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

Estudo e desenvolvimento de uma nova metodologia de produção de iodo-125 a partir de xenônio-124 pelo método de ativação neutrônica

OSVALDO LUIZ DA COSTA

**Tese apresentada como parte
dos requisitos para a obtenção
do grau de Doutor em Ciências
na Área de Tecnologia Nuclear –
Aplicações**

**Orientadora: Dra. Maria Elisa C.
M. Rostelato**

SÃO PAULO

2015

Dedico este trabalho,

Ao meu pai, José (In Memoriam),

À minha mãe, Maria,

À minha esposa, Anne, e

À minha filha, Ana Beatriz.

Agradeço,

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

À **Universidade de São Paulo**, na qual eu completo meu ciclo acadêmico com este trabalho, aquela que me propiciou um ambiente agradável e desafiador nas quatro vezes em que fui aluno desta instituição.

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

À minha orientadora, **Dra. Maria Elisa Chuery Martins Rostelato**.

Aos meus colegas do Laboratório de Produção de Fontes para Radioterapia, **Dr. Carlos Alberto Zeituni**, **Dr. Anselmo Feher** e **MSc. João Augusto Moura** pela *expertise* neste tema, e pela ajuda providencial e bem-vinda sempre que houve necessidade no decorrer deste trabalho.

Ao colega do Laboratório de Produção de Fontes para a Medicina Nuclear, **MSc. Helio Rissei Nagatomy** pela ajuda no projeto da fonte radioativa planar de iodo-125.

Aos companheiros de pós-graduação e também futuros doutores, **MSc. Daiane Cristini Barbosa de Souza** e **BSc. Rodrigo Tiezzi** pela inestimável ajuda durante os principais experimentos de produção e análise, seja no encapsulamento do gás com nitrogênio líquido, na manipulação de material radioativo na capela de fluxo laminar, nas medições das amostras na câmara de ionização e detector de iodeto ou nos registros, agradeço de coração toda a assistência dispensada ao longo deste trabalho.

Aos colegas de pós-graduação, **MSc. Bruna Teiga Rodrigues**, **MSc. Marcos Antonio Gimenes Benega** e **MSc. Fernando dos Santos Peleias Jr.** por compartilharmos objetivos acadêmicos comuns e com isso ajudarmos a fortalecer o grupo de braquiterapia com mais trabalhos e publicações na área, aos também colegas **MSc. Carla Daruich Souza**, e **MSc. Eduardo Santana de Moura** que mesmo distantes estudando em outros países mantiveram-se próximos ao grupo de braquiterapia.

Aos colegas da Oficina Mecânica do CTR, **Tec. Edinir Antonio Pereira** pela assistência em questões de usinagem e **Tecg. Vagner Fernandes**, que está sempre buscando inspiração numa atmosfera onde o conhecimento

exala, pela ajuda nas montagens e soldas de componentes e dispositivos muito utilizados neste trabalho.

Aos colegas da Proteção Radiológica, **BSc. Francisco Mario Feijó Vasques**, **Tec. Estanislau Borges Vianna** 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.

Aos colegas da Gerência de Aceleradores Cíclotron, **Dr. Henrique Barcellos de Oliveira**, **Dr. Luiz Carlos do Amaral Sumiya**, **Dr. Valdir Sciani**, **MSc. Hylton Matsuda**, **Tec. Mauro Veiga Fernandes**, **Tec. Clovis dos Santos**, **Tecg. Adilson Guerrero**, **Tec. Tarcisio Souza Alves**, **Tec. Vanderlei Inocêncio Souto**, **Tecg. Antonio Augusto Zanchetta**, e **Tec. Decio Borges de Souza** pela cooperação no fornecimento do gás xenônio enriquecido em xenônio-124, do gás xenônio natural, das válvulas para gases de alta pureza da Swagelok, das conexões Swagelok, dos tubos de aço inox, e eu preciso parar por aqui, senão algum membro da banca examinadora vai sugerir a transferência deste parágrafo para a seção de materiais e métodos.

Ao **Dr. Marcelo Francis Máduar** da Gerência de Metrologia das Radiações, por toda ajuda na análise radionuclídica do iodo, por compartilhar seu laboratório e sua vasta experiência em espectroscopia gama, que colaborou para tornar este trabalho mais valioso como pesquisa acadêmica.

À **Dra. Neuza Taeko Okasaki Fukumori** do Centro de Radiofarmácia, pela disponibilização do laboratório de controle de qualidade dos radiofármacos, pelo compartilhamento do *know-how* adquirido ao longo de décadas de análise radioquímica do iodo na produção de radiofármacos, uma agradecimento especial também para a **Dra. Margareth Mie Nakamura Matsuda** e ao **Tec. Marcelo** que assinam o formulário de controle radioquímico.

Ao colega **BSc. Adilson Abolafio**, do Centro de Radiofarmácia, que carrega consigo o Laboratório de Aferição e Calibração do IPEN, que com sua grande experiência em calibração de medidores de pressão, foi o primeiro a levantar questionamentos sobre o processo de selamento da cápsula de alumínio

(que ele julgava improvável de funcionar), mas também foi o primeiro a me ajudar a testar a estanqueidade dos selamentos, e para a minha felicidade os resultados se sobrepuseram ao ceticismo inicial.

Ao colega **MSc. Enocles Melo de Oliveira**, do Centro de Radiofarmácia pelo fornecimento do medidor e dos sensores de vácuo, sem os quais não seria possível o funcionamento do sistema de carga e descarga do gás.

Ao **MSc. Francisco Jose Breda**, do Centro de Ciência e Tecnologia dos Materiais, pelas sempre produtivas discussões e sugestões sobre o projeto, que quase sempre terminavam com um desenho num guardanapo da lanchonete da Faculdade de Odontologia da USP.

A todos os colegas do Reator Nuclear IEA-R1, que mesmo sem saber, contribuíram de forma incomensurável com este trabalho, os membros do Comitê de Segurança Interna do Reator Nuclear IEA-R1, **Dr. Adolfo Marra Neto**, **Dr. Jose Roberto Berreta**, e todos que assinaram no Pedido de Irradiação no Reator IEA-R1 número 176 de 2015, os senhores **Paulo, Onofre, Iglesias, Julio, Mauro, Davilson, Nohara e Edinir**.

A todos os colegas da Secretaria de Pós-graduação do IPEN, em especial para **MSc. Ana Claudia Martinelli Feher** e **Paulo Albino Balan Junior** por todo o suporte necessário para sobreviver a todas as etapas do doutorado.

A todos os colegas do Centro de Tecnologia das Radiações.

A todas as pessoas que de alguma maneira contribuíram para a execução deste trabalho.

Limitações são fronteiras criadas apenas pela nossa mente.
Provérbio chinês.

ESTUDO E DESENVOLVIMENTO DE UMA NOVA METODOLOGIA DE PRODUÇÃO DE IODO-125 A PARTIR DE XENÔNIO-124 PELO MÉTODO DE ATIVAÇÃO NEUTRÔNICA

Osvaldo Luiz da Costa

RESUMO

Neste trabalho foi desenvolvida uma nova metodologia de produção de iodo-125, que resultou na primeira produção deste radionuclídeo no Brasil. Cápsulas de alumínio foram projetadas, fabricadas e avaliadas para que suportassem condições de pressão, temperatura e fluxo de nêutrons no reator nuclear IEA-R1 do IPEN sem a ocorrência de liberação de material radioativo. Foram projetados, desenvolvidos e fabricados sistemas de carregamento, descarregamento e recuperação dos gases para a manipulação do gás xenônio e do iodo. Foi desenvolvido um novo método de lavagem da cápsula, para dissolução do iodo-125 adsorvido nas paredes, por meio de imersão em banho ultrassônico. Foram irradiadas três cápsulas no reator nuclear IEA-R1, por um período de aproximadamente 60 h contínuas, a um fluxo de nêutrons de $5,5 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Foi produzido um total de 13,53 GBq (365,73 mCi) de iodo-125, e o único contaminante encontrado foi o radionuclídeo iodo-126. Na análise radioquímica, pelo método de cromatografia em papel ascendente, o iodo-125 em solução de NaOH apresentou percentual de iodeto acima de 98%, superior à exigência da farmacopeia americana para soluções de iodo radioativo que é de 95%. Para a análise radionuclídica foi desenvolvida uma fonte planar, a base de resina epoxídica, para a contagem do iodo-125 em detector de germânio de alta pureza. A correlação entre o iodo-125 e o iodo-126 produzido apresentou valores entre 0,5 e 0,7% após um período de decaimento de 10 d, grau de pureza suficiente para a utilização em técnicas de radioimunoensaio.

STUDY AND DEVELOPMENT OF A NEW METHODOLOGY FOR PRODUCTION OF IODINE-125 FROM XENON-124 THROUGH THE METHOD OF NEUTRON ACTIVATION

Osvaldo Luiz da Costa

ABSTRACT

A new methodology of iodine-125 production was developed in this work, performing the first production of iodine-125 in Brazil. Aluminium capsules were designed, manufactured and evaluated to support condition as pressure, temperature and neutron flux in IEA-R1 Nuclear Reactor without releasing radioactive material into reactor pool. It was designed, developed and manufactured systems to load, unload and recover gases to manipulate the xenon gas and the iodine. A new method of capsule rinsing was developed, to dissolve the iodine-125 adsorbed in the walls, using immersion in ultrasonic bath. Three capsules were irradiated in IEA-R1 Nuclear Reactor for approximately 60 h continuous, at a neutron flux of $5.5 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. It was produced a total of 13.53 GBq (365.73 mCi) of iodine-125 and the radionuclide iodine-126 was the only contaminant found. In radiochemical analysis, by ascending paper chromatography method, the iodine-125 in NaOH solution presented a percentage over 98%, higher than American pharmacopeia requirements for iodine radioactive solutions which is 95%. A planar source was developed, based on epoxy resin, to iodine-125 radionuclidic analysis in high purity germanium detector. The correlation between iodine-125 and iodine-126 produced showed values between 0.5 and 0.7% after a 10 d decay period, a purity grade enough to apply in radioimmunoassay techniques.

SUMÁRIO

	Página
1. INTRODUÇÃO	20
2. OBJETIVOS	24
2.1 Objetivo geral	24
2.2 Objetivos específicos	24
2.3 Originalidade	24
3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS E REVISÃO DA LITERATURA	26
3.1 Xenônio	26
3.2 Iodo	28
3.3 Rotas de produção do iodo-125	30
3.4 Dados nucleares do iodo-125	33
3.5 Produção de iodo-125 na Hungria	37
3.6 Produção de iodo-125 no Uzbequistão	42
3.7 Produção de iodo-125 na Universidade do Texas A&M	42
3.8 Produção de iodo-125 na Universidade McMaster	46
3.9 Produção de iodo-125 na Índia	48
3.10 Produção de iodo-125 na Universidade da Califórnia - Davis	49
3.11 Patente sobre produção de iodo-125 a partir da irradiação de tório-232 ou urânio-238	59
3.12 Patente sobre produção de esferas com iodo-125	60
3.13 Patente coreana sobre cápsula de irradiação de xenônio-124	61
4. METODOLOGIA	64
4.1 Roteiro de trabalho	64
4.1.1 Teste de pressão com nitrogênio	68
4.1.2 Teste de pressão com bomba hidráulica manual	69
4.1.3 Sistema de carga do gás	70
4.1.4 Teste de estanqueidade	71
4.1.5 Características do gás xenônio	73
4.1.6 Procedimento de fabricação das cápsulas	74

4.1.7 Irradiação das cápsulas	75
4.1.8 Abertura da cápsula e recuperação do gás.....	75
4.1.9 Lavagem da cápsula	77
4.1.10 Análise radioquímica	79
4.1.11 Análise radionuclídica	80
4.1.12 Procedimento do processo de abertura, lavagem da cápsula e coleta de amostras para análise radionuclídica e radioquímica	84
5. RESULTADOS E DISCUSSÃO	86
5.1 Compressão do tubo de alumínio e tratamento térmico.....	86
5.2 Resultados dos testes de pressão	87
5.3 Fabricação das cápsulas de alumínio	87
5.4 Detecção de vazamento com espectrômetro de massa de hélio	88
5.5 Montagem do Sistema de carga de gás e preenchimento das cápsulas com xenônio	91
5.6 Irradiação das cápsulas no reator nuclear IEA-R1, radionuclídeos gerados e taxa de dose.....	94
5.7 Montagem do Sistema de abertura da cápsula de alumínio e recuperação do gás	97
5.8 Extração do iodo-125 das cápsulas	99
5.9 Resultados e discussão da análise radioquímica.....	103
5.10 Fabricação e controle de qualidade das fontes planares	107
5.11 Resultados e discussão da análise radionuclídica	110
5.12 Comparação entre as produções de iodo-125	116
6. CONCLUSÕES	120
7. TRABALHOS FUTUROS	122
ANEXO A – Formulário da Análise Radioquímica.....	124
ANEXO B – Relatórios da Análise Radionuclídica	126
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	151

LISTA DE TABELAS

	Página
TABELA 1 – Isótopos de xenônio relevantes para a produção de iodo-125	27
TABELA 2 – Isótopos de iodo relevantes para este trabalho	29
TABELA 3 – Histórico do cálculo da seção de choque de captura para nêutrons térmicos do xenônio-124	33
TABELA 4 – Histórico do cálculo da integral de ressonância de captura do xenônio-124	34
TABELA 5 – Histórico do cálculo da seção de choque de captura para nêutrons térmicos do iodo-125	35
TABELA 6 – Histórico do cálculo da integral de ressonância de captura do iodo-125	36
TABELA 7 - Principais emissões do iodo-125	37
TABELA 8 - Atividade específica alcançada e rendimento típico de produção na Hungria	38
TABELA 9 - Resultado dos cálculos e experimentos da irradiação de xenônio-124 e a formação de iodo-126 no Uzbequistão	42
TABELA 10 – Atividade de Xe-125 e I-125 durante o decaimento na Universidade do Texas A&M	44
TABELA 11 - Características dos alvos de xenônio-124 na Universidade da Califórnia - Davis	50
TABELA 12 - Estimativa de produção de iodo-125 para um ciclo de irradiação de 8 horas a 1,5 MW, 3,5 dias de decaimento e ~60% de eficiência de extração total na Universidade da Califórnia – Davis	51
TABELA 13 - Composição isotópica do xenônio natural e do xenônio enriquecido em xenônio-124	73
TABELA 14 – Características da solução de NaOH utilizada na produção de iodo-125 nas instituições produtoras e em trabalhos publicados	78
TABELA 15 – Linhas gama utilizadas na determinação de iodo-125 e iodo-126 ..	84
TABELA 16 – Dados das amostras de cápsulas de alumínio fabricadas com xenônio natural (XEN) e xenônio enriquecido (XEE) em Xe-124	94

TABELA 17 – Características dos núclídeos do gás xenônio e da liga de alumínio irradiados no reator IEA-R1 e seus núclídeos resultantes da reação n,γ	96
TABELA 18 - Atividade de iodo-125 medida nas amostras irradiadas e atividade calculada para a data de calibração.....	100
TABELA 19 – Resultado da análise radioquímica, por meio da técnica da cromatografia em papel ascendente, do iodo-125 produzido, em solução de NaOH 0,01 M.....	104
TABELA 20 – Atividades e controle de qualidade das fontes planares produzidas com as amostras de iodo-125.....	110
TABELA 21 – Correlação entre o iodo-125 e o iodo-126 produzidos.....	112
TABELA 22 – Características das fontes planares de iodo-125 produzidas	113
TABELA 23 – Comparativo das produções de iodo-125 no mundo	117

LISTA DE FIGURAS

	Página
FIGURA 1 – Semente de iodo-125	22
FIGURA 2 - Quantidade de sementes de iodo-125 fornecidas pelo IPEN, utilizadas em procedimentos de braquiterapia no Brasil	23
FIGURA 3 – Função de excitação da reação $^{123}\text{Sb}(\alpha, 2n)^{125}\text{I}$	31
FIGURA 4 – Função de excitação da reação $^{124}\text{Te}(d, n)^{125}\text{I}$	31
FIGURA 5 – Funções de excitação das reações $^{125}\text{Te}(p, xn)^{123, 124, 125}\text{I}$	32
FIGURA 6 - Rota de produção do iodo-125 em reator	32
FIGURA 7 – Seção de choque de captura do xenônio-124(n, γ) para a produção do iodo-125	34
FIGURA 8 – Seção de choque de captura do iodo-125 (n, γ) para a produção de iodo-126	35
FIGURA 9 – Esquema simplificado de decaimento do iodo-125	36
FIGURA 10 – Diagrama de carga do xenônio da Hungria	39
FIGURA 11 – Diagrama de destilação seca da Hungria	40
FIGURA 12 - Espectro gama do iodo-125 da Hungria	40
FIGURA 13 – Esquema proposto para a produção de iodo-125 na Universidade do Texas A&M	43
FIGURA 14 – Comparação entre a quantidade de Xe-125 e I-125 ao longo do tempo após a irradiação na Universidade do Texas A&M	45
FIGURA 15 – Diagrama do Sistema de Irradiação de iodo-125 na Universidade McMaster	46
FIGURA 16 – Diagrama do Sistema de Carga e Descarga do iodo-125 na Universidade McMaster	47
FIGURA 17 – Diagrama da <i>hotcell</i> do iodo-125 na Universidade McMaster	48
FIGURA 18 – Cápsula selada para irradiação de xenônio no reator Dhruva, Índia	49
FIGURA 19 – Unidade de produção de iodo-125 da UC Davis	50
FIGURA 20 – Cilindro de irradiação numa instalação de irradiação central na UC Davis	52

FIGURA 21 – Parte superior do cilindro de irradiação da UC Davis	53
FIGURA 22 – Cilindro de irradiação no interior da blindagem de transporte da UC Davis	53
FIGURA 23 – Sistema de transferência, decaimento e recarga do xenônio-125 da UC Davis	54
FIGURA 24 – Sistema de recuperação e fracionamento do iodo-125 da UC Davis	55
FIGURA 25 - Produção de iodo-125 na UC Davis em função da pressão de carga do Xe-124 no alvo	57
FIGURA 26 – Cápsula de irradiação do gás xenônio da UC Davis, com duplo encapsulamento, reutilizável até 11 vezes.....	58
FIGURA 27 – Blindagem de transporte da cápsula de irradiação de Xe-125 para a produção de I-125 na UC Davis	59
FIGURA 28 - Sistema de irradiação do xenônio-124 e adsorção do iodo-125 em esferas de zeólitas	61
FIGURA 29 – Cápsula de irradiação de xenônio-124 da Coreia.....	62
FIGURA 30 - Produção de iodo-125 a partir de um alvo de xenônio natural ($\Phi(0)=1 \times 10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, t (irradiação)=100 h, t (decaimento)=100 h).....	63
FIGURA 31 - Atividade do iodo-125 e contaminação radionuclídica do iodo-125 como função do tempo de irradiação para diferentes fluxos de nêutrons térmicos	63
FIGURA 32 – Projeto da cápsula de alumínio com canal central.....	65
FIGURA 33 – Alicates de cortar vergalhão de 42 polegadas.....	65
FIGURA 34 – Fio da lâmina do alicate de cortar vergalhão modificado.....	66
FIGURA 35 – Cabeçote de compressão hidráulico com bomba hidráulica manual	66
FIGURA 36 – Matrizes modificadas do cabeçote de compressão hidráulica	67
FIGURA 37 – Canal usinado no tubo de alumínio	67
FIGURA 38 – Conexão de dupla anilha de 3/8 de polegada da Swagelok instalada no tubo de alumínio.....	68
FIGURA 39 – Tubo de alumínio preparado para teste.....	68
FIGURA 40 – Teste de pressão com nitrogênio em tubo de alumínio selado.....	69
FIGURA 41 – Teste com bomba hidráulica manual em tubo de alumínio selado	70

