
356,0129	$0,6205 \pm 0,0019$	387590 ± 666	$0,0122 \pm 0,0006$
383,8485	$0,0894 \pm 0,0006$	54497 ± 315	$0,0119 \pm 0,0006$

*A área líquida é quantificada através das contagens absolutas, acumuladas dentro de um fotópico e limitadas em suas extremidades por um marcador, formando um ROI – *Region of Interest*. A eficiência é calculada segundo as variáveis da Equação 2. Ambas estão acompanhadas de suas respectivas incertezas de medição. Tanto a eficiência quanto a probabilidade de emissão são dadas em porcentagens decimais

Fonte: Autoria própria.

Tabela 6 – Dados de calibração de eficiência a 5,1 cm da janela do detector por $600 \pm 0,005$ segundos.

Energia (keV)	Probabilidade de emissão do fotopico	Área líquida*	Eficiência*
35,2192	$0,2269 \pm 0,0041$	156683 ± 778	$0,0135 \pm 0,0007$
53,1622	$0,0214 \pm 0,0006$	16159 ± 416	$0,0147 \pm 0,0009$
80,9979	$0,3331 \pm 0,0030$	268608 ± 722	$0,0157 \pm 0,0008$
276,3989	$0,0713 \pm 0,0006$	38897 ± 291	$0,0106 \pm 0,0005$
302,8508	$0,1831 \pm 0,0011$	94728 ± 374	$0,0101 \pm 0,0005$
356,0129	$0,6205 \pm 0,0019$	292886 ± 575	$0,0092 \pm 0,0005$
383,8485	$0,0894 \pm 0,0006$	41024 ± 258	$0,0090 \pm 0,0005$

*A área líquida é quantificada através das contagens absolutas, acumuladas dentro de um fotópico e limitadas em suas extremidades por um marcador, formando um ROI – *Region of Interest*. A eficiência é calculada segundo as variáveis da Equação 2. Ambas estão acompanhadas de suas respectivas incertezas de medição. Tanto a eficiência quanto a probabilidade de emissão são dadas em porcentagens decimais

Fonte: Autoria própria.

Tabela 7 – Dados de calibração de eficiência a 6,1 cm da janela do detector por $600 \pm 0,005$ segundos.

Energia (keV)	Probabilidade de emissão do fotopico	Área líquida*	Eficiência*
35,2192	$0,2269 \pm 0,0041$	118596 ± 816	$0,0102 \pm 0,0005$
53,1622	$0,0214 \pm 0,0006$	13354 ± 371	$0,0122 \pm 0,0008$
80,9979	$0,3331 \pm 0,0030$	206790 ± 643	$0,0121 \pm 0,0006$
276,3989	$0,0713 \pm 0,0006$	30508 ± 270	$0,0084 \pm 0,0004$
302,8508	$0,1831 \pm 0,0011$	74736 ± 340	$0,0080 \pm 0,0004$
356,0129	$0,6205 \pm 0,0019$	231329 ± 511	$0,0073 \pm 0,0004$
383,8485	$0,0894 \pm 0,0006$	31769 ± 219	$0,0069 \pm 0,0004$

*A área líquida é quantificada através das contagens absolutas, acumuladas dentro de um fotópico e limitadas em suas extremidades por um marcador, formando um ROI – *Region of Interest*. A eficiência é calculada segundo as variáveis da Equação 2. Ambas estão acompanhadas de suas respectivas incertezas de medição. Tanto a eficiência quanto a probabilidade de emissão são dadas em porcentagens decimais

Fonte: Autoria própria.

Plotando o gráfico de eficiência por energia foi possível traçar uma curva polinomial de quarta ordem que melhor se ajustasse aos pontos experimentais.

Calibração de Eficiência do HPGe

Figura 32 – Curvas de ajuste dos pontos experimentais obtidos para calibração de eficiência.

Fonte: Autoria própria.

Cada ajuste foi representado por uma equação polinomial dado pela Tabela 8 e 9.