FIGURA 42 – Diagrama do Sistema de carga de gás em tubo de alumínio	72
FIGURA 43 – Detector de vazamentos da Edwards, modelo Spectron 3000	72
FIGURA 44 – Cápsula de irradiação padrão do Reator IEA-R1 com três cápsulas contendo xenônio enriquecido em xenônio-124.....	75
FIGURA 45 – Diagrama do Sistema de abertura das cápsulas de alumínio para recuperação do gás xenônio	76
FIGURA 46 – Vista explodida da câmara de vácuo do Sistema de abertura das cápsulas de alumínio e recuperação do gás xenônio	77
FIGURA 47 – Porta-cápsulas (A) e banho ultrassônico (B)	78
FIGURA 48 – Desenho da fonte radioativa planar projetada para análise radionuclídica do iodo-125 em detector de HPGe.....	81
FIGURA 49 – Detector de germânio de alta pureza coaxial XtRa da Canberra....	82
FIGURA 50 – Curva de eficiência típica comparando os detectores de germânio de alta pureza XtRa e os detectores de germânio de alta pureza convencionais.	82
FIGURA 51 – Curva de calibração de eficiência dual do detector de HPGe, utilizando um padrão de referência de bário-133, para espectrometria gama do iodo-125.....	83
FIGURA 52 – Extremidades da cápsula de alumínio sem apresentar fissura (A) e com fissura na compressão (B).....	86
FIGURA 53 – Tubo de alumínio recozido danificado durante a usinagem.....	87
FIGURA 54 – Cápsula de alumínio contendo xenônio enriquecido em Xe-124, com as duas extremidades seladas e com o canal mediano usinado.....	88
FIGURA 55 – Cápsula de alumínio para irradiação de amostras gasosas (A) e cápsula de irradiação padrão de amostras do Reator IEA-R1 (B)	88
FIGURA 56 – Tempo de estabilização do sinal no detector de vazamentos da Edwards	89
FIGURA 57 – Taxas de vazamento de hélio de 12 amostras de cápsulas de alumínio	90
FIGURA 58 – Taxas de vazamento de hélio de 11 amostras de cápsulas de alumínio aquecidas até 100 °C	90
FIGURA 59 – Sistema de carga de gás com cilindro de xenônio natural acoplado	92
FIGURA 60 – Sistema de carga de gás com cilindro de xenônio enriquecido em Xe-124 acoplado	93

FIGURA 61 – Cápsulas de alumínio fabricadas contendo xenônio natural e xenônio enriquecido em Xe-124.....	93
FIGURA 62 – Sistema de abertura da cápsula de alumínio e recuperação do gás com a câmara de vácuo aberta.....	98
FIGURA 63 – Sistema de abertura da cápsula de alumínio e recuperação do gás montado dentro da capela de fluxo laminar	99
FIGURA 64 – Rendimento de obtenção do iodo-123 em função da temperatura de aquecimento para a remoção do iodo-123 das paredes do porta-alvo	103
FIGURA 65 - Cromatograma da solução de iodo-125 em NaOH 0,01M.....	105
FIGURA 66 – Transporte da solução de NaOH com iodo-125 para o papel-filtro por meio de pipeta	107
FIGURA 67 – Fabricação da fonte planar (A) papel filtro com solução de NaOH com iodo-125 dessecando sobre a base de resina epóxi inserida em molde de silicone, e (B) molde de silicone com resina epóxi recém-vertida curando sobre o papel-filtro e a base.....	108
FIGURA 68 – Fonte planar no molde de silicone após a cura (A), e pronta para medição em detector HPGe após os testes de estanqueidade (B).....	109
FIGURA 69 – Fontes planares produzidas para análise radionuclídica do iodo-125	109
FIGURA 70 – Espectrometria gama da fonte planar de iodo-125 XEE01.002.1 .	111
FIGURA 71 – Espectro gama ampliado do iodo-125 da fonte planar XEE.01.001.3.....	111
FIGURA 72 – Lateral das fontes planares produzidas	114
FIGURA 73 – Fontes planares sob luz de fundo destacando as imperfeições ...	115
FIGURA 74 – Curva de decaimento radioativo da amostra XEE01.002.1 com medição da atividade	116
FIGURA 75 – Gráfico do decaimento de 1 Ci de iodo-125 com 0,6% de iodo-126, a linha tracejada indica o tempo em que o percentual de impureza atinge 0,005%.....	119

LISTA DE ABREVIATURAS

- CE** – Comissão Europeia ou Captura Eletrônica
- CNEN** – Comissão Nacional de Energia Nuclear
- CTR** - Centro de Tecnologia das Radiações
- EOB** – End of Bombardment, fim do bombardeamento
- EOP** – End of Processment, fim do processamento
- FAPESP** – Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo
- HEPA** - High Efficiency Particulate Arresting Air, Filtro de Ar de Alta Eficiência de Retenção de Particulados
- HPLC** – High Performance Liquid Chromatography, Cromatografia a Líquido de Alto Desempenho/Eficiência
- IAEA** – International Atomic Energy Agency, Agência Internacional de Energia Atômica
- IPEN** – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares
- JEFF** – Joint Evaluated Fission and Fusion File, Arquivo de Conjunto de Estimativa de Fissão e Fusão
- NEA** - Nuclear Energy Agency, Agência de Energia Nuclear
- OECD** – Organization for Economic Cooperation and Development, Organização para Cooperação Econômica e Desenvolvimento
- PET** – Positron Emmission Tomography, Tomografia por Emissão de Pósitron
- RIA** – Radioimmunoassay, radioimunoensaio
- RMB** - Reator Multipropósito Brasileiro
- SPECT** – Single Photon Emission Computed Tomography, Tomografia Computadorizada por Emissão de Fóton Único
- TLC** – Thin Layer Chromatography, Cromatografia de Camada Delgada/Fina
- 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 10^5 pascals

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

Bi – bismuto

Bq – bequerel

CH_3I – iodometano, iodeto de metila

Ci – curie

cm – centímetro

cpm – contagens por minuto

Cs – cézio

Cr - cromo

Cu - cobre

d – dêuteron, dia

EDDI – etilenodiamino dihidriodeto

eV - elétron-volt

Fe – ferro

h - hora

I – iodo

I^- - iodeto

IO_3^- - iodato

KI – iodeto de potássio

m – mili, minuto

min - minuto

Mg – magnésio

Mn - manganês

n – nêutron

N_2L – nitrogênio líquido

NaI – iodeto de sódio

NaOH – hidróxido de sódio

p – próton

Pa – pascal, unidade de pressão

PdCl_2 - dicloreto de paládio

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

PtF_6 – hexafluoreto de platina

R_F – fator de retenção

s – segundo

Sb – antimônio

Si – silício

Sv – sievert

T3 – tiroxina

T4 - triiodotironina

Te – telúrio

Ti – titânio

TSH – thyroid-stimulating hormone, hormônio estimulante da tireoide

Xe – xenônio

XeF_2 – difluoreto de xenônio

XeF_4 – tetrafluoreto de xenônio

XeF_6 – hexafluoreto de xenônio

XeO_2 – dióxido de xenônio

XeO_3 – trióxido de xenônio

XeO_4 – tetraóxido de xenônio

Zn - zinco

$^{\circ}\text{C}$ – graus Celsius

α – alfa

β - beta

γ – gama

μ – mi, micro

ν – ni, neutrino

∞ - infinito

1. INTRODUÇÃO

O radionuclídeo iodo-125 pode ser usado para uma grande variedade de aplicações. Sua versatilidade tem gerado interesse em aplicações de diagnóstico e terapia, como exemplo pode-se citar sua aplicação em pesquisa de radiofármacos, conjuntos de diagnóstico *in vitro*, utilizados em radioimunoensaio, procedimentos para estimar a concentração nanomolar de biomoléculas, como hormônios e drogas, em matrizes biológicas complexas, como uma fonte para dispositivos de densitometria óssea, iodação de proteínas, terapia por elétrons Auger, e a terapia por implante de sementes para o tratamento do câncer de próstata, cerebral e oftálmico (IAEA, 2011; NORDION, 2015; VENKATESH; BANERJEE, 2007).

Todos os produtos, comercializados no Brasil, que possuem o iodo-125 como base, são importados de outros países, pois não existe uma produção nacional do iodo-125. Como principais fabricantes mundiais do iodo-125 e produtos relacionados é possível citar a MDS Nordion, a MCMASTER, ambas do Canadá, e a PerkinElmer (NORDION, 2015; MCMASTER, 2015; PERKINELMER, 2015), há também produtores locais como a Universidade da Califórnia – Davis nos Estados Unidos, a Izotop na Hungria e o Bhabha Atomic Research Center na Índia (UCDAVIS, 2015; IZOTOP, 2015; VENKATESH; BANERJEE, 2007; IAEA, 2006).

É possível dividir as aplicações do iodo-125 em dois tipos:

- Uso em laboratório; e
- Uso clínico.

O iodo-125 produzido para utilização em pesquisas laboratoriais apresenta pureza radioquímica superior a 95% e pureza radionuclídica maior ou igual a 99,1%, a quantidade de iodo-126 deve ser de no máximo 0,9%, como o fabricado pela Izotop da Hungria (IAEA, 2003). A PerkinElmer que também comercializa iodo-125 para uso laboratorial apresenta seu produto com pureza radioquímica de 99,0% e pureza radionuclídica de 99,95%, com o nível do contaminante iodo-126 menor do que 0,04% (PERKINELMER, 2015).

A utilização do iodo-125 no corpo humano, em procedimentos médicos de diagnóstico ou tratamento, como a terapia por elétrons Auger e o uso de sementes de iodo-125 em braquiterapia, está submetida à legislação e normas dos países que executam estes procedimentos, como a USP-NF (United States Pharmacopeial Convention – National Formulary) e a European Pharmacopoeia, que estabelecem a normatização sobre produtos medicinais. As sementes de iodo-125 são considerados dispositivos médicos, e seu uso é regulado por órgãos como o USFDA (United States Food e Drug Administration) e a Comissão Europeia (USP-NF, 2015; EP, 2014; USFDA, 2015; EC, 2015). Na produção de iodo-125 para uso no corpo humano são exigidos padrões de qualidade mais rigorosos, estes padrões estão estabelecidos em regulamentações como a 21CFR892.5730 do USFDA, que trata das fontes de braquiterapia com radionuclídeo, e a Diretiva Europeia 93/42/EEC sobre dispositivos médicos (USFDA, 2015; EC, 2015). Dos fabricantes que produzem o iodo-125 ultrapuro se destacam as canadenses Nordion e McMaster, que apresentam as seguintes características de pureza radionuclídica:

McMaster	Nordion
Iodo-125 > 99,9%	Iodo-125 $\geq$ 99,9%
Iodo-126 < 0,005%	Iodo-126 $\leq$ 0,005%
Césio-134 < 0,0001%	Cs-134 + Cs-137 $\leq$ 0,0001%
Césio-137 < 0,0001%	

No Brasil, a Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN, por meio do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN, importa e distribui sementes de iodo-125 (FIG. 1), para clínicas e hospitais em todo território nacional, para o tratamento do câncer conhecido como braquiterapia intersticial, na qual uma pequena fonte radioativa de iodo-125 é implantada dentro do volume do tumor, ou muito próxima a ele (IPEN, 2015).

FIGURA 1 – Semente de iodo-125

A braquiterapia intersticial concorre com outras modalidades de tratamento como: prostatectomia (remoção cirúrgica da próstata), teleterapia (feixe externo de radiação), crioterapia (congelamento do tumor) e ablação por radiofrequência (queima do tumor) (VIGNERI et al., 2010).

No Brasil o uso de braquiterapia para o tratamento de câncer de próstata consolidou-se, conforme mostra a FIG. 2, com a quantidade de sementes de iodo-125 comercializadas oscilando no intervalo entre 25 e 40 mil sementes nos últimos anos.

Atualmente as sementes são fornecidas pela empresa norte-americana Oncura, uma subsidiária da General Electric Healthcare, o preço do tipo de semente mais consumido (a Rapid Strand, que é vendida em cordões de 10 sementes) é de US\$ 233,71/cordão, o preço no mercado nacional, controlado pela Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN é de R\$ 1442,30/cordão (não estão inclusos os custos do transporte nacional e internacional). O custo elevado das sementes de iodo-125 no Brasil limita o uso da braquiterapia para o tratamento do câncer de próstata, pois cada implante utiliza em torno de 100 sementes, e estes têm sido realizados apenas em hospitais e clínicas particulares. O faturamento com sementes de iodo-125 no ano de 2014 no Brasil foi de aproximadamente R\$ 2,6 milhões (CNEN, 2015).

Com o intuito de diminuir os custos deste procedimento médico e viabilizar sua disponibilidade para hospitais da rede pública de saúde foi feito um estudo e desenvolvido uma nova tecnologia de fabricação de sementes de iodo-125 (ROSTELATO, 2005; ZEITUNI, 2012).

FIGURA 2 - Quantidade de sementes de iodo-125 fornecidas pelo IPEN, utilizadas em procedimentos de braquiterapia no Brasil

Encontra-se em fase de implantação no Centro de Tecnologia das Radiações – CTR do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN, o Laboratório de Produção de Sementes de Iodo-125, um projeto que foi financiado pela Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo - FAPESP (processo 2001/04768-3), e pelo IPEN, além disso, outros estudos sobre o tema também seguiram paralelamente à implantação do laboratório, como o desenvolvimento de processos de soldagem das sementes (FEHER, 2006), a dosimetria de fontes de iodo-125 (ZEITUNI, 2008), o controle de qualidade no processo de produção de fontes seladas (MOURA, 2009), e a fixação do iodo-125 em substrato de prata (SOUZA, 2012).

Para fechar o ciclo de nacionalização deste produto, torna-se necessário também a produção nacional do iodo-125, pois a grande produtora mundial, a MDS Nordion, tem estado recentemente no centro da grande crise mundial de fornecimento de radioisótopos, devido a problemas em seus reatores produtores de radionuclídeos que, apesar da idade avançada, ainda são os maiores responsáveis pela produção mundial de radioisótopos. 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 que domine o *know-how* da produção.

2. Objetivos

2.1 Objetivo geral

O objetivo deste trabalho é o estudo e desenvolvimento de um novo método para a produção do radionuclídeo iodo-125 e, com isso, fornecer dados de projeto e parâmetros operacionais para a implantação no IPEN de uma produção rotineira.

2.2 Objetivos específicos

Como objetivos específicos pode-se citar:

- O desenvolvimento de uma nova cápsula para irradiação de gases em reatores nucleares;
- O desenvolvimento de um dispositivo de carregamento de cápsulas estanques com xenônio para irradiação em reatores nucleares;
- O desenvolvimento de um dispositivo para manipulação de xenônio-124, xenônio-125, iodo-125 e iodo-126. Este dispositivo deve garantir a recuperação dos gases e a não contaminação dos operadores pelos materiais radioativos;
- O desenvolvimento de um novo método de dissolução do iodo-125, a partir do iodo adsorvido na parede interna da cápsula, em solução de NaOH; e
- A quantificação do iodo-126 e do iodo-125, produzidos pelo método proposto, com o intuito de verificar a pureza radionuclídica do material.

2.3 Originalidade

A originalidade do trabalho está no desenvolvimento de novos sistemas e métodos para produção de iodo-125. Os poucos dados existentes na literatura, por serem segredos industriais e/ou protegidos por patentes, inviabilizam a produção de iodo-125, sendo necessário desenvolver um método próprio de produção.

É importante também ressaltar que os dispositivos necessários para a irradiação de gás em reatores nucleares são específicos para cada grupo de parâmetros operacionais, como: temperatura, pressão, volume, tempo de irradiação e fluência neutrônica. Sendo, portanto, necessário estudar, projetar e desenvolver cápsulas específicas para cada tipo de irradiação com gás. Devido à especificidade da cápsula, um dos itens originais neste trabalho será o estudo, projeto, desenvolvimento, construção e operação de uma nova cápsula para irradiação de gases em reatores nucleares. Também são itens originais que deverão ser estudados, desenvolvidos, projetados e construídos os dispositivos de carregamento de gases, dispositivos de descarregamento dos gases, e método de dissolução de iodo-125 adsorvido.

3. FUNDAMENTOS TEÓRICOS E REVISÃO DA LITERATURA

3.1 Xenônio

O xenônio é um elemento químico de símbolo Xe (número atômico 54), um gás nobre (como o hélio e o neônio), incolor, denso e inodoro, seu nome vem do grego (ksenos), que significa: estrangeiro, estranho, insólito. Ele ocorre na atmosfera terrestre na proporção de aproximadamente 1 parte por 11,5 milhões, também é encontrado como um componente nos gases emitidos por algumas fontes de água mineral. Foi descoberto na Inglaterra por William Ransay e Morris Travers em 1898, logo após a descoberta dos elementos criptônio e neônio. Em condições padrão de temperatura e pressão (273,15 K e 1 bar), o xenônio apresenta densidade de $5,761 \text{ kg/m}^3$, cerca de 4,5 vezes a densidade superficial da atmosfera terrestre, e é obtido comercialmente como subproduto da separação do ar em nitrogênio e oxigênio, geralmente por destilação fracionada. Como os outros gases nobres, foi considerado durante muito tempo, quimicamente inerte, inapto para formar compostos, porém, em 1962 no Canadá, Neil Bartlett conseguiu formar compostos de xenônio misturando-o com hexafluoreto de platina (PtF_6), desde então muitos outros compostos de xenônio foram descobertos como os haletos (XeF_2 , XeF_4 e XeF_6) e os óxidos (XeO_2 , XeO_3 e XeO_4). Entre as principais aplicações do xenônio podemos citar:

- Iluminação e óptica – utilizado em lâmpadas de descarga em gás como *flashes* fotográficos e luzes estroboscópicas, e em *lasers* de uso dermatológico;
- Medicina – usado em anestesia geral substituindo o óxido nitroso (N_2O), como neuroprotetor e cardioprotetor em episódios de isquemia, é também utilizado para dopagem de atletas, em tomografia SPECT (*single photon emission computed tomography*) e ressonância magnética nuclear para se obter imagens do coração, pulmões e cérebro;
- Indústria espacial – utilizado como propelente em motores de propulsão iônica;

- Indústria nuclear – utilizado em câmaras de bolhas, como rastreador de testes nucleares, e também na produção dos radionuclídeos iodo-123 e iodo-125, empregados na medicina nuclear e radioterapia (HOUAISS, 2009; LIDE, 2006; MIRZADEH et al., 2003; MYERS, 1984; BARTLETT, 2003; IAEA, 2011; SUMYIA, 2006, 2008).

O xenônio apresenta ponto de fusão em $-111,745\text{ }^{\circ}\text{C}$ ($161,405\text{ K}$) e ponto de ebulição em $-108,099\text{ }^{\circ}\text{C}$ ($165,051\text{ K}$). Ele possui o segundo maior número de isótopos estáveis (oito), perdendo apenas para o estanho, que possui 10 nuclídeos estáveis. Na TAB. 1 são apresentados os isótopos do xenônio importantes para este trabalho.

TABELA 1 – Isótopos de xenônio relevantes para a produção de iodo-125

Isótopo	Abundância natural (%)	Meia-vida	Produto de decaimento
^{124}Xe	0,0952(3)	$\geq 1,6 \times 10^{14}\text{ a}$	$^{124}\text{Te}^*$
^{125}Xe	-	16,9(2) h	^{125}I
^{126}Xe	0,0890(14)	--	$^{126}\text{Te}^*$
^{127}Xe	-	36,346(3) d	^{127}I
^{128}Xe	1,9102(8)	--	---
^{129}Xe	26,4006(82)	--	---
^{130}Xe	4,0710(13)	--	---
^{131}Xe	21,2324(30)	--	---
^{132}Xe	26,9086(33)	--	---
^{133}Xe	-	5,2475(5) d	^{133}Cs
^{134}Xe	10,4357(21)	$> 5,8 \times 10^{22}\text{ a}$	$^{134}\text{Ba}^*$
^{135}Xe	-	9,14(2) h	^{135}Cs
^{136}Xe	8,8573(44)	$> 3,6 \times 10^{20}\text{ a}$	^{136}Ba
^{137}Xe	-	3,818(13) m	^{137}Cs

Fontes: LIDE, 2006; NUCLEAR, 2015; ISOTOPE, 2015; BARTLETT, 2003; ALBERT et al., 2014.

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:

$0,0890(14) = 0,0890 \pm 0,0014$.

As unidades de meia-vida: m = minutos, h = horas, d = dias, a = anos.

Sinais convencionais utilizados:

- Nuclídeo sintético, não disponível naturalmente.

-- Nuclídeo considerado estável, ou ainda sem valor considerado de meia-vida.

--- Nuclídeo sem produto de decaimento conhecido ou previsto.

* Os modos de decaimento ($2\nu\beta\beta$) e produtos de decaimento destes nuclídeos foram previstos, mas ainda não foram observados.

3.2 Iodo

O iodo é um elemento químico da família dos halogênios (como o flúor e o cloro), com símbolo I e número atômico 53, seu nome vem do grego (iodes), que significa: violeta, púrpura. Ele é encontrado principalmente nos oceanos, na forma do íon iodeto (I^-), mas também é encontrado em minerais como o caliche no Chile, associado ao nitrato de sódio e em alguns campos de óleo e gás. O iodo foi descoberto pelo francês Bernard Courtois em 1811, e posteriormente identificado como novo elemento químico pelo francês Gay-Lussac e pelo inglês Humphry Davy. Em condições padrão de temperatura e pressão (273,15 K e 1 bar), o iodo é um sólido, de cor negro-azulado, brilho metálico, que sublima em um nocivo gás de cor azul-violeta. O Chile é o maior produtor mundial de iodo, a partir da mineração do caliche, o Japão é o segundo produtor mundial, a partir de campos de óleo e gás. O iodo adota vários estados de oxidação, porém o estado de oxidação -1 é o de maior significância por ser a forma encontrada nos sais de iodeto (NaI e KI), e nos compostos orgânicos do iodo (CH_3I). O iodo é o segundo elemento mais pesado utilizado por organismos vivos em processos biológicos, somente o tungstênio, utilizado como componente de poucas enzimas bacterianas possui maior número atômico, o iodo apresenta um relevante papel na síntese de hormônios como o hormônio estimulador da tireoide (TSH), a tiroxina (T3) e o triiodotironina (T4), a sua ausência na dieta alimentar causa o hipotireoidismo. A produção de EDDI (etilenodiamino dihidriodeto), utilizado como suplemento nutricional na pecuária, e a produção de ácido acético (onde o iodo é usado como cocatalisador), consomem a maior parte do iodo produzido no mundo, outras aplicações do iodo incluem:

- Antisséptico: tintura de iodo e iodo de Lugol;
- Análise: iodometria, cromatografia de camada delgada e colposcopia;
- Medicina: o iodo é usado como componente de expectorantes, e devido a sua alta densidade eletrônica é utilizado como contraste em diagnóstico por raios-X, convencional e tomografia;

- Indústria nuclear: os radionuclídeos do iodo são bastante utilizados na medicina nuclear e na radioterapia, o iodo-131 foi um dos radionuclídeos precursores da medicina nuclear e continua sendo amplamente utilizado para tratamento de câncer na tireoide e em radiodiagnóstico, o iodo-123 é um radionuclídeo muito utilizado em radiodiagnóstico devido a sua meia-vida mais curta do que o iodo-131, o iodo-124 é um dos mais importantes radionuclídeos terapêuticos emergentes, pois suas características de decaimento possibilitam uma combinação de terapia e tomografia por emissão de pósitron que permitem uma dosimetria regional muito precisa, o iodo-125 é largamente utilizado como traçador em biologia e medicina, por ser emissor de elétrons Auger, ele é ligado em compostos de DNA para promover efeitos terapêuticos em células marcadas, o iodo-125 também é utilizado em implantes permanentes na próstata com sementes de iodo-125 e em braquiterapia oftálmica e cerebral ((HOUAISS, 2009; LIDE, 2006; MIRZADEH et al., 2003; MYERS, 1984; STANG, 2003; IAEA, 2011; SUMYIA, 2006, 2008).

O iodo apresenta ponto de fusão em 113,7 °C (386,85 K) e ponto de ebulição em 184,3 °C (457,4 K), ele possui apenas um isótopo estável (iodo-127), na TAB. 2 são apresentados os isótopos de iodo relevantes para este trabalho.

TABELA 2 – Isótopos de iodo relevantes para este trabalho

Isótopo	Abundância natural (%)	Meia-vida	Produto de decaimento
¹²³ I	-	13,2235(19) h	¹²³ Te
¹²⁴ I	-	4,1760(3) d	¹²⁴ Te
¹²⁵ I	-	59,407(10) d	¹²⁵ Te
¹²⁶ I	-	12,93(5) d	¹²⁶ Te, ¹²⁶ Xe
¹²⁷ I	100	--	---
¹²⁸ I	-	24,99(2) m	¹²⁸ Xe, ¹²⁸ Te
¹²⁹ I	-	1,57(4) x 10 ⁷ a	¹²⁹ Xe
¹³¹ I	-	8,0252(6) d	¹³¹ Xe

Fontes: LIDE, 2006; NUCLEAR, 2015; ISOTOPE, 2015; STANG, 2003.

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:

59,407(10) = 59,407 ± 0,010.

As unidades de meia-vida: m = minutos, h = horas, d = dias, a = anos.

Sinais convencionais utilizados:

- Nuclídeo sintético, não disponível naturalmente.
- Nuclídeo considerado estável, ou ainda sem valor considerado de meia-vida.
- Nuclídeo sem produto de decaimento conhecido ou previsto.

3.3 Rotas de produção do iodo-125

O radionuclídeo iodo-125 foi inicialmente produzido em 1946 por Allen Reid e Albert Keston (STABIN, 2006), o método usual de produção era por meio do bombardeamento de alvos de telúrio natural, com dêuterons de 15 MeV de energia (MYERS, 1984), algumas das rotas de produção do iodo-125 estão listadas abaixo (KLEINBERG; COWAN, 1960):

Fissão nuclear do Bi.

Estas rotas de produção, contudo, foram deixadas de lado, por terem um rendimento de produção muito baixo, custos elevados, ou por apresentarem excesso de contaminantes produzidos, conforme é mostrado nas FIG. 3, 4 e 5. Uddin et al. (2011), Bastian et al. (2001) e Hohn et al. (2001), mostram em seus artigos funções de excitação para diversas reações que produzem o iodo-125, porém, o objetivo principal destes artigos, é comparar o rendimento da produção do iodo-124, com relação ao iodo-125, pois o iodo-125 é o principal contaminante nestas rotas de produção. O iodo-124 é um emissor de pósitron com energia de 2,13 MeV, que possui meia-vida de 4,18 dias, utilizado em radioterapia e diagnóstico por meio da tomografia por emissão de pósitron (PET). Na FIG. 3 a reação $^{123}\text{Sb}(\alpha, 2n)^{125}\text{I}$ apresenta seção de choque máxima de 1340 ± 152 mb para energia de $26,3 \pm 0,4$ MeV (UDDIN et al., 2011). Na FIG. 4 a reação $^{124}\text{Te}(\text{d}, \text{n})^{125}\text{I}$ apresenta seção de choque máxima de 286 ± 43 mb para uma energia de $9,0 \pm 0,3$ MeV (BASTIAN et al., 2001). Na FIG. 5 a reação $^{125}\text{Te}(\text{p}, \text{n})^{125}\text{I}$ apresenta seção de choque máxima de 687 ± 110 mb para uma energia de $10,6 \pm 0,2$ MeV (HOHN et al., 2001).

Fonte: UDDIN et al., 2011.

FIGURA 3 – Função de excitação da reação $^{123}\text{Sb}(\alpha,2n)^{125}\text{I}$

Fonte: BASTIAN et. al., 2001.

FIGURA 4 – Função de excitação da reação $^{124}\text{Te}(\text{d},\text{n})^{125}\text{I}$

Fonte: HOHN ET. al., 2001.

FIGURA 5 – Funções de excitação das reações $^{125}\text{Te}(p,xn)^{123,124,125}\text{I}$

A principal rota de produção do iodo-125 utilizada atualmente é a rota proposta por Myers e colaboradores em 1960, por meio da irradiação em reator do xenônio-124 (MYERS, 1984), via captura de nêutrons, seguida de decaimento beta (FIG. 6).

FIGURA 6 - Rota de produção do iodo-125 em reator

3.4 Dados nucleares do iodo-125

Bresesti et al. (1964) calcularam a seção de choque de captura de nêutrons térmicos do xenônio-124, sua integral de captura de ressonância (de 0,5 eV até ∞) e sua seção de choque de captura efetiva em uma posição do refletor do reator nuclear Ispra 1, obtendo 111 ± 11 barns, 3600 ± 500 barns e 135 ± 13 barns respectivamente. O procedimento experimental adotado foi a irradiação de xenônio natural e a medição da atividade de iodo-125.

A Agência Internacional de Energia Atômica, na publicação número 473 do Technical Reports Series, cujo título é Nuclear Data for the Production of Therapeutic Radionuclides, publicou a evolução ao longo do tempo, do cálculo da seção de choque de captura para nêutrons térmicos da reação $^{124}\text{Xe}(n,\gamma)^{125}\text{Xe}$ (TAB. 3 e FIG. 7), o valor aceito atualmente é o de Mughabghab, publicado em 2003 pela própria IAEA que é de 165 ± 11 barns (IAEA, 2011; MUGHABGHAB, 2003). Comparando este valor, com o de maior seção de choque, para a produção de iodo-125 por meio de partículas carregadas, utilizando antimônio-123 com reação $(\alpha,2n)$ que é de 1,34 barn, temos um valor 123 vezes maior para a seção choque do xenônio-124 para nêutrons térmicos, o que levou a preferência por esta rota de produção para o iodo-125.

TABELA 3 – Histórico do cálculo da seção de choque de captura para nêutrons térmicos do xenônio-124

Autor	Data de Publicação	$\sigma(n,\gamma)(b)$
Tobin	1958	74,4
Harper	1961	115
Eastwood	1963	94,0(94)
Bressesti	1964	110(11)
Kondaiah	1968	144(11)
IAEA	2011	114(11)
Mughabghab	2006	165(11)

Fonte: IAEA, 2011.

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:
 $165(11) = 165 \pm 11$.

Fonte: IAEA, 2011.

FIGURA 7 – Seção de choque de captura do xenônio-124(n,γ) para a produção do iodo-125

Na TAB. 4 apresenta-se a evolução do cálculo da integral de ressonância de captura do xenônio-124, Mughabghab adotou o valor de Bresesti et al. e aumentou um pouco a incerteza (IAEA, 2011).

TABELA 4 – Histórico do cálculo da integral de ressonância de captura do xenônio-124

Autor	Data de Publicação	IR(b)
Eastwood	1963	2100(210)
Bresesti	1964	3600(500)
IAEA	2011	2300(200)
Mughabghab	2006	3600(700)

Fonte: IAEA, 2011.

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:
 $3600(700) = 3600 \pm 700$.

O histórico do cálculo da seção de choque de captura para nêutrons térmicos do iodo-125 é apresentado na TAB. 5. Na FIG. 8 é mostrado a seção de choque de captura da reação $^{125}\text{I}(n,\gamma)^{126}\text{I}$.

TABELA 5 – Histórico do cálculo da seção de choque de captura para nêutrons térmicos do iodo-125

Autor	Data de Publicação	$\sigma(n,\gamma)(b)$
Harper	1961	890
Bresesti	1964	894(90)
IAEA	2011	892(90)

Fonte: IAEA, 2011.

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:
 $894(90) = 894 \pm 90$.

Fonte: IAEA, 2011.

FIGURA 8 – Seção de choque de captura do iodo-125 (n,γ) para a produção de iodo-126

A integral de ressonância de captura do iodo-125 foi medida por Bresesti em 1964 (TAB. 6) e seu valor estimado foi divulgado em base de dados nucleares como em JEFF-3.1A (Joint Evaluated Fission and Fusion File).

TABELA 6 – Histórico do cálculo da integral de ressonância de captura do iodo-125

Autor	Data de Publicação	IR(b)
Bresesti	1964	13730(2000)
JEFF-3.1A*		14910
IAEA, 2011	2011	9300

Fonte: IAEA, 2011.

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:

$$13730(2000) = 13730 \pm 2000.$$

* Base de dados sobre fissão e fusão da Agência de Energia Nuclear (NEA) da Organização para Cooperação Econômica e Desenvolvimento (OECD)

Na FIG. 9 é mostrado um esquema simplificado de decaimento do iodo-125.

Fonte: FIRESTONE et al., 1996.

FIGURA 9 – Esquema simplificado de decaimento do iodo-125

Segundo IAEA (2003), o iodo-125 decai diretamente do estado excitado para o estado fundamental, por captura eletrônica, emitindo um fóton gama de 0,03549 MeV, apenas em 6,68% das vezes, nas outras 93,32% ele decai por conversão interna, e como consequência das lacunas de elétrons nas camadas internas, ocorre a emissão de raios-X característicos, com energia principal próxima de 0,028 MeV, na TAB. 7 estão listadas as suas principais emissões.

TABELA 7 - Principais emissões do iodo-125

Radiação	Energia (keV)	Intensidade (%)
$\gamma 1$	35,4925(5)	6,68(13)
Captura eletrônica - K, $\gamma 1$	3,678	80,2
Captura eletrônica - L, $\gamma 1$	30,55 ^a	10,8
Captura eletrônica - M, $\gamma 1$	34,49 ^a	2,15
Raio X - K $_{\alpha 1}$	27,47230(20)	73,5(14)
Raio X - K $_{\alpha 2}$	27,20170(20)	39,4(8)
Raio X - K $_{\beta}$	31,00 ^b	25,6(5)
Raio X - L	3,770 ^b	14,8(7)
Auger - K	22,70 ^b	20,0
Auger - L	3,190 ^b	158

Fonte: IAEA, 2011; ISOTOPE, 2015.

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:

35,4925(5) = 35,4925 $\pm$ 0,0005.

^a Energia máxima (keV) por subcamada

^b Energia média (keV)

3.5 Produção de iodo-125 na Hungria

De acordo com IAEA (2003), há dois modos de produzir grande quantidade de iodo-125 em reator nuclear: longa irradiação de xenônio natural, ou o uso de xenônio enriquecido em xenônio-124. É recomendado o uso de um reator com um fluxo de nêutrons entre 1×10^{13} e 1×10^{14} n cm⁻² s⁻¹ e resfriamento com água no alvo durante toda a irradiação. A cápsula que conterá o gás pode

ser feita de zircaloy (liga metálica de zircônio), ou alumínio, pois o material precisa de características como baixa seção de choque para nêutrons, boa condutividade térmica e resistência para suportar uma grande pressão interna.

O ^{124}Xe possui uma seção de choque igual a 165 ± 11 barns para nêutrons térmicos. Com a irradiação do ^{124}Xe é produzido o ^{125}Xe , que possui uma meia-vida de 16,9 h, portanto é necessário um tempo de decaimento para que o ^{125}Xe decaia em ^{125}I . Porém, o ^{125}I possui uma seção de choque alta para nêutrons térmicos, aproximadamente 900 barn, o que pode levar à criação do radionuclídeo contaminante ^{126}I .

Na TAB. 8 é apresentada a atividade específica alcançada numa produção típica de iodo-125 (IAEA, 2003) através da irradiação de gás xenônio numa cápsula em um reator nuclear de pesquisa.

TABELA 8 - Atividade específica alcançada e rendimento típico de produção na Hungria

Fluxo, $\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$	5×10^{13}			
Alvo	Xe natural		^{124}Xe enriquecido	
Massa do alvo, g	15		0,4	
Tempo de irradiação, h	200	300	10	24
Tempo de decaimento, d	40	45	20	20
Rendimento do ^{125}I , GBq(mCi)	29,15 (787)	40,32 (1089)	50,71 (1370)	121,2 (3275)
Percentual de ^{126}I após decaimento, %	0,77	0,89	0,02	0,11
Atividade específica, GBq/mg(mCi/mg)	Atividade específica teórica do iodo-125 sem carregador = 646,02 (17460) Obtido: > 600			

Fonte: IAEA, 2003.

Em IAEA (2003) há a descrição de um processo de produção de iodo-125 feito no Institute of Isotopes na Hungria. Nele é utilizado o modo de produção em batelada, onde 15 g de gás xenônio natural, ou 0,4 g de xenônio enriquecido em Xe-124, são pressurizados em uma cápsula de alumínio, conforme FIG. 10.

Fonte: IAEA, 2003.

FIGURA 10 – Diagrama de carga do xenônio da Hungria

A cápsula de irradiação é conectada à tubulação e, em seguida é feito vácuo no sistema, logo após, a cápsula de irradiação é imersa em nitrogênio líquido e recebe 3 cargas de 5 bar de pressão de xenônio natural, ou uma carga de 0,4 bar de xenônio enriquecido em xenônio-124. Após atingir a temperatura ambiente é feito um teste de vazamento em glicerina a uma temperatura entre 120 e 240 °C.

Após a irradiação com as características da TAB. 8 são executados os procedimentos do processamento químico. A cápsula de alumínio é aberta em uma *hotcell*, quando uma agulha perfura o selo de alumínio da cápsula irradiada, o gás xenônio é lançado na chaminé e o iodo-125 encontra-se adsorvido nas paredes da cápsula.

Para a extração do iodo-125 da cápsula é utilizada a técnica da destilação seca. O diagrama de destilação seca é mostrado na FIG. 11, ele é formado por um forno, uma conexão de sílica amorfa, um vaso de lavagem ácida e coletores alcalinos, a destilação leva 120 minutos a uma temperatura de 550 °C.

Fonte: IAEA, 2003.

FIGURA 11 – Diagrama de destilação seca da Hungria

A determinação de pureza radionuclídica do produto é feita por meio da medição de uma amostra entre 5 e 10 MBq (0,135 e 0,27 mCi), os picos principais do ^{125}I são próximos de 28 keV para raios-X e 35,49 keV para raios gama, o limite de impureza não pode ser maior do que 0,9% de ^{126}I (gama de 388 keV e 666 keV). Na FIG. 12 é mostrado um exemplo de um espectro gama do iodo-125.

Fonte: IAEA, 2003.

FIGURA 12 - Espectro gama do iodo-125 da Hungria

A determinação de pureza radioquímica é feita através da técnica de eletroforese, na qual amostras de 10 a 20 μL são gotejadas em uma solução tampão de borato, utilizando-se um potencial de 900 V durante 50 minutos. Os fatores de retenção (R_F) são:

produto: iodeto $R_F = 0,7-0,9$
 impurezas: iodato $R_F = 0,4$
 periodato $R_F = 0-0,1$
 iodo elementar $R_F = 0$.

O produto é considerado aceito se o percentual de iodeto é maior do que 95% até a data de validade.

A especificação do produto final é a seguinte:

1. Observação física: solução clara e incolor.
2. Identificação radionuclídica: espectro gama da FIG. 12.
3. Pureza radionuclídica: deve ser maior ou igual a 99,1%, a contaminação por ^{126}I deve ser no máximo 0,9%.
4. pH da solução final: entre 8 e 10,
5. Pureza radioquímica: medida através da eletroforese, deve ser maior do que 95%.
6. Requisitos da concentração:
 - a) Produto de alta concentração radioativa
 $>7400 \text{ MBq/mL}$ (200 mCi/mL), conteúdo químico: $0,04 \text{ M NaOH}$, livre de redutor
 - b) Produto de média concentração radioativa
 $1850-7400 \text{ MBq/mL}$ ($50-200 \text{ mCi/mL}$), conteúdo químico: $0,04 \text{ M NaOH}$, livre de redutor
 - c) Produto de baixa concentração radioativa.
 $<1850 \text{ MBq/mL}$ (50 mCi/mL), conteúdo químico: $0,04 \text{ M NaOH}$, livre de redutor
7. Validade: até 60 dias após a produção; condições de armazenamento: temperatura ambiente.

Por se tratar de um trabalho patrocinado pela Agência Internacional de Energia Atômica – IAEA, que tem como objetivo a difusão de técnicas de produção e aplicação de radionuclídeos na medicina, indústria, agricultura e meio-ambiente, esta publicação apresenta detalhes de produção do iodo-125 que não são comumente encontrados. A ausência de discussão sobre a produção de iodo-125 ultrapuro (com nível de contaminante máximo de 0,005%), torna o trabalho incompleto.

3.6 Produção de iodo-125 no Uzbequistão

Abdukayumov et al. (2004) relatam as condições de irradiação de xenônio-124 no reator nuclear VVR-SM visando preparar uma solução ultrapura de Na^{125}I (contaminação menor do que 0,005% de iodo-126), foram utilizadas amostras de 278 mg de xenônio-124, e um tempo de decaimento de 10 dias, o resultado dos cálculos e experimentos feitos para aperfeiçoar as condições de irradiação são apresentados na TAB. 9.