Tabela 8 – Equações para ajuste polinomial de quarta ordem para distâncias de 3,1 e 4,1 cm do detector.

Equação Geral* $y = B0 + B1*x^1 + B2*x^2 + B3*x^3 + B4*x^4$		
Plotagem	A 3,1 cm do detector	A 4,1 cm do detector
B0	$0,0243 \pm 0,0029$	$0,0049 \pm 0,00444$
B1	$(3,3936 \pm 0,8999)E-4$	$(4,1205 \pm 1,4621)E-4$
B2	$(-2,9373 \pm 0,8088)E-6$	$(-3,0528 \pm 1,3949)E-6$
B3	$(8,0606 \pm 2,8420)E-9$	$(8,1680 \pm 5,072)E-9$
B4	$(-7,3479 \pm 3,3631)E-12$	$(-7,5269 \pm 6,1068)E-12$
R ²	0,99707	0,96088

*A equação geral, bem como os coeficientes da equação foram calculados utilizando o software Origin.

Fonte: Autoria própria.

Tabela 9 – Equações para ajuste polinomial de quarta ordem para distâncias de 3,1 e 4,1 cm do detector.

Equação Geral	$y = B0 + B1*x^1 + B2*x^2 + B3*x^3 + B4*x^4$	
Plotagem	<u>A 5,1 cm do detector</u>	<u>A 6,1 cm do detector</u>
B0	0,0093 ± 0,0002	0,0065 ± 0,0014
B1	(1,5729 ± 0,0697)E-4	(1,4556 ± 0,4465)E-4
B2	(-1,1866 ± 0,0656)E-6	(-1,1486 ± 0,4237)E-6
B3	(3,0273 ± 0,2371)E-9	(3,1712 ± 1,5383)E-9
B4	(-2,6295 ± 0,2848)E-12	(-3,0227 ± 1,8509)E-12
R²	0,99984	0,98915

*A equação geral, bem como os coeficientes da equação foram calculados utilizando o software Origin.

Fonte: Autoria própria.

A disposição da fonte mais próxima da janela do detector (3,10 cm) foi a que apresentou a curva com melhor eficiência de detecção, uma vez que a atenuação da radiação se dá pelo inverso do quadrado da distância. Todas as análises foram efetuadas mantendo um tempo morto de 5%. Determinada a equação de eficiência do detector em função da energia de emissão para cada distância foi possível calcular a atividade das amostras segundo a Equação 9, em que: S é a atividade da amostra medida, A é área líquida de contagem do pico de interesse (área total menos a área do background), $\varepsilon(E)$ é a eficiência em função da energia do pico de interesse, P é a probabilidade de emissão do fotopico e t é o tempo total de contagem.

5 RESULTADOS

Feito a calibração de eficiência do equipamento foi possível determinar a atividade das amostras irradiadas. Devido à alta atividade, foi necessário diluí-las conforme fatores de diluição discutidos na Tabela 3. Além da diluição foi necessário analisar as amostras acima de 4 cm de altura da janela do detector para melhorar a eficiência de detecção. Abaixo dessa altura o espectro das amostras apresentava divergência de picos, e fenômenos de auto-soma e duplicação virtual de fotopicos.

Sendo assim, utilizou-se a curva de eficiência referente à calibração a 4,1 cm de altura da fonte. O fato de a amostra ser líquida e a fonte de calibração ser sólida não interferiram na qualidade da medição, uma vez que a atividade das amostras era alta o suficiente para apresentar seus fotopicos muito bem estabelecidos e discretos. Utilizando a Equação 9 foi possível calcular a atividade e determinar a pureza radionuclídica das amostras. Foram utilizados os picos de 35,4922 keV para determinação de eficiência do iodo-125 e 388,633 keV para determinação de eficiência do iodo-126 - valores dentro da faixa de cobertura da calibração.

Como as medidas se efetuaram em tempos diferentes, todas as atividades foram retroagidas para o tempo zero, que seria o tempo em que as mesmas saíram do reator. As Tabelas de 10 a 15 apresentam os resultados numéricos para atividade e pureza radionuclídica.