TABELA 9 - Resultado dos cálculos e experimentos da irradiação de xenônio-124 e a formação de iodo-126 no Uzbequistão

Tempo de irradiação h	Fluxo de nêutrons $\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$	Atividade ^{125}I , mCi		Atividade ^{126}I , mCi		Percentual de $^{126}\text{I}/^{125}\text{I}$	
		teórico	experim.	teórico	experim.	teórico	experim.
1	$0,6 \times 10^{14}$	156,23	142,2	0,00061	0,00056	0.0004	0.00039
1	$1,3 \times 10^{14}$	338,49	309,1	0,00288	0,00264	0.0009	0.00085
2	$0,6 \times 10^{14}$	312,38	284,6	0,00485	0,00446	0.0016	0.00157
2	$1,3 \times 10^{14}$	676,80	615,7	0,02277	0,02094	0.0034	0.00340
2,5	$0,6 \times 10^{14}$	390,43	354,7	0,00943	0,00867	0.0024	0.00244
2,5	$1,3 \times 10^{14}$	845,88	769,5	0,04421	0,04067	0.0052	0.00529
3	$0,6 \times 10^{14}$	468,45	425,8	0,01620	0,01490	0.0035	0.00350
3	$1,3 \times 10^{14}$	1014,92	923,3	0,07595	0,06987	0.0075	0.00757
5	$0,6 \times 10^{14}$	624,44	567,7	0,03798	0,03494	0.0061	0.00616
5	$1,3 \times 10^{14}$	1352,85	1230,1	0,17796	0,16372	0.0132	0.01331
7	$0,6 \times 10^{14}$	780,36	708,5	0,07336	0,06749	0.0094	0.00953
7	$1,3 \times 10^{14}$	1690,61	1536,6	0,34361	0,31612	0.0203	0.02057

Fonte: ABDUKAYUMOV et al., 2004.

Neste trabalho os autores mostram que conseguem produzir o iodo-125 com grau de pureza radionuclídica de 0,005%, quando irradiam o xenônio-124 por 2,5 h a um fluxo de nêutrons de $1,3 \times 10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$. O artigo enfatiza os métodos utilizados na medição, não mencionando detalhes importantes do processo de produção do iodo-125, como o tipo de cilindro utilizado, os sistemas de carregamento e descarregamento do gás xenônio e o método de extração do iodo-125 do cilindro.

3.7 Produção de iodo-125 na Universidade do Texas A&M

Kar (2007) propõe um novo sistema de recuperação para o iodo-125 em sua dissertação de mestrado, no Nuclear Science Center – NSC – Texas A&M

University, através da destilação da solução de hidróxido de sódio 0,1N, usada para retirar o iodo-125 da cápsula de irradiação, aumenta-se a concentração de iodo e, com isto, aumenta-se a atividade específica da solução final. Ele utilizou um cilindro de alumínio, ao invés de aço inoxidável, devido à maior transparência do alumínio aos nêutrons térmicos, deste modo é possível obter maior atividade de iodo-125, em menos tempo, e com menos contaminação de iodo-126. Na FIG. 13 está representado o sistema de carga e descarga de xenônio para a produção de iodo-125. Com as válvulas 1, 2, 3 e 4 abertas a bomba de vácuo remove o ar do cilindro de alumínio. Após alcançar o vácuo desejado a válvula 1 é fechada, o cilindro de alumínio é imerso em nitrogênio líquido, e a válvula 6 é aberta, permitindo o fluxo de xenônio-124 do cilindro de armazenamento para o cilindro de irradiação. O xenônio-124 solidifica-se na “armadilha fria” do cilindro de irradiação. Após completar a transferência as válvulas são fechadas, e o cilindro de irradiação é desacoplado do sistema. O cilindro é colocado no núcleo do reator e irradiado por 14 horas para a produção de xenônio-125. Ao final da irradiação o cilindro é removido do núcleo e armazenado longe do fluxo de nêutrons, dentro da piscina do reator.

Fonte: KAR, 2007.

FIGURA 13 – Esquema proposto para a produção de iodo-125 na Universidade do Texas A&M

Durante o armazenamento o xenônio-125 decai para o iodo-125, como apresentado na TAB. 10. Nesta estimativa de produção foram utilizados 7,65 gramas de xenônio-124, que depois de irradiados por 14 horas, produziram $2,02 \times 10^4$ GBq (546 Ci) de xenônio-125. Foi utilizado este tempo de irradiação para minimizar a probabilidade de produção de iodo-126 a partir do iodo-125.

TABELA 10 – Atividade de Xe-125 e I-125 durante o decaimento na Universidade do Texas A&M

Dias	Atividade ¹²⁵ Xe		Atividade ¹²⁵ I	
	(Ci)	(GBq)	(Ci)	(GBq)
0	546,3128	20213,50	0,0000	0,00
0,01	541,0236	20017,80	0,0627	2,31
0,05	520,3750	19253,80	0,3074	11,37
0,1	495,6688	18339,70	0,6000	22,20
0,5	335,8863	12427,70	2,4869	92,01
0,7	276,4984	10230,40	3,1844	117,82
1	206,3128	7633,50	4,0016	148,05
2	78,0629	2888,32	5,4684	202,33
3	29,5085	1091,80	5,9774	221,63
4	11,1545	412,70	6,1250	226,62
5	4,2165	156,00	6,1365	227,05
6	1,5939	58,97	6,0970	225,58
7	0,6025	22,29	6,0388	223,43
8	0,2277	8,42	5,9740	221,03
9	0,0861	3,18	5,9071	218,56
10	0,0325	1,20	5,8400	216,08

Fonte: KAR, 2007.

Na FIG. 14 é mostrada a curva de crescimento do iodo-125 com relação à curva de decaimento do xenônio-125 em função do tempo. Podemos notar que, entre o quarto e o quinto dia, a atividade de iodo-125 alcança a atividade de xenônio-125. Neste trabalho foi utilizado o tempo de decaimento de 10 dias para diminuir a exposição dos operadores à atividade do xenônio-125, e também limitar as chances de contaminação com o iodo-126, a produção estimada de iodo-125 após o período de decaimento é de 216,08 GBq (5,84 Ci). Após o término do período de decaimento, o cilindro é retirado da piscina do

reator, e acoplado novamente ao sistema de carga e descarga (FIG. 13). Após evacuar a tubulação do sistema, o cilindro de armazenamento de xenônio-124 é imerso em nitrogênio líquido, e as válvulas 4, 3, 2 e 6 são abertas, o xenônio-124 e uma pequena quantidade de xenônio-125 é transferido para o cilindro de armazenamento para ser usado em futuros ciclos de irradiação. Após a transferência do gás as válvulas 4, 3, 2 e 6 são fechadas, o cilindro de irradiação é desacoplado do sistema, e transportado para a *glovebox* para a extração e destilação.

Fonte: KAR, 2007.

FIGURA 14 – Comparação entre a quantidade de Xe-125 e I-125 ao longo do tempo após a irradiação na Universidade do Texas A&M

Embora o autor descreva detalhes sobre a produção de iodo-125 neste trabalho, não há relatos se, atualmente, há produção, experimental ou comercial, de iodo-125 na Universidade A&M do Texas. Em sua pesquisa o autor utilizou o iodo-127 (isótopo natural), e iodo-128 (obtido a partir da irradiação de iodo-127 em reator nuclear), para estudos sobre concentração e purificação de soluções de iodo. O autor obteve uma curva de calibração em espectrofotômetro, que fornece a massa de iodo em uma solução, a partir da densidade óptica. Utilizando-se da curva de calibração o autor calcula a eficiência de extração do processo de lavagem do iodo adsorvido nas paredes da cápsula de alumínio.

3.8 Produção de iodo-125 na Universidade McMaster

Hassal (MCMMASTER, 1997, 1999 e 2000) propõe, em uma patente, um método para a produção de iodo-125 através dos equipamentos vistos nas FIG. 15, 16 e 17.

Fonte: MCMMASTER, 1997, 1999 e 2000.

FIGURA 15 – Diagrama do Sistema de Irradiação de iodo-125 na Universidade McMaster

Com a utilização do sistema de carga e descarga (50) FIG. 16, um sistema de vácuo composto por uma bomba mecânica (52), uma bomba difusora (66) e bombas criogênicas (32) e (34), a base de nitrogênio líquido, o gás xenônio é transferido do cilindro de armazenamento (68) para o sistema de irradiação da FIG. 15, o aparelho visto na FIG.15 é então submerso na piscina do reator. O gás xenônio-124 é irradiado na câmara de irradiação (18), em um fluxo de $10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Após a irradiação o xenônio é transferido para o cilindro de decaimento (20), após um determinado tempo, o gás xenônio-125 decai parcialmente para o iodo-125, então através da bomba criogênica (32), o gás xenônio é retirado do cilindro (20), deste modo o iodo-125 torna-se o radionuclídeo de maior concentração no cilindro (20), e o xenônio é novamente transferido para a câmara de irradiação (18) para um novo ciclo de irradiação. De acordo com Kar (2007) a McMaster irradia 5 gramas de xenônio-124 por 15 horas por dia, por um período de 3 a 5

produção. De acordo com McMaster (2015) a pureza radionuclídica da solução final com iodo-125 é de:

iodo-125 > 99,9%;

iodo-126 < 0,005%;

césio-134 < 0,0001%; e

césio-137 < 0,0001% (MCMASTER, 2015).

Fonte: MCMASTER, 1997, 1999 e 2000.

FIGURA 17 – Diagrama da *hotcell* do iodo-125 na Universidade McMaster

3.9 Produção de iodo-125 na Índia

O Bhabha Atomic Research Centre, localizado em Mumbai – Índia, produz desde 2003 iodo-125 para utilização em radioimunoensaio (RIA) e sementes de iodo-125 (VENKATESH; BANERJEE, 2007). Os procedimentos de irradiação envolvem uma semana de irradiação do gás xenônio-124 (4g a 10 atm) em uma cápsula selada de 70 mL, vista na FIG. 18. Para minimizar a formação de iodo-126 é utilizado curto tempo de irradiação a um fluxo médio e um grande volume de gás xenônio. A atividade específica alcançada é de 450-600 MBq/ μ g (15-16 mCi/ μ g). São processadas oito bateladas e produzido aproximadamente 130 GBq (3,5 Ci) na pureza radioquímica e concentração radioativa necessária.

Fonte: VENKATESH; BANERJEE, 2007.

FIGURA 18 – Cápsula selada para irradiação de xenônio no reator Dhruva, Índia

A publicação não fornece mais detalhes, como os métodos de carregamento e descarregamento do gás xenônio, o método de selamento da cápsula e o método de extração do iodo-125.

3.10 Produção de iodo-125 na Universidade da Califórnia - Davis

Boussoufi et al. (2008) apresentam o desenvolvimento de um sistema de produção em larga escala de iodo-125 na Universidade da Califórnia – Davis/McClellan Nuclear Radiation Center. Este sistema foi desenvolvido após a inutilização do sistema anterior, proveniente da Sandia National Laboratory, que devido a uma falha no alvo, resultou em altos níveis de contaminação no sistema inteiro. O sistema antigo é mostrado na FIG. 19 (Parma apud Kar, 2007, p. 14), nele era executado a irradiação, transferência e decaimento do xenônio-125 para iodo-125. O processo de eluição a partir da câmara de decaimento era feito através da passagem de um fluxo de uma solução 0,005 N de hidróxido de sódio através de um sistema de tubos capilares que levavam diretamente ao recipiente final do produto. O vaso de decaimento/armazenamento era circundado por aquecedores elétricos para manter quente a solução de hidróxido de sódio.

Fonte: KAR, 2007.

FIGURA 19 – Unidade de produção de iodo-125 da UC Davis

Atualmente o novo alvo e o sistema de decaimento e transporte multicompartimentado (modular) é operado automaticamente e fornece altos níveis de iodo-125 em batelada. Este sistema é baseado no Sistema de Produção de iodo-123, a partir da reação $^{124}\text{Xe}(p,2n)^{123}\text{Cs} \rightarrow ^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$, do Crocker Nuclear Laboratory da Universidade da Califórnia – Davis. Nas TAB. 11 e TAB. 12 estão apresentadas as condições de operação.

TABELA 11 - Características dos alvos de xenônio-124 na Universidade da Califórnia - Davis

Localização no núcleo	Material da parede externo/interno	Volume (L)	Pressão	
			kPa	psi
Antigo E6	Al/Al	0,300	827	120
Novo E6	Aço inox/Aço inox	0,482	1378	200
Novo E6	Aço inox/Aço inox	0,482	2756	400
Central	Aço inox/Aço inox	0,922	1378	200
Central	Aço inox/Aço inox	0,922	2756	400

Fonte: BOUSSOUFI et al., 2008.

TABELA 12 - Estimativa de produção de iodo-125 para um ciclo de irradiação de 8 horas a 1,5 MW, 3,5 dias de decaimento e ~60% de eficiência de extração total na Universidade da Califórnia - Davis

Localização no núcleo	Excesso de reatividade	Fluxo de nêutrons ($n\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$)	Produção de ^{125}I por ciclo	
			GBq	Ci
Antigo E6	---	$1,17 \times 10^{13}$	307,1	8,3
Novo E6	-\$0,47	$7,57 \times 10^{12}$	514,3	13,9
Novo E6	-\$0,69	$6,37 \times 10^{12}$	869,5	23,5
Central	-\$0,35	$8,02 \times 10^{12}$	1047,1	28,3
Central	-\$0,64	$6,38 \times 10^{12}$	1672,4	45,2

Fonte: BOUSSOUFI et al., 2008.

O sistema de produção de iodo-125 da Universidade da Califórnia – Davis apresentado anteriormente (Boussoufi et al., 2008), está em um pedido de patente de Lagunas-Solar et al. (UCDAVIS, 2011) no qual está descrito um sistema e método de produção de iodo-125. As FIG. 20 a 24 ilustram um sistema de larga escala de produção em batelada de iodo-125 em reator, através da reação $^{124}\text{Xe}(n,\gamma)^{125}\text{Xe}(16,9\text{ h}) \rightarrow ^{125}\text{I}$. Na FIG. 20 é mostrado o diagrama de um sistema de irradiação removível (10), em uma instalação de irradiação central (11) no núcleo de um reator. O sistema de irradiação (10) compreende um cilindro de irradiação (14) de comprimento L carregado com xenônio-124 enriquecido (preferencialmente acima de 99%), o sistema de irradiação possui duplo encapsulamento, composto pelo cilindro de irradiação (14) e o cilindro externo (16). O cilindro de irradiação é geralmente feito de aço inoxidável, pressurizado a cerca de 1378,9 kPa (200 psi), e irradiado por um fluxo de nêutrons térmicos (34), por um período que varia de 1 a 40 horas (preferencialmente por aproximadamente 20 horas) para gerar uma mistura de gás Xe-124/Xe-125. O cilindro de irradiação está preso ao cilindro externo através da conexão 50 e ao tubo de extensão de parede pesada (18). O cilindro de irradiação (14) pode ser carregado com xenônio-124 enriquecido, dentro do sistema de irradiação (10) automaticamente, por meio das válvulas de fole de selo mecânico (22), que retém o gás proveniente de algum vazamento inadvertido. As duas válvulas (22), mostradas na FIG. 20, são para fornecer redundância na proteção, no caso de

falha de uma das válvulas. A tampa do cilindro externo (36) foi projetada para ser acoplada por meio da rosca com vedação (20). A tampa do cilindro externo também possui asas laterais (30) para abertura remota, e um gancho na parte superior para transporte.

Fonte: UCDAVIS, 2011.

FIGURA 20 – Cilindro de irradiação numa instalação de irradiação central na UC Davis

Na FIG. 21 é mostrada a parte superior do sistema de irradiação (10). Este dispositivo (36) compreende a válvula (28) (que fornece acesso ao interior do cilindro externo), possibilitando estabelecer a pressão desejada (vácuo ou atmosfera). Esta tampa (36) também contém um sensor de pressão (24), composto por um tubo com um indicador em formato esférico. Quando é feito vácuo no cilindro externo (16) (FIG. 20), o indicador esférico é levado à posição mais baixo do tubo (42). Se ocorrer um vazamento no cilindro de irradiação pressurizado, a pressão no cilindro externo aumentará levando o indicador esférico à posição (40).

Fonte: UCDAVIS, 2011.

FIGURA 21 – Parte superior do cilindro de irradiação da UC Davis

Ao final da irradiação, o sistema de irradiação (10) será removido da instalação de irradiação central (11) e transferido para uma blindagem de chumbo mostrada na FIG. 22.

Fonte: UCDAVIS, 2011.

FIGURA 22 – Cilindro de irradiação no interior da blindagem de transporte da UC Davis

Em seguida, a blindagem de chumbo com o cilindro de irradiação é transportada para o sistema de transferência, decaimento e recarga do alvo de xenônio-125 (100), visto na FIG. 23. Durante o acoplamento do sistema de irradiação (10) no sistema de transferência (100), é possível visualizar remotamente o indicador de pressão (24) (FIG. 21). Caso a esfera indicadora de pressão esteja na posição (40), isto significa que pode ter havido vazamento no cilindro de irradiação, a produção é interrompida e os procedimentos de emergência são iniciados.

Fonte: UCDAVIS, 2011.

FIGURA 23 – Sistema de transferência, decaimento e recarga do xenônio-125 da UC Davis

O sistema de transferência utiliza hélio (via bomba 120 e filtro 122), e armadilhas frias (com nitrogênio líquido), para transferir o xenônio-125 e o xenônio-124 remanescente do cilindro de irradiação (14) para um cilindro de decaimento de aço inoxidável (104). Entre o cilindro de irradiação (14) e o cilindro de decaimento (104), a mistura gasosa passa através de um filtro (126), que é utilizado para reter o iodo-126, visando fixar sua quantidade abaixo dos limites máximos estabelecidos pelas normas em vigor. Após a transferência, a mistura gasosa é deixada de 3 a 5 dias em decaimento, para permitir a transformação do xenônio-125 em iodo-125. O cilindro de decaimento (104) é formado por uma armadilha espiral (136), resfriada criogenicamente, na qual o xenônio-125 é convertido em iodo-125. Em seguida ao término do período de decaimento estabelecido, o xenônio-124 e o xenônio-125 remanescente são conduzidos pela linha (130), através de transferência criogênica, para um novo cilindro de irradiação (106), deixando o iodo-125 depositado na superfície da armadilha espiral (136). Nitrogênio líquido (N_2L) é introduzido nos sistemas (102, 104 e 106) para executar as transferências, e vários sensores podem ser acrescentados nos

sistemas (102, 104 e 106) como: sensor de radiação (114), sensor de temperatura (112), sensor de nível de nitrogênio líquido (110), etc. Aquecedores podem ser instalados no sistema de irradiação (102) e no sistema de decaimento (104). Externamente à segunda contenção estão os tanques de hélio (142) e nitrogênio líquido (140), que são utilizados nas transferências gasosas. O Painel de Controle de Processos (150) monitora e controla todos os processos e a potência elétrica (144) consumida pelos componentes. Filtros de ar do tipo HEPA (High Efficiency Particulate Arresting) (146) são utilizados para captar qualquer contaminante/radiação que possa ser expelido do sistema (100), e monitorado pelo sensor de radiação (114). Após o término do período de decaimento, o sistema de decaimento (104), contendo o iodo-125, será transferido para outra instalação para processamento, controle de qualidade e distribuição.

Fonte: UCDAVIS, 2011.

FIGURA 24 – Sistema de recuperação e fracionamento do iodo-125 da UC Davis

Na FIG. 24 é mostrado o sistema de recuperação e fracionamento do iodo-125 (200), que permite a lavagem do iodo-125 radioativo. A operação é realizada remotamente através do uso de uma solução estéril, de hidróxido de sódio (110) (0,1 N NaOH), livre de pirogênio, dentro de frascos de vidro de qualidade farmacêutica (236), blindados com chumbo. Após a instalação do

cilindro de decaimento no sistema de recuperação e fracionamento do iodo-125, é executado um teste de integridade no sistema através de sensores de pressão e/ou detetores de hélio. Para a retirada de traços de xenônio-125 remanescentes no cilindro (220), é utilizado um fluxo controlado de hélio (202), em conjunto com NaOH aquecido (204). Qualquer traço de xenônio-125 ficará preso na armadilha criogênica, com uma espessa parede de cobre em espiral (230). O fluxo de hélio, depois de passar pela espiral de cobre (136), passa por um filtro de iodo, para impedir qualquer lançamento de iodo-125 na atmosfera. O processo de recuperação e fracionamento de iodo-125 é controlado através dos indicadores de fluxo (212), válvulas de três vias (210), válvulas abre/fecha (28) e conectores (50), que são posicionados em vários locais do sistema (200). O iodo-125 que preenche a linha (222) é direcionado automaticamente à unidade de dispensa (234). O sistema foi projetado para que todos os movimentos e processos sejam automáticos e controlados remotamente por meio do painel de controle (150).

O órgão regulador e fiscalizador da área nuclear norte-americana, United States Nuclear Regulatory Commission – USNRC (USNRC, 2015), tem realizado sessões públicas sobre variados temas da área nuclear. Em uma dessas sessões públicas, em 18 de dezembro de 2012, foi abordada a análise de acidentes no transporte do alvo da produção de iodo-125 na UC Davis (LAGUNAS-SOLAR, 2015).

Fonte: LAGUNAS-SOLAR, 2015.

FIGURA 25 - Produção de iodo-125 na UC Davis em função da pressão de carga do Xe-124 no alvo

Na FIG. 25 é mostrado o rendimento esperado das produções em função da pressão de carga do gás xenônio, o gráfico apresenta dados similares aos apresentados nas TAB. 11 e 12 do trabalho de Boussoufi (2008). A produção considera a irradiação da cápsula mostrada na FIG. 26. Esta cápsula, fabricada com alumínio 6061 T6, possui duplo encapsulamento, com paredes de 3,1 mm (1/8 pol.), quando pressurizada a 200 psi (13,79 bar) com xenônio enriquecido em Xe-124, por um período menor do que 14 h, no reator TRIGA da UC Davis a 2 MW, produz aproximadamente 4235 Ci de Xe-125 ao final da irradiação (EOB – End of Bombardment). Ao final do processamento (EOP – End of Processment), é esperada a produção de aproximadamente 47 Ci por batelada de iodo-125 em solução 0,1 N de NaOH. Estima-se uma perda de aproximadamente 16 Ci de iodo-125 no alvo, por decaimento do Xe-125 durante as 14 h de irradiação. Após os 5 d de decaimento a atividade do Xe-125 é de aproximadamente 32 Ci (0,6% da inicial).

Fonte: LAGUNAS-SOLAR, 2015.

FIGURA 26 – Cápsula de irradiação do gás xenônio da UC Davis, com duplo encapsulamento, reutilizável até 11 vezes

A cápsula mostrada na FIG. 26 é uma versão aperfeiçoada da mostrada nas FIG. 20, 21 e 22. Ela apresenta as mesmas características de duplo encapsulamento, mas teve seu topo modificado para facilitar o acesso ao conteúdo do material irradiado e o material de fabricação voltou a ser o alumínio (ver TAB. 11). A sua utilização é restrita a menos de 12 vezes.

Para o transporte da cápsula mostrada na FIG. 26 é utilizada a blindagem mostrada na FIG. 27. A blindagem foi projetada com várias camadas de proteção para garantir tanto a blindagem da radiação emitida pelo alvo, por meio de chumbo, quanto a liberação de iodo-125 no ambiente, por meio da utilização de carvão ativado. Ela também conta com um medidor de radiação no topo para a monitoração da parte interna da blindagem.

Fonte: LAGUNAS-SOLAR, 2015.

FIGURA 27 – Blindagem de transporte da cápsula de irradiação de Xe-125 para a produção de I-125 na UC Davis

3.11 Patente sobre produção de iodo-125 a partir da irradiação de tório-232 ou urânio-238

Mirzadeh et al. (USDOE, 1987) propõe em uma patente, um método para a preparação simultânea dos radionuclídeos radônio-211, xenônio-125, xenônio-123, astatínio-211, iodo-125 e iodo-123. Neste método há dois materiais alvo que podem ser irradiados: o tório-232 ou o urânio-238. Estes materiais são irradiados com prótons, numa faixa de energia de 2 a 30 GeV, por um período de até 15 horas. Após a irradiação o material é dissolvido com uma solução de ácido clorídrico, ácido nítrico e ácido fluorídrico, então um fluxo de hélio é utilizado para conduzir os radionuclídeos radônio-210, radônio-211, xenônio-123 e xenônio-125 através de um sistema contendo filtros, detector de radiação, separador cromatográfico e armadilhas criogênicas para separação e purificação dos radionuclídeos. A exigência de um acelerador com energia de até 30 GeV, o uso de materiais físséis como alvo e um sistema de separação complexo elevam

muito o custo de produção deste método, não há literatura sobre algum local que tenha adotado este método de produção.

3.12 Patente sobre produção de esferas com iodo-125

Robert Robertson (1999) patenteou um método de produção de substrato carregado com iodo-125 para uso em fontes radioativas. Na FIG. 28 é mostrado o desenho esquemático do sistema de manuseio do gás xenônio: conectado à câmara de irradiação de xenônio (12) no centro de um reator nuclear (11), e a um vaso de decaimento (14) contendo partículas do substrato (15). Uma certa quantidade de gás xenônio enriquecido acima de 99% em xenônio-124 é irradiado em um reator nuclear (11). Ao final da irradiação o gás xenônio é transferido para um vaso de decaimento (14), contendo pequenas esferas de zeólita dopadas com prata (15). O vaso de decaimento (14) é então isolado do sistema, e mantido a uma temperatura de aproximadamente -75°C por meio de gelo seco, durante este período parte do xenônio-125 transforma-se em iodo-125, que se deposita nas esferas de zeólita. Após um determinado período de tempo o gás xenônio é bombeado para um vaso de armazenamento (18). Este ciclo é repetido até a zeólita atingir a atividade radiativa necessária para uma fonte de braquiterapia. As esferas são então transferidas do vaso de decaimento (14) para um frasco de quartzo, colocadas em um forno, e aquecidas até 1000°C . Neste processo as esferas reduzem o seu diâmetro em cerca de 25% e, após o resfriamento estão prontas para o uso em fontes radioativas. Este método de produção apresenta a grande vantagem de adsorção direta do iodo-125 nas esferas de zeólita, sem a necessidade de extração do iodo em solução de NaOH, mantendo o material radioativo confinado no sistema e reduzindo o risco radiológico de manipulação do iodo-125.

Fonte: Robertson, 1999.

FIGURA 28 - Sistema de irradiação do xenônio-124 e adsorção do iodo-125 em esferas de zeólitas

3.13 Patente coreana sobre cápsula de irradiação de xenônio-124

Em um pedido de patente Kim et al. (KAERI, 2006) propõe uma cápsula de irradiação de ^{124}Xe que possibilite uma circulação interna do gás (FIG. 29). Esta circulação visa à diminuição do contaminante iodo-126, para que isto aconteça a cápsula foi projetada com duas regiões distintas. Uma inferior (3), onde fica concentrado o gás ^{124}Xe , sujeita a um alto fluxo de nêutrons, pois está numa cavidade de irradiação de um núcleo de um reator de pesquisa (10), com uma temperatura alta, e uma região superior (5), onde deve se concentrar o iodo-125, com menor fluxo de nêutrons, a uma temperatura mais baixa. Para conseguir isto a região inferior possui um isolamento térmico, baseado em vácuo, onde há uma dupla parede na cápsula (6), para diminuir a ação da água de resfriamento do núcleo do reator. A região superior da cápsula é circundada por lâminas (7), que aumentam sua superfície de contato com a água de refrigeração, visando diminuir a temperatura desta região. Entre a região superior e inferior existe uma tela porosa que tem como intuito deixar passar o gás e reter os nêutrons para que não atuem na região superior, evitando a formação do contaminante ^{126}I . Com este mesmo intuito, pode ser colocada uma capa com um material absorvedor de nêutrons em volta da região superior. Entre a região superior e inferior foi

projetado um gargalo e inserido um tubo defletor para uma circulação mais suave dos gases dentro da cápsula.

Fonte: KAERI, 2006.

FIGURA 29 – Cápsula de irradiação de xenônio-124 da Coreia

3.14 Estimativa da produção de iodo-125 e iodo-126 em função do tempo de irradiação

Na FIG. 30 é mostrado um gráfico da produção de iodo-125 a partir de um alvo de xenônio natural, e a formação do iodo-126 como impureza (MIRZADEH et al., 2003). 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.

Fonte: MIRZADEH et al., 2003.

FIGURA 30 - Produção de iodo-125 a partir de um alvo de xenônio natural

($\Phi(0)=1 \times 10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, t (irradiação)=100 h, t (decaimento)=100 h)

Na FIG. 31 é mostrado o aumento da produção de iodo-125 e da contaminação radionuclídica em função do fluxo de nêutrons e do período de irradiação, por meio do código computacional ISOTOP (MARTINHO et al., 1984). É possível observar que maiores períodos de irradiação e maiores fluxos de nêutrons proporcionam maior produção de iodo-125, mas também incrementam a produção do contaminante.

Fonte: MARTINHO et al., 1984.

FIGURA 31 - Atividade do iodo-125 e contaminação radionuclídica do iodo-125 como função do tempo de irradiação para diferentes fluxos de nêutrons térmicos

4. METODOLOGIA

4.1 Roteiro de trabalho

Na irradiação de gás xenônio para a produção de iodo-125, pelo método de batelada, são utilizados, principalmente, cilindros de dois tipos de material: aço inoxidável e alumínio. Optou-se pelo alumínio, pelas suas conhecidas características na área nuclear: seção de choque de absorção baixa para nêutrons, produção de radionuclídeos de meia-vida curta, boa condutividade térmica, boa usinabilidade e possibilidade de selamento da cápsula a frio, sem a necessidade de aquecimento e adição de material na soldagem (IAEA, 2003; KAR, 2007; UCDAVIS, 2011).

A cápsula projetada possui um formato de ampola, conforme FIG. 32, com as duas extremidades comprimidas, e um canal no meio para facilitar a abertura, medindo no máximo 60 mm de comprimento, diâmetro externo de 9,5 mm (3/8 pol.), com espessura da parede de 1,6 mm (1/16 pol.), resultando num volume útil máximo de 1,5 cm³. O tubo de alumínio escolhido foi o trefilado, sem costura, com liga 6061 T6 (Si 0,4-0,8%; Fe 0,7%; Cu 0,15-0,40%; Mn 0,15%; Mg 0,8-1,2%; Cr 0,04-0,35%; Zn 0,25%; Ti 0,15%; outros 0,05% por elemento com máximo de 0,15% dos elementos restantes), conforme norma ABNT NBR 6834 (2000). Esta liga é similar à utilizada para a produção de iodo-125 na Hungria (IAEA, 2003), e na UC Davis (LAGUNAS-SOLAR, 2015), apresenta boa resistência mecânica (para suportar a pressão interna do gás), com limite de resistência à tração de 310 MPa, limite de escoamento de 276 MPa, e ductibilidade elevada, permitindo a conformação das extremidades com elevada taxa de deformação (ASM, 1992). Este tubo apresenta uma pressão de ruptura esperada da ordem de 700 bar e uma pressão de trabalho máximo admissível em 300 bar (Swagelok, 2014). Os tubos de alumínio passaram por um processo de recozimento (*annealing*), eles foram deixados num forno por 2,5 horas a uma temperatura de 345 °C, seguido de resfriamento não controlado dentro do próprio forno, tal tratamento visa aumentar a ductibilidade da liga de alumínio (ASM, 1990).

FIGURA 32 – Projeto da cápsula de alumínio com canal central

O selamento das extremidades da cápsula é feito através de compressão do tubo de alumínio, esta compressão é executada por ferramentas modificadas. A primeira ferramenta usada foi um alicate de cortar vergalhão de 42 polegadas (FIG. 33). O fio da lâmina deste alicate foi modificado de forma que comprimissem o tubo de alumínio sem cortá-lo (FIG. 34). A segunda ferramenta adaptada para este processo foi um cabeçote de compressão hidráulica (força de compressão máxima de 130 kN, marca Cembre, modelo RHC131), com bomba hidráulica manual acoplada (pressão máxima de trabalho de 700 bar), e matrizes de compressão modificadas (FIG. 35 e FIG. 36).

FIGURA 33 – Alicate de cortar vergalhão de 42 polegadas

FIGURA 34 – Fio da lâmina do alicate de cortar vergalhão modificado

FIGURA 35 – Cabeçote de compressão hidráulico com bomba hidráulica manual

FIGURA 36 – Matrizes modificadas do cabeçote de compressão hidráulica

Para a fabricação das cápsulas, os tubos de alumínio são cortados na medida adequada e o canal mediano é usinado no torno (FIG. 37), uma das extremidades é comprimida e na outra é colocada uma conexão de latão da marca Swagelok de dupla anilha para tubo de 3/8 de polegada (FIG. 38 e FIG. 39).

FIGURA 37 – Canal usinado no tubo de alumínio

FIGURA 38 – Conexão de dupla anilha de 3/8 de polegada da Swagelok instalada no tubo de alumínio

FIGURA 39 – Tubo de alumínio preparado para teste

4.1.1 Teste de pressão com nitrogênio

Para testar a resistência do selamento à pressão, o tubo de alumínio selado foi acoplado a um cilindro de nitrogênio. A pressão no tubo foi aumentada gradativamente em intervalos de um minuto, a estanqueidade do selamento foi verificada a partir da formação de bolhas em espuma colocada na extremidade selada do tubo (FIG. 40).

FIGURA 40 – Teste de pressão com nitrogênio em tubo de alumínio selado.

4.1.2 Teste de pressão com bomba hidráulica manual

Como o teste de resistência à pressão com o sistema de nitrogênio, não foi suficiente para determinar uma pressão de ruptura do selamento, acoplamos o tubo selado a uma bomba hidráulica manual, capaz de fornecer pressão de até 700 bar. Foi utilizado tempo de suporte de carga de um minuto, com pressão ascendente. A detecção do vazamento foi feita através da visualização de óleo hidráulico vermelho na extremidade selada (FIG. 41).

FIGURA 41 – Teste com bomba hidráulica manual em tubo de alumínio selado

4.1.3 Sistema de carga do gás

Foi construído um sistema de carga de gás para preenchimento das cápsulas (FIG. 42). Este sistema é composto por:

- Cilindro de gás para carga (hélio para teste de vazamento, ou xenônio para irradiação);
- Armadilha fria de nitrogênio líquido (N_2L);
- Cilindro de nitrogênio para ventilação do sistema;
- Válvulas de abertura/fechamento de cilindro (VC1 e VC2);
- Regulador de pressão para o gás de carga;
- Válvulas manuais (VM1, VM2 e VM3);
- Válvulas com atuador pneumático da Swagelok, modelo 4BK série 1, para gases de alta pureza (VP1, VP2, VP3 e VP4);
- Manovacuômetro;
- Sensor de vácuo tipo Pirani; e
- Bomba de vácuo mecânica.

FIGURA 42 – Diagrama do Sistema de carga de gás em tubo de alumínio

4.1.4 Teste de estanqueidade

Para garantir a estanqueidade, fornecida pelo processo de selamento, utilizamos como referência a norma ISO 9978 – *Sealed radioactive sources – Leakage test methods* (1992). A norma ISO 9978 estabelece que, para fontes seladas de conteúdo lixiviável ou gasoso, podem ser aplicados os seguintes testes: teste de vazamento com espectrômetro de massa de hélio, com a fonte preenchida com hélio, teste de vazamento com espectrômetro de massa de hélio, com a fonte mantida por um determinado período, em ambiente com pressão de hélio, e teste de bolhas após resfriamento em nitrogênio líquido. O valor limite para a taxa de vazamento de hélio nestas fontes é de $10^{-2} \mu\text{Pa m}^3 \text{s}^{-1}$, este valor, pode ser considerado, na maioria dos casos, a um limite de lançamento de 200 Bq (5,4 nCi) de atividade (ISO, 1992).

Para o teste de vazamento com espectrômetro de massa de hélio, utilizou-se o detector de vazamentos da marca Edwards, modelo Spectron 3000 (FIG. 43).

1 Bomba mecânica	14 Válvulas do acumulador
2 Bomba mecânica	15 Sensor de vácuo Pirani
3 Conexão da sonda Visco	16 Porta da armadilha fria de nitrogênio
4 Controlador do Spectron	17 Válvula para auto calibração
5 Ventilador da bomba difusora	18 Vazamento de hélio de quartzo
6 Válvula de admissão de ar	19 Sensor de vácuo Pirani
7 Sensor de vácuo Pirani	20 Ventiladores
8 Válvula da porta de teste	21 Bomba difusora
9 Disjuntor	22 Espectrômetro de massa
10 Válvula de pré-vácuo	23 Volume de apoio
11 Conexão de extensão	24 Válvula do volume de apoio
12 Porta de teste	25 Pré-amplificador
13 Válvula de vazamento grosso	26 Reinicializador da bomba mecânica

FIGURA 43 – Detector de vazamentos da Edwards, modelo Spectron 3000

O detector de vazamentos da Edwards, modelo Spectron 3000, foi calibrado com um cilindro de calibração da Pfeiffer Vacuum, modelo CT 408, com taxa de vazamento de hélio de $2,4 \times 10^{-9} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1} \pm 15\%$.

Para o preparo das amostras com hélio, utilizou-se o sistema de carga de gás mostrado na FIG. 42. Inicialmente o sistema foi evacuado até a pressão de $7 \times 10^{-2} \text{ mbar}$, em seguida a válvula VP2 foi fechada, e o sistema foi preenchido

com hélio com pressões que variavam entre 1 e 3 bar (pressão absoluta). Após o sistema estabilizar na pressão correta, os tubos foram comprimidos com as ferramentas de compressão, e as amostras passaram por inspeção visual, antes de seguirem para o detector de vazamentos, as inspeções visuais foram realizadas no Sistema de inspeção visual da Westover Scientific, modelo PV-VMZ4-IB. Os resultados dos testes de segurança da cápsula de alumínio foram submetidos ao Comitê de Segurança Interno do Reator IEA-R1, que solicitou mais testes de estanqueidade, e que a cápsula também fosse submetida a um aumento de temperatura durante os testes. As amostras de cápsulas com hélio foram colocadas dentro de um forno, marca EDG, modelo Five-1, durante 10 minutos, numa temperatura de 100 °C, e logo em seguida inseridas na câmara de teste (FIG. 43, item 12) do detector de vazamentos de marca Edwards (Spectron 3000).

4.1.5 Características do gás xenônio

O gás xenônio utilizado foi fabricado pela empresa russa CMR – Center of Molecular Research (CMR, 2015), foi utilizado um cilindro de xenônio natural e um cilindro de xenônio enriquecido em Xe-124. Na TAB. 13 é apresentada a composição isotópica destes dois produtos. O custo do gás xenônio enriquecido em Xe-124 na composição especificada na TAB. 13 é de US\$ 28600/L.

TABELA 13 - Composição isotópica do xenônio natural e do xenônio enriquecido em xenônio-124

Isótopo Xe	Natural (%)	Enriquecido ¹²⁴ Xe (%)
Xe-124	0,0952(3)	>99,9
Xe-126	0,0890(14)	0,05
Xe-128	1,9102(8)	0,01
Xe-129	26,4006(82)	0,01
Xe-130	4,0710(13)	0,01
Xe-131	21,2324(30)	0,01
Xe-132	26,9086(33)	0,01
Xe-134	10,4357(21)	-
Xe-136	8,8573(44)	-

Fontes: LIDE, 2006; NUCLEAR, 2015; ISOTOPE, 2015; CMR, 2015.

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:

0,0890(14) = $0,0890 \pm 0,0014$.

Sinais convencionais utilizados:

- Valor abaixo do limite de detecção.

4.1.6 Procedimento de fabricação das cápsulas

Após a aprovação da cápsula pelo Comitê de Segurança Interno do Reator IEA-R1 foi estabelecido o seguinte procedimento para fabricação e controle de qualidade das cápsulas:

1. Corte do tubo de alumínio com 30 cm de comprimento;
2. Usinagem do canal com 1,3 mm de profundidade;
3. Tratamento térmico dos tubos (345 °C, 2,5 h, resfriamento não controlado);
4. Compressão de uma extremidade do tubo de alumínio (cabecote de compressão com pressão de 300 bar);
5. Inspeção visual da extremidade comprimida;
6. Teste de bolhas com pressão de nitrogênio (pressão máxima de 25 bar);
7. Preenchimento do tubo de alumínio com gás xenônio: inicialmente o sistema mostrado na FIG. 42 foi evacuado até 6×10^{-2} mbar (válvulas VC1 e VC2 fechadas, as demais abertas), em seguida a válvula VM3 foi fechada e a válvula VC1 aberta para preenchimento do sistema com xenônio, a pressão no sistema foi monitorada por meio do manovacuômetro, ao se atingir a pressão de xenônio desejada no sistema, o tubo de alumínio é comprimido, e então é colocado nitrogênio líquido na armadilha fria para a recuperação do xenônio novamente no cilindro, a válvula VC1 é fechada, o sistema é ventilado e um novo tubo de alumínio é inserido no sistema para um novo preenchimento com xenônio;
8. Inspeção visual na segunda extremidade comprimida;
9. Teste de bolhas com nitrogênio líquido, conforme norma ISO 9978 (1992): a cápsula é mergulhada em nitrogênio líquido por cinco minutos, em seguida é transferida para um líquido teste (etanol), onde são observadas possíveis emanações de bolhas da cápsula por um período de um minuto;

Foram preparadas 13 amostras de cápsulas para irradiação no Reator IEA-R1, sendo seis contendo xenônio natural e sete contendo xenônio enriquecido em xenônio-124 a 99,9%.