Tabela 10 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEN001 a 4,1 cm de distância do detector medida por $600 \pm 0,005$ segundos.

Nuclídeo	Área líquida	Eficiência*	Atividade (Bq)	Pureza (%)
125-I	164176 ± 820	$0,01603 \pm 0,0008$	$(145,8604 \pm 7,4472)E+5$	99,55
126-I	784 ± 51	$0,01169 \pm 0,0006$	$(65,1114 \pm 5,3730)E+3$	0,45

*As eficiências foram calculadas utilizando os polinômios ajustados de calibração a 4,1 cm da janela do detector. Foram utilizados os picos de energias de 35,4922 keV para o iodo-125 e 388,633 keV para o iodo-126 juntamente com suas probabilidades de emissão. Esses fotopicos de radiação gama foram escolhidos devido a sua menor atenuação no caminho óptico do detector. A escolha de fotopicos de raios-X traria desvios na eficiência de detecção.

Fonte: Autoria própria.

Tabela 11 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEN002 a 4,1 cm de distância do detector medida por $600 \pm 0,005$ segundos.

Nuclídeo	Área líquida	Eficiência*	Atividade (Bq)	Pureza (%)
125-I	219364 ± 902	$0,01603 \pm 0,0008$	$(194,7936 \pm 9,9303)E+5$	99,69
126-I	724 ± 52	$0,01169 \pm 0,0006$	$(59,9896 \pm 5,2765)E+3$	0,31

Fonte: Autoria própria.

Tabela 12 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEE004 a 4,1 cm de distância do detector medida por $600 \pm 0,005$ segundos.

Nuclídeo	Área líquida	Eficiência*	Atividade (Bq)	Pureza (%)
125-I	1039895 ± 3772	$0,01603 \pm 0,0008$	$(67,3459 \pm 3,4307)E+7$	99,85
126-I	443 ± 40	$0,01169 \pm 0,0006$	$(10,3991 \pm 1,0772)E+5$	0,15

Fonte: Autoria própria.

Tabela 13 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEE005 a 4,1 cm de distância do detector medida por $600 \pm 0,005$ segundos.

Nuclídeo	Área líquida	Eficiência*	Atividade (Bq)	Pureza (%)
125-I	799351 ± 3132	$0,01603 \pm 0,0008$	$(52,9268 \pm 2,6973)E+7$	99,84
126-I	329 ± 26	$0,01169 \pm 0,0006$	$(85,5014 \pm 8,0313)E+4$	0,16

Fonte: Autoria própria.

Tabela 14 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEE006 a 4,1 cm de distância do detector medida por $1200 \pm 0,005$ segundos.

Nuclídeo	Área líquida	Eficiência*	Atividade (Bq)	Pureza (%)
125-I	1047537 ± 1756	$0,01603 \pm 0,0008$	$(24,0952 \pm 1,2250)E+7$	99,98
126-I	500 ± 38	$0,01169 \pm 0,0006$	$(36,3711 \pm 3,3243)E+3$	0,02

Fonte: Autoria própria.

Tabela 15 - Atividade de iodo-125 e iodo-126 presentes na amostra XEE007 a 4,1 cm de distância do detector medida por $1200 \pm 0,005$ segundos.

Nuclídeo	Área líquida	Eficiência*	Atividade (Bq)	Pureza (%)
125-I	1042255 ± 1750	$0,01603 \pm 0,0008$	$(23,9882 \pm 1,2196)E+7$	99,98
126-I	514 ± 37	$0,01169 \pm 0,0006$	$(37,4938 \pm 3,3028)E+3$	0,02

Fonte: Autoria própria.

Para fins de comparação entre as atividades das amostras natural e enriquecida foi levantado o espectro da amostra XEN002 e da amostra XEE006. Observa-se que para o pico de maior magnitude para ambos os espectros, a amostra com xenônio natural apresentou cerca de 200000 contagens, enquanto a amostra com xenônio enriquecido apresentou aproximadamente 1400000 contagens. Isso mostra a necessidade de diluição das amostras enriquecidas, uma vez que estavam com a atividade alta ao ponto de estourar o limite de detecção do espectrômetro.