4.1.7 Irradiação das cápsulas

Foi solicitada a irradiação, no reator nuclear IEA-R1, de um conjunto de três cápsulas, contendo xenônio enriquecido (FIG. 44). Para este lote foi solicitada a irradiação em um ciclo completo do reator (aproximadamente 60 horas), a um fluxo entre 3×10^{13} e $8 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

FIGURA 44 – Cápsula de irradiação padrão do Reator IEA-R1 com três cápsulas contendo xenônio enriquecido em xenônio-124

4.1.8 Abertura da cápsula e recuperação do gás

A FIG. 45 representa um diagrama do Sistema de abertura das cápsulas de alumínio para recuperação do gás xenônio. O sistema é composto por:

- Câmara de vácuo;
- Suporte para a cápsula;
- Talhadeira;
- Válvula de vácuo manual (que aciona a talhadeira);
- Válvulas de vácuo (VM1, VM2 e VM3 para controle da pressão no sistema);
- Tubo de alumínio;
- Armadilha fria de nitrogênio líquido (N_2L);
- Sensor de vácuo tipo Pirani;
- Bomba de vácuo mecânica; e

- Capela de fluxo laminar equipada com filtro HEPA com carvão ativado e exaustor.

FIGURA 45 – Diagrama do Sistema de abertura das cápsulas de alumínio para recuperação do gás xenônio

A câmara de vácuo do Sistema de abertura e seus respectivos componentes são mostrados mais detalhadamente na FIG. 46. A câmara foi projetada de modo a garantir vácuo suficiente para evitar a contaminação do gás xenônio, durante o procedimento de abertura, e também permitir a movimentação da talhadeira, para executar a quebra da cápsula de alumínio no seu interior.

FIGURA 46 – Vista explodida da câmara de vácuo do Sistema de abertura das cápsulas de alumínio e recuperação do gás xenônio

Após a irradiação da cápsula no reator IEA-R1, ela é colocada sobre o suporte, que é montado dentro da câmara de vácuo, após a evacuação da câmara, a válvula de vácuo manual é acionada, empurrando a talhadeira contra o canal usinado na cápsula, quebrando a cápsula e liberando o gás na câmara, que é então aprisionado na armadilha fria, o tubo de alumínio é comprimido, criando-se uma nova cápsula com o gás xenônio.

4.1.9 Lavagem da cápsula

Para o procedimento de retirada do iodo-125 das paredes da cápsula foram utilizados dois porta-cápsulas, constituídos de frascos de vidro com silicone moldado na forma das cápsulas no interior dos frascos (Borracha de silicone bicomponente Silaex Química, SQ8335). As duas metades da cápsula são

inseridas uma em cada frasco, preenchidas com solução de NaOH (0,01 M), pH 11,4 (pHmetro MS Tecnopon, MEA-210), e colocadas dentro de um banho ultrassônico por 30 minutos (Limp Sonic, LS-1,8DA 40 kHz), a uma temperatura de 50 °C (FIG. 47).

FIGURA 47 – Porta-cápsulas (A) e banho ultrassônico (B)

O pH básico da solução de NaOH contribui para diminuir a perda de iodo-125 por volatilização, na TAB. 14 são apresentados os valores de pH e concentrações disponíveis na literatura.

TABELA 14 – Características da solução de NaOH utilizada na produção de iodo-125 nas instituições produtoras e em trabalhos publicados

Instituição	pH	Concentração
Nordion	8-11	-
McMaster	8-11	-
UC Davis		0,1 N
Izotop	8-10	0,04 M
PerkinElmer	12-14	0,1 M
POLATOM (IAEA, 2006)	-	0,01 M
IPEN (SOUZA, 2012)	-	0,0005–0,1 M
A&M (KAR, 2007)	-	0,1 M

Fontes: NORDION, 2015; MCMASTER, 2015; UCDAVIS, 2011; IZOTOP, 2015; PERKINELMER, 2015; IAEA, 2006; SOUZA, 2012; KAR, 2007.

Notas: Sinais convencionais utilizados:

- Dado numérico não disponível.

Alguns autores como Kar (2007) mencionam que a solução de NaOH reage com as paredes da cápsula de alumínio arrastando impurezas que contaminam a solução, radionuclídeos contaminantes, provenientes do material do porta-alvo, também são objeto de estudo de diversos trabalhos relacionados com a produção de flúor-18 (^{18}F), radionuclídeo produzido em acelerador cíclotron muito utilizado em medicina nuclear (ALVORD et al., 2005; ÁVILA-RODRIGUES et al., 2008; ITO et al., 2006; JOHNSON et al., 2007; MARENGO et al., 2008). Para verificar a influência da solução de NaOH, no arraste de radionuclídeos contaminantes provenientes da liga de alumínio, uma das metades da cápsula de alumínio foi preenchida com água destilada, e submetida ao banho ultrassônico. Os procedimentos de abertura da cápsula de alumínio e da coleta do iodo-125 são executados dentro de uma capela de fluxo laminar, para diminuir o risco de contaminação devido à volatilidade do iodo.

Após o banho ultrassônico, a solução de NaOH é transportada para outro frasco, onde é executada a medição da atividade de iodo-125, por meio de uma câmara de ionização da Capintec, modelo CRC-15R. Nas cápsulas preenchidas com água destilada foi adicionado, após a transferência para o frasco, solução de NaOH 0,025 M para que a solução final seja 0,01 M.

4.1.10 Análise radioquímica

O controle de qualidade radioquímico foi feito no Centro de Radiofarmácia do IPEN, o centro responsável pela produção e pelo controle de qualidade de todos os radiofármacos produzidos no IPEN, e distribuídos para os hospitais e clínicas de todo o Brasil. Foi utilizada a técnica de cromatografia em papel ascendente, a mesma usada para o controle de qualidade do iodo-131, o mais antigo radiofármaco produzido no Brasil, e do iodo-123. Foi separada uma amostra da solução de NaOH com iodo-125, a amostra deve estar em uma concentração de 1 mCi/mL, visando atingir a faixa de contagens mais adequada ao detector de radiação gama, a amostra foi preparada com volume de 200 μL e atividade de 200 μCi . Parte desta amostra foi aplicada acerca de 1,5 cm da base das fitas de papel-filtro (Whatman 3MM, 12,5 x 1,5 cm), aproximadamente 10 μL por fita, as fitas foram colocadas dentro de uma cuba cromatográfica, saturada com um solvente metanol:água (70:30). Após o solvente percorrer por

capilaridade toda a extensão das fitas, por um período de 1,5 h, elas foram cortadas em 10 segmentos iguais por fita, que, em seguida, foram analisados num contador de radiação gama Packard Cobra (tempo de contagem de 0,20 min, energia entre 15 e 75 keV), a relação entre a quantidade de iodeto (I^-) e iodato (IO_3^-) na solução é definida conforme a quantidade de contagens obtidas ao longo da fita cromatográfica.

4.1.11 Análise radionuclídica

Para a verificação da pureza radionuclídica, foi desenvolvida uma fonte radioativa planar (FIG. 48). Inicialmente foi fabricado um molde, no formato da base da fonte mostrada na FIG. 48, em silicone moldável (Borracha de silicone bicomponente Silaex Química, SQ8335). A base da fonte foi fabricada adicionando resina epóxi ao molde de silicone (Sistema de resina epoxídica Silaex Química, SQ 2004 e SQ3131). Uma amostra da solução de NaOH foi coletada, diluída até obtermos uma amostra com atividade entre 1 e 10 kBq (27 e 270 nCi), em seguida a amostra foi pipetada em um papel-filtro (Millipore, Ø 47 mm, SSWP004700), posicionado sobre a base da fonte planar. O papel-filtro foi deixado secando por 24 horas dentro da capela de fluxo laminar. Após a secagem do papel-filtro, foi adicionada resina epóxi sobre o papel filtro e a base, para o selamento da fonte e imobilização do iodo-125. Após a cura da resina (aproximadamente 24 horas), foram executados os testes de estanqueidade da fonte conforme a norma ISO 9978 (1992): teste de esfregação úmido, com papel embebido em solução com detergente (Merck, Extran MA 02 neutro) e teste de imersão em solução com detergente (Merck, Extran MA 02 neutro) a temperatura ambiente por 24 horas. As medições dos testes de esfregação e imersão foram realizadas numa câmara poço com cristal de iodeto de sódio (NaI) da Capintec, modelo CRC-15W, com tempo de contagem de 60 s. Os papéis embebidos em detergente e as amostras (1 mL) das soluções com detergente dos testes de imersão foram medidas antes e depois dos testes, para o cálculo do resultado final da análise.

FIGURA 48 – Desenho da fonte radioativa planar projetada para análise radionuclídica do iodo-125 em detector de HPGe

A análise por espectrometria gama das amostras de iodo-125 foi executada na Gerência de Metrologia das Radiações do IPEN, em um detector de germânio de alta pureza (HPGe), marca Canberra, do tipo XtRa (Extended Range Coaxial Ge Detector), modelo GX2518 (FIG. 49), software Genie 2000 e módulo DAS 1000. Este detector possui uma janela de compósito de carbono, que garante uma excelente eficiência de detecção dos fótons provenientes do iodo-125 com energia entre 27,2 e 35,4 keV, conforme é mostrado na FIG. 50. Os períodos de contagem das amostras variaram entre 5000 e 65000 s.

Para a determinação da atividade nas fontes radioativas planares, o sistema de espectrometria gama foi calibrado para eficiência de contagem em função das energias gama. Para tanto, foi utilizado um padrão de referência da marca Amersham: fonte de bário-133, com atividade de $1230 \mu\text{Ci} \pm 7\%$ em um de janeiro de 1988 (12 h GMT) (mais detalhes no anexo B). O padrão foi colocado em suporte acrílico na mesma geometria de contagem das fontes planares, subentendendo um mesmo ângulo sólido da fonte para o detector. As fontes radioativas (padrões e amostras) foram posicionadas de forma centralizada, coaxialmente ao eixo do detector e a uma distância de 12,7 cm entre a fonte e a superfície do detector.

Fonte: Canberra, 2015.

FIGURA 49 – Detector de germânio de alta pureza coaxial XtRa da Canberra

Fonte: Canberra, 2015.

FIGURA 50 – Curva de eficiência típica comparando os detectores de germânio de alta pureza XtRa e os detectores de germânio de alta pureza convencionais

A definição dessa geometria permitiu levantar uma curva de calibração específica (Eq. 1), para determinar a atividade de I-125 a partir do espectro gama (FIG. 51):

$$\ln(\text{Eff}) = -13,00 + 5,097 \times \ln(E) - 0,8738 \times \ln(E)^2 + 0,04029 \times \ln(E)^3 \quad (1)$$

em que

Eff é a eficiência do detector; e

E é a energia em keV.

FIGURA 51 – Curva de calibração de eficiência dual do detector de HPGe, utilizando um padrão de referência de bário-133, para espectrometria gama do iodo-125

As energias gama e as respectivas probabilidades de emissão gama para os radionuclídeos de interesse são compiladas num arquivo, com um utilitário e dados nucleares fornecidos pela própria biblioteca do aplicativo Genie 2000. A partir da curva de eficiência e do espectro, a atividade na amostra correspondente a cada linha de energia gama E_γ é obtida pela expressão:

$$A = \frac{C}{\varepsilon(E_\gamma) \cdot I_\gamma \cdot t_L} \quad (2)$$

em que

A é a atividade na fonte para um determinado radionuclídeo;

C é a área líquida das contagens do pico gama de energia E_γ ;

$\varepsilon(E_\gamma)$ é a eficiência de detecção na energia gama E_γ obtida pela curva de calibração;

I_γ é a probabilidade de emissão por desintegração para cada fóton gama; e t_L é o tempo útil (*live time*) de contagem.

As linhas gama utilizadas na determinação da atividade de iodo-125 e iodo-126 estão relacionadas na TAB. 15.

TABELA 15 – Linhas gama utilizadas na determinação de iodo-125 e iodo-126

Iodo-125		Iodo-126	
Energia gama (keV)	Intensidade (%)	Energia gama (keV)	Intensidade (%)
27,38	112,5	388,63	34,0
31,18	25,44	666,33	33,1
35,49	6,63		

Fonte: Biblioteca do software Genie 2000.

A atividade de I-125 em cada fonte foi determinada por meio da média ponderada pelas variâncias das atividades determinadas para cada pico gama detectado.

4.1.12 Procedimento do processo de abertura, lavagem da cápsula e coleta de amostras para análise radionuclídica e radioquímica

- 1) Completar o nível de água do banho ultrassônico e ligar o aquecimento;
- 2) Transportar a cápsula de alumínio para a capela de fluxo laminar;
- 3) Dentro da capela, colocar a cápsula sobre o suporte, fechar o suporte com a talhadeira posicionada sobre o canal da cápsula;
- 4) Colocar o suporte montado com a cápsula e a talhadeira na câmara de vácuo do Sistema de abertura da cápsula;
- 5) Fechar a câmara de vácuo do Sistema de abertura da cápsula;
- 6) Conectar a bomba de vácuo ao Sistema de abertura da cápsula;
- 7) Conectar tubo de alumínio para recuperação do gás ao Sistema de abertura da cápsula;
- 8) Evacuar o sistema com a bomba mecânica;
- 9) Aguardar estabilização do vácuo ($\sim 6 \times 10^{-2}$ mbar);
- 10) Preencher armadilha fria com nitrogênio líquido;
- 11) Aguardar estabilização da temperatura no tubo de alumínio (~ 5 min);
- 12) Girar a válvula de quebra da cápsula até o final;
- 13) Aquecer partes do sistema da câmara até próximo à armadilha fria;

- 14) Comprimir tubo de alumínio sobre a armadilha fria;
- 15) Retirar a nova cápsula com o gás xenônio recuperado;
- 16) Fechar a válvula de vácuo do Sistema e abrir a válvula de ventilação;
- 17) Fechar a válvula da bomba de vácuo, desligá-la e desconectá-la do Sistema;
- 18) Remover os parafusos para abrir câmara de vácuo;
- 19) Retirar a parte superior do Sistema de abertura;
- 20) Retirar a talhadeira e a tampa do suporte da cápsula;
- 21) Colocar as metades da cápsula nos suportes de vidro;
- 22) Adicionar 600 μL de solução de NaOH 0,01 M em cada metade de cápsula (ou 600 μL de água destilada);
- 23) Fechar os suportes de vidro com a tampa;
- 24) Colocar os dois suportes de vidro no banho ultrassônico e ligar;
- 25) Aguardar 30 min;
- 26) Retirar os suportes de vidro do banho ultrassônico;
- 27) Transferir as soluções das metades da cápsula para os frascos (nas cápsulas preenchidas com água destilada adicionar 400 μL de solução de NaOH 0,025 M);
- 28) Colocar os frascos em blindagens revestidas internamente com filme de PVC;
- 29) Medir a atividade das soluções em câmara de ionização;
- 30) Preparar amostra da solução de NaOH para análise radioquímica (volume de 200 μL , atividade de 200 μCi);
- 31) Preparar amostra da solução de NaOH para análise radionuclídica (atividade entre 1 e 10 kBq, 27 e 270 nCi);
- 32) Pipetar o volume da amostra em papel-filtro posicionado sobre a base da fonte planar;
- 33) Aguardar tempo de dessecação do papel-filtro (24 h);
- 34) Encapsular o papel-filtro com resina epóxi;
- 35) Aguardar tempo de cura da resina epóxi (24 h);
- 36) Executar testes de esfregão e de imersão na fonte planar.

5. RESULTADOS E DISCUSSÃO

5.1 Compressão do tubo de alumínio e tratamento térmico

A técnica de compressão do tubo de alumínio para a fabricação das cápsulas de amostras de gás xenônio apresentou resultados satisfatórios em aproximadamente 80% das compressões, como mostrado na FIG. 52A, entretanto, para evitar a formação de fissuras durante o selamento dos tubos (FIG. 52B), o que ocasionaria a perda de amostras do gás xenônio, foi utilizado o processo de recozimento (*annealing*).

FIGURA 52 – Extremidades da cápsula de alumínio sem apresentar fissura (A) e com fissura na compressão (B)

Após o tratamento térmico dos tubos de alumínio, as compressões passaram a não apresentar fissuras em 100% dos selamentos, porém, a usinagem do canal nos tubos de alumínio após o recozimento tornou-se inviável. Devido ao amolecimento e aumento da ductibilidade da liga, o tubo de alumínio recozido danificava-se durante a usinagem (FIG. 53).

FIGURA 53 – Tubo de alumínio recozido danificado durante a usinagem

Para contornar este problema foi estabelecido que a usinagem do canal deveria ser feita antes do recozimento dos tubos de alumínio.

5.2 Resultados dos testes de pressão

No teste de bolhas com pressão de gás nitrogênio os selamentos nos tubos de alumínio suportaram pressões até 22,5 bar (pressão limite do sistema) sem apresentar vazamentos detectáveis. Nos testes com a utilização da bomba hidráulica manual foram detectados vazamentos a partir de 75 bar de pressão interna. Os testes de pressão nos tubos de alumínio demonstraram que, os selamentos por compressão a frio são capazes de suportar pressões muito acima das necessárias para irradiação de amostras gasosas no Reator IEA-R1, pois a pressão de encapsulamento planejado para essas amostras é de no máximo 1 bar de pressão absoluta.

5.3 Fabricação das cápsulas de alumínio

Na FIG. 54 é mostrada a cápsula de alumínio fabricada, conforme o projeto descrito, com o selamento das duas extremidades mediante compressão a frio, e o canal mediano usinado em torno mecânico.

FIGURA 54 – Cápsula de alumínio contendo xenônio enriquecido em Xe-124, com as duas extremidades seladas e com o canal mediano usinado.

As cápsulas foram fabricadas de modo que as suas dimensões máximas permitam a sua inserção na cápsula de irradiação padrão (coelho) do Reator IEA-R1 (FIG. 55).

FIGURA 55 – Cápsula de alumínio para irradiação de amostras gasosas (A) e cápsula de irradiação padrão de amostras do Reator IEA-R1 (B)

5.4 Detecção de vazamento com espectrômetro de massa de hélio

Todo detector de vazamentos com espectrômetro de massa de hélio possui um tempo intrínseco de estabilização do sinal, este tempo varia conforme

o detector utilizado (HAN, 2012). Para verificar o tempo de estabilização do sinal, no detector de vazamentos da Edwards, foram feitas três medições sem amostras na câmara de teste (FIG. 56). As variações nos seis segundos iniciais referem-se à abertura da válvula da câmara de teste, estabilização do vácuo na câmara de teste e ajuste do detector de vazamento para a melhor escala de detecção. Houve estabilização do sinal a partir dos seis segundos de medição num valor próximo de $2 \times 10^{-10} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1}$.

FIGURA 56 – Tempo de estabilização do sinal no detector de vazamentos da Edwards

Foram examinadas 12 amostras de cápsulas de alumínio, preenchidas com hélio, com pressão entre 1 e 3 bar, seladas pelo método de compressão, com os instrumentos indicados anteriormente. As medições foram iniciadas a partir dos 20 segundos, para a estabilização do sinal do detector de vazamentos. Todas as amostras analisadas no espectrômetro de massa de hélio ficaram numa faixa próxima a $1 \times 10^{-10} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1}$, cerca de 100 vezes melhor do que o limite estabelecido de $1 \times 10^{-8} \text{ Pa m}^3 \text{ s}^{-1}$, da norma ISO 9978 (FIG. 57).

FIGURA 57 – Taxas de vazamento de hélio de 12 amostras de cápsulas de alumínio

Na FIG. 58 são mostradas as taxas de vazamento das cápsulas de alumínio aquecidas até 100 °C, e depois inseridas na câmara de teste do espectrômetro de massa de hélio. Todas as amostras examinadas ficaram numa faixa entre 5×10^{-10} e 4×10^{-11} $\text{Pa m}^3 \text{s}^{-1}$, permanecendo distante do limite de 1×10^{-8} $\text{Pa m}^3 \text{s}^{-1}$ estabelecido pela norma ISO 9978 (1992).

FIGURA 58 – Taxas de vazamento de hélio de 11 amostras de cápsulas de alumínio aquecidas até 100 °C

Os métodos utilizados para o selamento das cápsulas de alumínio garantem a estanqueidade das cápsulas, de acordo com a norma ISO 9978. Para o encapsulamento de gás xenônio, para irradiação no reator nuclear IEA-R1, foi

utilizado o método de encapsulamento descrito, além disso, as cápsulas foram submetidas à inspeção visual, método de detecção de vazamento por teste de bolhas depois de imersão em nitrogênio líquido, conforme norma ISO 9978, e serão novamente encapsuladas, no recipiente de irradiação padrão do reator nuclear IEA-R1, deste modo, qualquer possível lançamento de material radioativo, ficaria retido no segundo encapsulamento.