Figura 33 – Espectro de energia para a amostra XEN002.

Fonte: Autoria própria.

Figura 34 – Espectro de energia para a amostra XEE006.

Fonte: Autoria própria.

6 CONCLUSÃO

Através da interpretação dos resultados foi possível chegar as seguintes conclusões: quando se irradia xenônio natural (amostra XEN001 e XEN002) observa-se menor produção de iodo-125, visto que a quantidade de xenônio 124 disponível para ativação neutrônica é baixa (0,0952%); também se forma pouco contaminante iodo-126 por conta da baixa produção de iodo-125. Utilizando-se xenônio enriquecido ($Xe-124 > 99,9\%$) observou-se maior produção de iodo-125, porém, quando irradiado por cerca de 22h as amostras XEE004 e XEE005 apresentaram maior quantidade de contaminante em iodo-126 em relação às amostras XEE006 e XEE007 que ficaram apenas 8 horas no reator, o que por sua vez comprova que tempos extensos de irradiação, aumentam a formação do subproduto iodo-126, como também pode ser visto na Figura 2. O reator necessita de um tempo ótimo para desligamento para evitar aquela formação indesejada.

As amostras XEE006 e XEE007 foram as únicas que apresentaram pureza radionuclídica acima do padrão mínimo de qualidade aceitável pelas regulamentações internacionais, isso mostra novamente a importância do controle do tempo de irradiação.

O sistema utilizado para fazer o selamento, abertura e lavagem das cápsulas foram adaptados e demonstraram grande reprodutibilidade em relação aos resultados alcançados por COSTA, O. L., 2015. O sistema utilizado para análise radionuclídica com detector de germânio hiperpuro também apresentou ótimos resultados, comparando-se aos encontrados por COSTA, O. L., 2015, através de uma eficiente calibração absoluta e otimização das configurações do detector para o estudo em questão.

Toda a abordagem utilizada contribui imensamente para fabricação própria e nacionalização do iodo-125, uma vez que sua utilização se dá em aplicações na área medicinal para produção de medicamentos.

Para trabalhos futuros, indica-se o desenvolvimento de um processo para produção de iodo-125 em larga escala, através de um procedimento contínuo construído dentro da piscina do reator nuclear, em que um sistema de bombas promove a circulação de gás $x-124$ em um sistema hidráulico para irradiação. A

medida que iodo-125 vai sendo formado, é injetado no sistema solução de NaOH para lavagem da tubulação e recuperação do iodo adsorvido nas tubulações do sistema.

REFERÊNCIAS

CNEN - COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. CNEN-NN-3.01
Diretrizes básicas de proteção radiológica. CNEN, 2005.

COSTA, O. L. Estudo e desenvolvimento de uma nova metodologia de produção de iodo-125 a partir de xenônio-124 pelo método de ativação neutrônica, 2015. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

ECKERT & ZIEGLER BEBIG. Prostate Seed Brachytherapy. Disponível em: https://www.bebig.com/home/products/prostate_seed_brachytherapy/. Acesso em 11 de abril de 2020.

EC – European Commission. Medical Devices. Disponível em: <<https://eur-lex.europa.eu/legal-content/EN/TXT/HTML/?uri=CELEX:31993L0042&from=EN>>. Acesso em: 22 set. 2020.

GILMORE, G. AND HEMINGWAY, J., D. “Practical Gamma-Ray Spectrometry”. New York: John Wiley & Sons Ltd. 1995.

GURRIARAN, R., BARKER, E., BOUISSET, P., CAGNAT, X. AND FERGUSON, C. (2004) Calibration of a very large ultra-low background well-type Ge detector for environmental sample measurements in an underground laboratory. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 524, 264-272. <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2004.02.001>.