Os resultados dos ensaios das cápsulas de alumínio foram analisados pelo Comitê de Segurança Interno do Reator IEA-R1 e as cápsulas fabricadas obtiveram aprovação para irradiação no reator com pressão interna de até 1 bar (pressão absoluta).

5.5 Montagem do Sistema de carga de gás e preenchimento das cápsulas com xenônio

Após a autorização de irradiação do Comitê de Segurança Interno do Reator IEA-R1, o gás xenônio foi encapsulado no Sistema de carga de gás, conforme é mostrado na FIG. 59, onde é possível observar:

- A) Bomba de vácuo mecânica;
- B) Tubo de alumínio para encapsulamento do gás;
- C) Medidor de vácuo;
- D) Conjunto de válvulas;
- E) Sensor de vácuo tipo Pirani;
- F) Manovacuômetro;
- G) Cilindro de gás xenônio natural;
- H) Cilindro de gás xenônio enriquecido em Xe-124;
- I) Vasos de armazenamento criogênico tipo *dewar*, e
- J) Armadilhas frias para recuperação do gás xenônio.

FIGURA 59 – Sistema de carga de gás com cilindro de xenônio natural acoplado

Na FIG. 60 é mostrado o Sistema de carga de gás com o cilindro de xenônio enriquecido em Xe-124 acoplado onde é possível observar:

- A) Cabeçote hidráulico de compressão;
- B) Tubo de alumínio para encapsulamento do gás;
- C) Medidor de vácuo;
- D) Sistema de válvulas;
- E) Sensor de vácuo tipo Pirani;
- F) Manovacuômetro;
- G) Cilindro de gás xenônio enriquecido em Xe-124; e
- H) Armadilha fria para recuperação do gás xenônio.

FIGURA 60 – Sistema de carga de gás com cilindro de xenônio enriquecido em Xe-124 acoplado

Foram preparadas seis amostras de cápsulas de alumínio contendo xenônio natural, e sete amostras contendo xenônio enriquecido em Xe-124, as cápsulas são mostradas na FIG. 61.

FIGURA 61 – Cápsulas de alumínio fabricadas contendo xenônio natural e xenônio enriquecido em Xe-124

Na TAB. 16 são apresentados os dados sobre as 13 cápsulas fabricadas em alumínio com conteúdo de xenônio, nota-se a grande variação em conteúdo de xenônio-124 para as cápsulas preenchidas com o xenônio enriquecido em relação às cápsulas preenchidas com xenônio natural.

TABELA 16 – Dados das amostras de cápsulas de alumínio fabricadas com xenônio natural (XEN) e xenônio enriquecido (XEE) em Xe-124

Amostra	Pressão Xe (bar)	Massa Al (g)	Massa Xe (mg)	Massa Xe-124 (mg)
XEN01.001	1,00(3)	5,0899(1)	6,8(3)	$6,5(3) \times 10^{-3}$
XEN01.002	1,00(3)	5,1842(1)	7,0(3)	$6,7(3) \times 10^{-3}$
XEN01.003	1,00(3)	4,7894(1)	6,2(3)	$6,0(3) \times 10^{-3}$
XEN01.004	0,94(3)	5,0492(1)	6,2(3)	$5,9(3) \times 10^{-3}$
XEN01.005	0,94(3)	5,2302(1)	6,4(3)	$6,1(3) \times 10^{-3}$
XEN01.006	0,94(3)	5,0831(1)	6,2(3)	$6,0(3) \times 10^{-3}$
XEE01.001	0,70(3)	4,9977(1)	4,3(2)	4,3(2)
XEE01.002	0,70(3)	5,0473(1)	4,3(2)	4,3(2)
XEE01.003	0,70(3)	5,2472(1)	4,5(2)	4,5(2)
XEE01.004	0,70(3)	5,2867(1)	4,5(2)	4,5(2)
XEE01.005	0,70(3)	5,1872(1)	4,5(2)	4,5(2)
XEE01.006	0,70(3)	5,3035(1)	4,5(2)	4,5(2)
XEE01.007	0,70(3)	5,1924(1)	4,4(2)	4,4(2)

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:
 $0,94(3) = 0,94 \pm 0,03$.

5.6 Irradiação das cápsulas no reator nuclear IEA-R1, radionuclídeos gerados e taxa de dose

Foram irradiadas no reator nuclear IEA-R1 três amostras contendo xenônio enriquecido em Xe-124 (XEE01.001, XEE01.002 e XEE01.003). As amostras foram irradiadas na posição 52, prateleira 7 (dispositivo EIBRA 1), sob um fluxo de nêutrons de $5,5 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, por um período de 59 h 47 min. Na TAB. 17 são apresentados os nuclídeos constituintes da liga de alumínio e do gás xenônio, e também suas características que influenciam na formação dos nuclídeos resultantes como a massa e a seção de choque. O Al-27 é o nuclídeo de maior massa, mas como ele produz o Al-28 que possui meia-vida de 2,245 min, diminuirá consideravelmente após o período de decaimento. O xenônio-124 apresenta a maior seção de choque para nêutrons térmicos, comparado aos outros nuclídeos que fazem parte da composição da amostra, isto favorece a formação do radionuclídeo de interesse (Xe-125, I-125). O Fe-55 (2,744 a) e o Zn-

^{65}Zn (243,93 d) são os únicos radionuclídeos que apresentam meia-vida superior ao ^{125}I (59,407 d), a meia-vida menor, comparativamente ao ^{125}I , dos outros radionuclídeos possibilitou a diminuição da atividade da cápsula irradiada, pois ela passou por um período de decaimento de 10 dias após o término da irradiação.

A taxa de dose na superfície da primeira cápsula aberta (XEE01.002, 14,7 dias após o término da irradiação) foi de 1,22 mSv/h, o que proporcionou uma dose ao operador dentro dos limites estipulados pela norma CNEN-NN-3.01 (2005) durante os trabalhos de abertura e lavagem da cápsula.

TABELA 17 – Características dos núclídeos do gás xenônio e da liga de alumínio irradiados no reator IEA-R1 e seus núclídeos esperados da reação n,γ

Núclídeo	Seção de choque de reação (b)	Abundância	% na liga	Massa (g)	Massa (%)	Núclídeo resultante	Meia-vida
Xe-124	165	99,9	-	$4,37 \times 10^{-3}$	99,9	Xe-125	16,9 h
Xe-126	3,5	0,05	-	$2,19 \times 10^{-6}$	0,05	Xe-127	36,4 d
Xe-128	8	0,01	-	$4,37 \times 10^{-7}$	0,01	Xe-129m	8,89 d
Xe-129	21	0,01	-	$4,37 \times 10^{-7}$	0,01	Xe-130	--
Xe-130	0,45	0,01	-	$4,37 \times 10^{-7}$	0,01	Xe-131m	11,9 d
Xe-130	26	0,01	-	$4,37 \times 10^{-7}$	0,01	Xe-131	--
Xe-131	85	0,01	-	$4,37 \times 10^{-7}$	0,01	Xe-132	--
Xe-132	0,05	0,01	-	$4,37 \times 10^{-7}$	0,01	Xe-133m	2,19 d
Xe-132	0,45	0,01	-	$4,37 \times 10^{-7}$	0,01	Xe-133	5,24 d
Al-27	0,231	100	96	4,80	96,8	Al-28	2,245 m
Si-28	0,177	92,23	0,8	$3,69 \times 10^{-2}$	0,744	Si-29	--
Si-29	0,101	4,67	0,8	$1,87 \times 10^{-3}$	0,0377	Si-30	--
Si-30	0,107	3,1	0,8	$1,24 \times 10^{-3}$	0,0250	Si-31	157,3 m
Fe-54	2,25	5,8	0,7	$2,03 \times 10^{-3}$	0,0409	Fe-55	2,744 a
Fe-56	2,59	91,72	0,7	$3,21 \times 10^{-2}$	0,647	Fe-57	--
Fe-57	2,5	2,2	0,7	$7,70 \times 10^{-4}$	0,0155	Fe-58	--
Fe-58	1,28	0,28	0,7	$9,80 \times 10^{-5}$	0,00198	Fe-59	44,503 d
Cu-63	4,5	69,17	0,4	$1,38 \times 10^{-2}$	0,279	Cu-64	12,7 h
Cu-65	2,17	30,83	0,4	$6,16 \times 10^{-3}$	0,124	Cu-66	5,088 m
Mn-55	13,3	100	0,15	$7,50 \times 10^{-3}$	0,151	Mn-56	2,5785 h
Mg-24	0,051	78,99	0,15	$5,92 \times 10^{-3}$	0,119	Mg-25	--
Mg-25	0,19	10	1,2	$6,00 \times 10^{-3}$	0,121	Mg-26	--
Mg-26	0,0382	11,01	1,2	$6,60 \times 10^{-3}$	0,133	Mg-27	9,458 m
Cr-50	15,9	4,345	0,35	$7,60 \times 10^{-4}$	0,0153	Cr-51	27,702 d
Cr-52	0,76	83,789	0,35	$1,47 \times 10^{-2}$	0,296	Cr-53	--
Cr-53	18,2	9,501	0,35	$1,66 \times 10^{-3}$	0,0335	Cr-54	--
Cr-54	0,36	2,365	0,35	$4,14 \times 10^{-4}$	0,00835	Cr-55	3,497 m
Zn-64	0,76	48,6	0,25	$6,07 \times 10^{-3}$	0,123	Zn-65	243,93 d
Zn-66	0,85	27,9	0,25	$3,49 \times 10^{-3}$	0,0703	Zn-67	--
Zn-67	6,8	4,1	0,25	$5,12 \times 10^{-4}$	0,0103	Zn-68	--
Zn-68	0,072	18,8	0,25	$2,35 \times 10^{-3}$	0,0474	Zn-69	13,76 h
Zn-70	0,091	0,6	0,25	$7,50 \times 10^{-5}$	0,00151	Zn-71	3,96 h
Ti-46	0,59	8	0,15	$6,00 \times 10^{-4}$	0,0121	Ti-47	--
Ti-47	1,7	7,3	0,15	$5,47 \times 10^{-4}$	0,0110	Ti-48	--
Ti-48	7,84	73,8	0,15	$5,53 \times 10^{-3}$	0,112	Ti-49	--
Ti-49	2,2	5,5	0,15	$4,12 \times 10^{-4}$	0,00832	Ti-50	--
Ti-50	0,179	5,4	0,15	$4,05 \times 10^{-4}$	0,00817	Ti-51	5,76 m

Fontes: LIDE, 2006; NUCLEAR, 2015; ISOTOPE, 2015; ABNT, 2000.

Notas: Foram utilizados os percentuais máximos permitidos por elemento na liga de alumínio.

As unidades de meia-vida: m = minutos, h = horas, d = dias, a = anos.

Sinais convencionais utilizados:

- Não aplicável.
- Nuclídeo considerado estável, ou ainda sem valor considerado de meia-vida.

5.7 Montagem do Sistema de abertura da cápsula de alumínio e recuperação do gás

Na FIG. 62 é mostrado o Sistema de abertura da cápsula de alumínio e recuperação do gás com a câmara de vácuo aberta, onde se observa as seguintes partes:

- A) Cápsula de alumínio;
- B) Suporte da cápsula de alumínio;
- C) Câmara de vácuo;
- D) Tampa do suporte da cápsula de alumínio;
- E) Talhadeira em aço inoxidável;
- F) Válvula de vácuo manual, que exerce pressão sobre a talhadeira para a abertura da cápsula;
- G) Sensor de vácuo do tipo Pirani;
- H) Conexão para o tubo de alumínio de encapsulamento do gás; e
- I) Válvula de vácuo manual.

FIGURA 62 – Sistema de abertura da cápsula de alumínio e recuperação do gás com a câmara de vácuo aberta

Na FIG. 63 é mostrado o Sistema de abertura da cápsula de alumínio e recuperação de gás montado dentro da capela de fluxo laminar, onde foi realizada a abertura da cápsula e recuperação do gás, são observados os seguintes itens:

- A) Tubo de fole para vácuo no sistema;
- B) Válvula de vácuo manual para isolamento do sistema;
- C) Válvula de vácuo manual para ventilação do sistema;
- D) Válvula de vácuo manual para abertura da cápsula;
- E) Sensor de vácuo do tipo Pirani;
- F) Tubo de alumínio para encapsulamento do gás;
- G) Armadilha fria de nitrogênio líquido;
- H) Câmara de vácuo; e
- I) Capela de fluxo laminar.

FIGURA 63 – Sistema de abertura da cápsula de alumínio e recuperação do gás montado dentro da capela de fluxo laminar

5.8 Extração do iodo-125 das cápsulas

Na TAB. 18 são apresentados os resultados do iodo-125 extraído, após as lavagens das cápsulas irradiadas no reator IEA-R1. O lote XEE01.002 sofreu lavagem somente com solução de NaOH 0,01 M, os lotes XEE01.001 e XEE01.003 sofreram lavagem com solução de NaOH 0,01 M apenas nas amostras com final ímpar, as amostras com final par sofreram lavagem com água destilada.

TABELA 18 - Atividade de iodo-125 medida nas amostras irradiadas e atividade calculada para a data de calibração

Amostra	Atividade medida		Tempo para data de calibração (d)*	Atividade na data de calibração	
	GBq	mCi		GBq	mCi
XEE01.002.1	2,179	58,90	4,7638	2,303	62,27
XEE01.002.2	2,312	62,50	4,7673	2,444	66,07
XEE01.002.3	0,010	0,295	37,7951	0,017	0,46
XEE01.002.4	0,019	0,537	37,7986	0,030	0,83
XEE01.001.1	1,184	32,00	43,6527	1,970	53,25
XEE01.001.2	1,136	30,70	43,6562	1,890	51,09
XEE01.001.3	0,159	4,31	43,7743	0,265	7,18
XEE01.001.4	0,188	5,10	43,7777	0,314	8,50
XEE01.003.1	0,699	18,90	73,6215	1,650	44,62
XEE01.003.2	0,442	11,95	73,6250	1,043	28,21
XEE01.003.3	0,237	6,42	73,7541	0,561	15,18
XEE01.003.4	0,301	8,16	73,7583	0,713	19,29
XEE01.003.5	0,061	1,67	73,7958	0,146	3,95
XEE01.003.6	0,075	2,04	73,7979	0,178	4,83

* A data de calibração foi estabelecida em 10 dias após o término da irradiação.

Foi produzido um total de 4,794 GBq (129,63 mCi) a partir da cápsula XEE01.002, 4,439 GBq (120,02 mCi) a partir da cápsula XEE01.001 e 4,291 GBq (116,08 mCi) a partir da cápsula XEE01.003. As amostras estão listadas na TAB. 18 pela ordem de lavagem das cápsulas. A cápsula XEE01.003 sofreu uma lavagem a mais que as outras. A cápsula XEE01.003 apresentou uma produção 3,2% menor que a XEE01.001, que também apresentou uma produção 7,4% menor que a XEE01.002. Entre os fatores que podem influenciar a atividade final de iodo-125 produzida pode-se citar o nível de enriquecimento do gás xenônio, o volume e a pressão do gás, que definem a massa do material irradiado, o fluxo de nêutrons, o tempo de irradiação e a posição do material no núcleo do reator, para as três cápsulas todos esses fatores foram iguais, com exceção da massa da cápsula XEE01.003 (4% maior do que as outras duas), o “coelho” contendo as três cápsulas foi irradiado no dispositivo EIBRA 1 que gira o “coelho” em torno do próprio eixo, garantindo uma homogeneização do fluxo de nêutrons em todas as

cápsulas. Analisando esses fatores pode-se supor que uma variação de produção ocorreria apenas na cápsula XEE01.003, pois apresenta maior massa de xenônio.

Considerando-se que as produções de iodo-125 nas três cápsulas irradiadas tiveram valores similares, pode-se supor que a variação nas atividades finais obtidas foi resultado do processo de extração do iodo-125 das cápsulas.

Os processos de extração do iodo-125 descritos na literatura são:

- Destilação seca – na Hungria a cápsula contendo o iodo-125 é aquecida à temperatura de 550 °C (a temperatura de ebulição do iodo é de 184,3 °C), o iodo-125 é coletado numa solução de NaOH 0,04 M, esta operação dura 120 minutos (FIG. 11) (IAEA, 2003);
- Fluxo de hélio com NaOH – na UC Davis o iodo-125 é extraído pela passagem de hélio com NaOH em um sistema aquecido (FIG. 24) (UCDAVIS, 2011);
- Lavagem com solução de NaOH – na McMaster uma solução de NaOH é injetada dentro do cilindro de decaimento e água destilada é evaporada para dentro do cilindro lavando as paredes internas (FIG. 17) (MCMASTER, 1997, 1999, 2000).

O processo utilizado neste trabalho é similar ao utilizado na McMaster, onde a parede interna da cápsula sofre a ação de uma solução de NaOH aquecida, porém com o acréscimo do banho ultrassônico. Neste trabalho utilizou-se a temperatura de 50 °C para o banho ultrassônico e um tempo de 30 min.

Apenas a UC Davis cita a eficiência de extração do iodo-125 (aproximadamente 60% no sistema de produção antigo). Kar (2007) cita eficiência de extração acima de 84%, utilizando a curva de calibração de seu trabalho, mas ressalta que melhores métodos analíticos são necessários para quantificar a quantidade exata de iodo extraído. Entre os fatores que podem influenciar a eficiência de extração do iodo-125 no processo utilizado neste trabalho pode-se citar: temperatura, tempo do processo, frequência do ultrassom e tempo de decaimento.

Somente no processo de extração da Hungria está descrito o tempo como sendo de 120 minutos, quatro vezes maior do que o utilizado neste trabalho, investigações futuras comparando vários intervalos de tempo do mesmo processo podem determinar um intervalo de tempo ideal para a extração do iodo-125.

O banho ultrassônico para a extração do iodo-125 das cápsulas foi introduzido neste trabalho, portanto não há literatura disponível para a comparação de resultados, a frequência de trabalho do dispositivo utilizado nesta pesquisa é de 40 kHz (Limp Sonic 1,8DA), comparações entre diferentes frequências de ultrassom na extração de iodo-125 podem determinar um intervalo ideal de frequência de ultrassom que maximize a eficiência de extração.

A temperatura usada no processo de extração do iodo-125 é citada apenas no trabalho da Hungria (IAEA, 2003), o valor utilizado no processo húngaro (550 °C) é 11 vezes maior do que o utilizado neste trabalho (50 °C), aproximadamente três vezes a temperatura de ebulição do iodo (184,3 °C) e 110 °C abaixo da temperatura de fusão do alumínio. Na descrição do processo de extração da McMaster que é similar a este não há citação da faixa de temperatura utilizada, porém, em um trabalho sobre produção de iodo-123 no ciclotron do IPEN, que envolve a extração do iodo-123 das paredes internas de um porta-alvo de alumínio, Sumiya (2006, 2008) avalia a influência da temperatura de aquecimento do porta-alvo com o rendimento alcançado na produção de iodo-123 (FIG. 64), conclui-se que na faixa de temperatura próxima dos 70 °C são obtidos melhores resultados do que na faixa de temperatura próxima dos 50 °C. Estudos mais detalhados que estabeleçam a correlação entre a temperatura da lavagem da cápsula e o rendimento da produção são necessários para a definição da faixa de temperatura ideal para a produção.

O tempo de decaimento na produção de iodo-125 é estabelecido de modo a maximizar a produção de iodo-125, ele tem como base a meia-vida do xenônio-125 (16,9 h) e seu objetivo é que quase a totalidade do xenônio-125 decaia para iodo-125. Estes períodos variam muito conforme o produtor de iodo-125, a UC Davis adota um período de decaimento de 3,5 d (aproximadamente 5 meias-vidas), enquanto na Universidade A&M e no Uzbequistão 10 d foi o tempo escolhido (aproximadamente 14 meias-vidas), a Izotop da Hungria é o produtor que cita os maiores períodos de decaimento, 20 d (aproximadamente 28 meias-vidas) para irradiações com xenônio enriquecido em Xe-124 e 45 d (aproximadamente 70 meias-vidas) para irradiações com xenônio natural (UCDAVIS, 2011; KAR, 2007; ABDUKAYUMOV et al., 2004; IAEA, 2003). Neste trabalho as cápsulas com maior período de decaimento resultaram em menor quantidade de iodo-125 produzido e também em maior número de lavagens para

a extração do iodo-125, este fenômeno pode ser decorrente da maior adsorção do iodo às paredes da cápsula conforme o aumento do período de decaimento, ocasionando menor poder de lixiviação da solução de NaOH sobre o iodo.