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY Technical Reports Series n. 473 Nuclear Data for the Production of Therapeutic Radionuclides. Technical editors: Quaim, S. M., Tárkányi, F., Capote, R. Vienna, Austria: IAEA, 2011.

IPEN - INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES. Produtos e Serviços comercializados pelo IPEN. Disponível em:

<https://www.ipen.br/portal_por/conteudo/institucional/arquivos/ipenprodutos_servicos_comercializados.doc>. Acesso em: 20 set. 2020.

JELENA K. N., MILICA R., DRAGANA T., MARIJA J., NATAŠA S., GORDANA P., AND IVANA V. Semiempirical Efficiency Calibration in Semiconductor HPGe Gamma-Ray Spectroscopy. Hindawi. Journal of Spectroscopy. Volume 2018, Article ID 5392658, 8 pages. <https://doi.org/10.1155/2018/5392658>.

JOSHI, P. V.; JAGADEESAN, K. C.; MANOLKAR, R. B.; MATHAKAR, A. R.; THAKARE, S. V.; PILLAI, M.R.A. Production of I-125 from Neutron Irradiation of Natural Xe Gas and a Wet Distillation Process for Radiopharmaceutical Applications. Industrial & Engineering Chemistry Research, 2012.

MAESTRO, MCA EMULATOR. Software use's manual. Software version 6.0. Advanced Measurement Technology, Inc. ORTEC, a subsidiary of AMETEK, Inc. United States, 2019.

MCMaster University. Radioisotopes Iodine-125. Disponível em: <<http://mnr.mcmaster.ca/index.php/services/radioisotopes-.html>>. Acesso em: 26 set. 2020.

MCMaster University. Radioisotopes Iodine-125. Disponível em: <<https://nuclear.mcmaster.ca/story/supplying-the-globe-with-medical-isotopes/>>. Acesso em: 13 nov. 2020.

MIRZADEH, S.; MAUSNER, L. F.; GARLAND, M. A. Reactor-Produced Medical Radionuclides. In: RÖSCH, F.; VÉRTES, A.; NAGY, S.; KLENCŠÁR, Z. Radiochemistry and Radiopharmaceutical Chemistry in Life Sciences. Dordrecht, The Netherlands, 2003. p. 1-44. v. 4: .Handbook of Nuclear Chemistry.

MUGHABGHAB, S. F. Thermal Neutron Capture Cross Sections, Resonance Integrals and g-Factors, INDC(NDS)-440, IAEA, Vienna, 2003. Disponível em:

<<http://www-nds.iaea.org/publications/indc/indc-nds-0440.pdf>>. Acesso em: 12 jan. 2021.

NJINGA R. L., EWA I. O. B., JONAH S. A., BABA A., AHMED Y.A., AGBO G. A., EBOBENOW J., NASIRU R. Alternative Approach for Efficiency Data Generation in Neutron Activation Analysis. International Journal of Applied Science and Technology. Vol. 1 No. 5; September 2011

NUCLEIDE LARA. Atomic Nuclear Data. Disponível em: <<http://www.nucleide.org/Laraweb/index.php>> . Acesso em 21 fev. 2021.

ORTEC PROFILE. HPGe Photon Detector Product Configuration Guide. Disponível em: <<https://www.ortec-online.com/media/ametekortec/brochures/profile.pdf>>. Acessado em 11 dez. 2020.

USFDA – United States Food and Drug Administration. Medical Devices. Disponível em: <<https://www.accessdata.fda.gov/scripts/cdrh/cfdocs/cfcfr/CFRSearch.cfm?FR=361.1>>. Acesso em: 01 dez. 2020.

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Diretoria de Pesquisa, Desenvolvimento e Ensino
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária CEP: 05508-000
Fone/Fax(0XX11) 3133-8908
SÃO PAULO – São Paulo – Brasil
<http://www.ipen.br>

O IPEN é uma Autarquia vinculada à Secretaria de Desenvolvimento, associada à Universidade de São Paulo e gerida técnica e administrativamente pela Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão do Ministério da Ciência, Tecnologia, Inovações e Comunicações.