Fonte: SUMIYA, 2006.

FIGURA 64 – Rendimento de obtenção do iodo-123 em função da temperatura de aquecimento para a remoção do iodo-123 das paredes do porta-alvo

5.9 Resultados e discussão da análise radioquímica

Na TAB. 19 e na FIG. 65 são apresentados os resultados da análise radioquímica do iodo-125, produzido no reator IEA-R1, em solução de NaOH, coletada da amostra XEE01.002.1 (o formulário de controle radioquímico encontra-se no Anexo A). As análises foram feitas por cromatografia em papel ascendente, a McMaster utiliza radio-TLC (Thin Layer Chromatography, Cromatografia de Camada Delgada/Fina) ou radio-HPLC (High Performance Liquid Chromatography, Cromatografia a Líquido de Alto Desempenho/Eficiência), a Izotop utiliza a técnica de eletroforese, a Nordion e a PerkinElmer não discriminam o método usado no controle radioquímico. Foram feitas duas corridas em papel que resultaram numa média de 98,78% de iodeto (I^-). Este resultado é similar aos encontrados na literatura:

Nordion - iodato $\leq 2\%$;

McMaster – iodeto $> 99\%$;

PerkinElmer – iodeto $\geq 99,0\%$; e

Izotop – iodeto > 95% (NORDION, 2015; MCMASTER, 2015; PERKINELMER, 2015; IZOTOP, 2015, IAEA, 2003).

TABELA 19 – Resultado da análise radioquímica, por meio da técnica de cromatografia em papel ascendente, do iodo-125 produzido, em solução de NaOH 0,01 M

Posição na fita	Contagens (cpm)	
	Fita 1	Fita 2
1	12020,2	9485,2
2	2260,2	1525,2
3	2165,2	1665,2
4	2530,2	1615,2
5	3455,2	2565,2
6	6935,2	3965,2
7	10280,2	10310,2
8	104795,0	89375,2
9	1520585,0	1292630,0
10	89555,2	55730,2
Total (cpm)	1754581,6	1468866,8
$\Sigma(6 \rightarrow 10)$ (cpm)	1732150,6	1452010,8
Percentual de iodeto (I^-)		
$(\Sigma(6 \rightarrow 10)/\text{Total})$	98,72	98,85

Não há na farmacopeia brasileira, americana ou europeia um método específico para a determinação da pureza radioquímica da solução de iodo-125, pois não existe atualmente o uso deste produto para tratamento ou diagnóstico em humanos. Na farmacopeia europeia e na farmacopeia americana (USP-NF, 2015, EP, 2014) há ensaios descritos, para a injeção de iotalamato de sódio com iodo-125, injeção de albumina iodada com iodo-125 e para a determinação da pureza radioquímica, das soluções de iodo-131 e de iodo-123, que são utilizadas para diagnóstico e tratamento, por administração oral ou intravenosa. As injeções de iotalamato de sódio e de albumina iodada apresentam formulação química diferente da estudada neste trabalho, mas as soluções de iodeto de sódio com iodo-123 e iodo-131 diferem apenas no radionuclídeo do iodo e são passíveis de

comparação. A farmacopeia europeia descreve em suas monografias o uso da cromatografia líquida para o controle radioquímico das soluções de iodo radioativo, na farmacopeia americana é descrita a cromatografia em papel ascendente, para as soluções de iodo-123 e iodo-131, os dois ensaios são idênticos e consistem em:

“... adicionar um valor medido de uma solução, contendo 100 mg de iodeto de potássio, 200 mg de iodato de potássio e 1 g de bicarbonato de sódio em cada 100 mL, a 25 mm da extremidade de uma fita de papel cromatográfico medindo 25 x 300 mm, e esperar secar. À mesma área, adicionar um volume similar da solução (de iodo-123 ou iodo-131) apropriadamente diluída tal que forneça uma taxa de contagem de cerca de 20000 cpm, e permita secar. Desenvolva o cromatograma por um período de aproximadamente 4 horas por cromatografia ascendente, usando metanol diluído (7 em 10). Seque o cromatograma no ar e determine a distribuição radioativa com um detector de radiação colimado adequadamente: a radioatividade do segmento do iodeto $^{123,131}\text{I}$ não deve ser menor do que 95,0% do total de radioatividade, e seu valor de R_F deve cair dentro de $\pm 5,0\%$ do valor encontrado para o iodeto de sódio quando determinado sob condições similares. A confirmação da identidade do segmento do iodeto é feita pela adição ao segmento suspeito de iodeto de 6 gotas de solução de peróxido de hidrogênio acidificada (preparada pela adição de 6 gotas de 1 N de ácido hidrocloreídrico a 10 mL de solução de peróxido de hidrogênio) seguido pela adição gota a gota de solução indicadora de amido: o desenvolvimento de coloração azul indica a presença de iodeto.” (USP-NF, 2015) (traduzido pelo autor).

FIGURA 65 - Cromatograma da solução de iodo-125 em NaOH 0,01M

O método de determinação de pureza radioquímica descrito na farmacopeia americana difere do utilizado neste trabalho em alguns pontos:

- O comprimento da fita cromatográfica;
- O período de desenvolvimento do cromatograma; e
- A determinação da localização de iodeto não radioativo no segmento.

O IPEN desenvolveu um método que utiliza menor comprimento da fita cromatográfica e menor período de desenvolvimento do cromatograma pela necessidade de maior rapidez nas análises radioquímicas. Porém, enquanto no método da farmacopeia americana a corrida do iodeto radioativo é comparada com a corrida do iodeto não radioativo, na mesma fita cromatográfica, no método do IPEN há a necessidade de uma curva de distribuição padrão para o iodeto radioativo no comprimento da fita cromatográfica utilizada e no período de desenvolvimento do cromatograma, isto torna o método do IPEN dependente da reprodutibilidade das condições executadas na curva de distribuição padrão, enquanto no método da farmacopeia americana a distribuição padrão ocorre na mesma fita cromatográfica sob as mesmas condições.

Em IAEA (2003) há a descrição do controle radioquímico de seis produtores de iodo-131. Dos seis produtores, apenas um, a África do Sul, utiliza o método de adsorção cromatográfica em coluna de sílica gel, onde as espécies de iodo são separadas devido a suas diferentes afinidades químicas por agentes eluentes, a lavagem da coluna é feita com tetracloreto de carbono, acetona e água, a atividade de cada eluição é medida por espectrometria gama. Dois produtores utilizam a técnica de eletroforese: Hungria e Tailândia. O método húngaro está descrito na seção 3.5 deste trabalho, o método tailandês usa as recomendações da farmacopeia americana com as seguintes alterações: o desenvolvimento da fita cromatográfica ocorre numa câmara de eletroforese usando 240 V (8 V/cm), por um período de 60 min, com o cátodo na origem da fita, o fator de retenção do iodeto é de aproximadamente 0,7 e o do iodato é de aproximadamente 0,4, a confirmação do segmento de iodeto é feita adicionando uma solução de PdCl_2 , o desenvolvimento de uma cor marrom indica a presença de íons iodeto. Os outros três produtores, Indonésia, China e Índia, utilizam o método de cromatografia em papel ascendente, o único detalhe descrito no método da Indonésia é a utilização de um solvente com 75% de metanol, o

método Chinês utiliza metanol:água (4:1) como solvente, e no método indiano é descrita a utilização de iodeto e iodato como carregador, e um solvente com 75% de metanol, 25% de água, e pH ajustado entre 7 e 8 com carbonato de potássio, os valores de R_F são 0,75 para I^- , 0,50 para IO_3^- e 0,00 para IO_4^- .

5.10 Fabricação e controle de qualidade das fontes planares

Na FIG. 66 é mostrado a adição de solução de NaOH com iodo-125 no papel-filtro sobre a base da fonte planar, dentro da capela de fluxo laminar. O volume de solução transportado para a fabricação da primeira fonte planar (XEE01.002.1) foi de 190 μ L, nas demais fontes foram transportados volumes de 100 μ L para cada papel-filtro.

FIGURA 66 – Transporte da solução de NaOH com iodo-125 para o papel-filtro por meio de pipeta

Para um espalhamento mais radial e homogêneo da solução sobre o papel-filtro o centro do papel-filtro foi marcado com uma caneta de ponta porosa (Pilot, marcador para retroprojeter, ponta fina 1 mm, cor azul), e o volume da solução foi gotejado ao redor do centro do papel filtro, um gotejamento somente no ponto central do papel-filtro resulta numa mancha em formato elipsoide no papel-filtro. Na FIG. 67A é mostrado o papel filtro com a mancha circular da

solução de NaOH com iodo-125, sobre a base de resina epóxi dentro do molde de silicone, o papel-filtro permanece dessecando dentro da capela de fluxo laminar por 24 h, não há estimativa quanto a perda de iodo-125 por volatilização durante o processo de dessecação, deste modo, o valor considerado da fonte planar foi o valor da atividade medida da solução depositada sobre o papel-filtro, com um erro estimado em 10% por perdas no bico da pipeta e no processo de dessecação.

FIGURA 67 – Fabricação da fonte planar (A) papel filtro com solução de NaOH com iodo-125 dessecando sobre a base de resina epóxi inserida em molde de silicone, e (B) molde de silicone com resina epóxi recém-vertida curando sobre o papel-filtro e a base

Após a dessecação do papel-filtro foi adicionado resina epóxi no molde de silicone para formar o topo da fonte planar e imobilizar o iodo-125 no interior da fonte (FIG. 67B). A resina epóxi é preparada com uma mistura de 100 partes de resina e 23 partes de endurecedor em peso. Os valores de massa do sistema resina/endurecedor variaram entre 6 e 10 g aproximadamente por peça (base ou topo).

Na FIG. 68A é mostrada a fonte planar após a cura da resina epóxi que forma o topo da fonte, o processo de cura da resina deve ser executada em superfície nivelada, para evitar o escoamento da resina, em temperaturas abaixo de 20 °C o processo de cura pode demorar mais do que 24 h. Na FIG. 68B é mostrada a fonte planar identificada e pronta para a medição em detector HPGe.

FIGURA 68 – Fonte planar no molde de silicone após a cura (A), e pronta para medição em detector HPGe após os testes de estanqueidade (B)

Foram fabricadas cinco fontes planares, provenientes das três cápsulas irradiadas (FIG. 69 e TAB. 20). A identificação das fontes segue a identificação das soluções utilizadas nas lavagens das cápsulas, portanto, nas fontes planares com final par foi utilizado água destilada, e nas fontes com final ímpar foi utilizado solução de NaOH, para a extração do iodo-125 das paredes da cápsula. Todas as fontes passaram nos testes de esfregaço e de imersão da norma ISO 9978 (1992), que estabelece um limite de lançamento de 200 Bq (5,4 nCi).

FIGURA 69 - Fontes planares produzidas para análise radionuclídica do iodo-125

TABELA 20 – Atividades e controle de qualidade das fontes planares produzidas com as amostras de iodo-125

Fonte planar	Atividade estimada*		Atividade no teste de esfregação (Bq)	Atividade no teste de imersão (Bq)
	kBq	nCi		
XEE01.002.1	14,66(146)	396(39)	0,33(740)	3,51(999)
XEE01.001.3	3,11(31)	84(8)	59,31(166)	0,18(92)
XEE01.001.4	12,59(125)	340(34)	30,63(144)	1,55(118)
XEE01.003.5	23,93(239)	646(64)	0,93(136)	0,03(99)
XEE01.003.6	14,52(145)	392(39)	5,44(122)	0,03(96)

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:

14,66(146) = $14,66 \pm 1,46$.

O limite de lançamento das fontes nos testes é de 200 Bq (5,4 nCi).

* Para a data de calibração: estabelecida em 10 dias após o término da irradiação.

5.11 Resultados e discussão da análise radionuclídica

Nas FIG. 70 e 71 são mostradas a espectrometria gama das fontes planares XEE01.002.1 e XEE01.001.3, onde são observados os picos característicos do iodo-125 na região de energia próxima a 27 keV, 31 keV e 35 keV, que correspondem às principais emissões provenientes do iodo-125: 35,49 keV (6,68%), 27,47 keV (73,5%), 27,2 keV (39,4%), 30,99 keV (13,1%), 30,94 keV (6,78%) e 31,7 keV (3,77%). Também é possível observar dois picos provenientes das emissões do iodo-126: 666,3 keV (32,9%) e 388,6 keV (35,6%) (NUCLEAR, 2015). Os relatórios detalhados da análise radionuclídica estão no Anexo B desta tese.

FIGURA 70 – Espectrometria gama da fonte planar de iodo-125 XEE01.002.1

FIGURA 71 – Espectro gama ampliado do iodo-125 da fonte planar XEE.01.001.3

A análise radionuclídica detectou apenas o iodo-126 como contaminante nas amostras de iodo-125 produzidas. Apesar de autores como Kar (2007) proporem métodos de purificação da solução de iodo-125 após a produção, para separar contaminantes metálicos da liga de alumínio, arrastados pela solução de NaOH, não foi possível detectar traços de radionuclídeos provenientes da liga de alumínio neste trabalho. Portanto, não houve diferença de

contaminantes entre o iodo-125 coletado com solução de NaOH ou água. Os resultados da análise radionuclídica confirmam a viabilidade de produção sem a preocupação de radionuclídeos contaminantes metálicos. Estudos mais detalhados na busca por esses contaminantes, com menor intervalo entre o término da irradiação e a análise radionuclídica, e a variação da concentração de NaOH na solução, podem ser executados posteriormente.

Na TAB. 21 são apresentados os dados relativos às análises radionuclídicas das fontes planares produzidas. A correlação entre a quantidade de iodo-125 e iodo-126 produzidos apresentou valores entre 0,5 e 0,7%. O que garante uma pureza radionuclídica acima de 99%, tornando o produto adequado para aplicações laboratoriais como radioimunoensaios. Para atingir a pureza radionuclídica de grau médico (0,005%), é necessário menor tempo de irradiação, ou maior tempo de decaimento, combinados com processos de filtragem do gás irradiado, em ambos os casos a atividade final de iodo-125 produzida diminuirá.

TABELA 21 – Correlação entre o iodo-125 e o iodo-126 produzidos

Fonte planar	Atividade* estimada (kBq)	Atividade* medida de ^{125}I (kBq)	Atividade* medida de ^{126}I (Bq)	Percentual $^{126}\text{I}/^{125}\text{I}$
XEE01.002.1	14,66(146)	5,5(2)	32(8)	0,6
XEE01.001.3	3,11(31)	5,03(18)	38(6)	0,7
XEE01.001.4	12,59(125)	11,4(4)	81(12)	0,7
XEE01.003.5	23,93(239)	22,5(8)	127(34)	0,5
XEE01.003.6	14,52(145)	13,3(4)	88(28)	0,6

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:

14,66(146) = $14,66 \pm 1,46$.

* Para a data de calibração: estabelecida em 10 dias após o término da irradiação.

A comparação entre as atividades estimadas das fontes planares e as atividades medidas, apresentadas na TAB. 21, revela uma curva de aprendizado ao longo da fabricação das fontes planares. As duas primeiras fontes fabricadas apresentaram diferenças consideráveis entre a atividade estimada e a atividade medida (aproximadamente 62%), enquanto as três últimas apresentaram variação menor do que 10%, permanecendo dentro do desvio estimado. O valor da atividade estimada está baseado no valor da atividade da solução com iodo-125

depositada sobre o papel-filtro, este valor tende a diminuir devido a perdas no bico da pipeta utilizado para a transferência, e a perdas no processo de dessecação. Variações na espessura da janela (a camada de material que permanece entre o material radioativo e o detector) da fonte planar, também contribuem para maior atenuação do feixe de fótons que chega ao detector, diminuindo a atividade aparente da fonte. Na TAB. 22 são apresentadas características das fontes planares produzidas, que são mostradas na FIG. 72. A fonte planar XEE01.001.3, que foi a única que apresentou a atividade medida maior do que a atividade estimada, apresentou perda de material radioativo durante o processo de selamento, devido a falta de nivelamento durante o processo de cura, parte do iodo-125 depositado no papel filtro foi arrastado para a borda da fonte e posteriormente limpo nos testes de esfregaço. Uma nova camada de resina foi sobreposta ao topo da fonte, nivelando e selando adequadamente a fonte, o que resultou na fabricação da fonte de maior massa e maior espessura.

TABELA 22 – Características das fontes planares de iodo-125 produzidas

Fonte planar	Espessura (mm)	Diâmetro (mm)	Massa (g)	Densidade (g/cm³)
XEE01.002.1	4,100(5)	56,80(5)	11,8339(1)	1,140(5)
XEE01.001.3	5,790(5)	56,40(5)	16,4329(1)	1,130(5)
XEE01.001.4	4,390(5)	56,60(5)	12,2595(1)	1,110(5)
XEE01.003.5	5,520(5)	56,30(5)	15,7214(1)	1,140(5)
XEE01.003.6	5,570(5)	56,60(5)	15,7290(1)	1,120(5)

Notas: Os números entre parênteses são as incertezas dos valores apresentados, eles estão relacionados ao(s) último(s) algarismo(s) significativo(s) do número correspondente, por exemplo:
 $56,80(5) = 56,80 \pm 0,05$.

O valor da atividade estimada para a fonte planar XEE01.001.3 foi calculada como sendo o valor da atividade medida da solução com iodo-125, transportada para o papel-filtro, menos o valor da atividade medida nos papéis dos testes de esfregaço da fonte, porém, as perdas calculadas durante este processo parecem ter sido superestimadas.

FIGURA 72 – Lateral das fontes planares produzidas

Fontes planares apresentam geometria adequada para a utilização em detectores HPGe, e como requisitos principais podemos citar o poder de imobilização do material radioativo e a manutenção de sua integridade mesmo quando submetido a testes de resistência mecânica (BENEGA et al., 2013), a norma ISO 2919 *Radiological protection – Sealed radioactive sources – General requirements and classification* (ISO, 2012) estabelece os requisitos e a classificação de fontes radioativas, fornecendo os tipos de teste que uma fonte deve passar de acordo com a sua classificação, além disso, o material utilizado na janela da fonte deve possibilitar a passagem dos fótons com a menor atenuação possível. A resina epoxídica utilizada neste trabalho permitiu fabricar fontes com densidade entre 1,11 e 1,14 g/cm³ (TAB. 22), a Eckert & Ziegler, fabricante de fontes de calibração, utiliza como materiais para as janelas de suas fontes o Mylar (poliéster) aluminizado e o Kapton (poliamida), que apresentam densidade de 1,42 g/cm³ (EZIP, 2015), o uso destes materiais com baixa densidade proporciona a fabricação de janelas mais permeáveis à passagem dos fótons. Quanto menor a espessura da janela menos material radioativo é necessário depositar na fonte, para se obter a mesma leitura de atividade aparente, porém, as fontes fabricadas neste trabalho apresentaram a formação de bolhas, que podem ser vistas na forma de regiões elipsoides de coloração mais clara nas fontes mostradas nas FIG. 69 e 73. Caso a espessura da janela da fonte

seja menor do que a da bolha formada, ela proporcionaria uma passagem para o material radioativo do interior da fonte para o ambiente externo. Estudos mais detalhados do modo de preparo da resina e das condições ambientais durante a cura, possibilitariam maior controle sobre a formação das bolhas, o que proporcionaria a produção de janelas com espessura cada vez menor.

FIGURA 73 – Fontes planares sob luz de fundo destacando as imperfeições

Na FIG. 74 é mostrada a curva de decaimento da amostra XEE01.002.1 com as medições da atividade feitas dessa amostra ao longo do tempo (câmara de ionização Capintec, CRC-15R). Os valores das medições acompanham o decaimento calculado da atividade da amostra.

FIGURA 74 – Curva de decaimento radioativo da amostra XEE01.002.1 com medição da atividade

5.12 Comparação entre as produções de iodo-125

Na TAB. 23 é apresentado um quadro comparativo entre as produções de iodo-125 realizadas no Institute of Isotopes da Hungria, na McMaster University do Canadá, no Institute of Nuclear Physics do Uzbequistão, no Babha Atomic Research Center da Índia, na Universidade A&M do Texas (EUA), na UC Davis nos Estados Unidos e neste trabalho.

Tabela 23 – Comparativo das produções de iodo-125 no mundo

Produtor	Alvo	Fluxo (n cm ⁻² s ⁻¹)	Massa do alvo (g)	Tempo de Irradiação (h)	Tempo de decaimento (d)	Atividade produzida		Rendimento da produção (mCi/mg ¹²⁴ Xe)	Percentual ¹²⁶ I após decaimento (%)
						GBq	mCi		
Izotop Hungria	Xe natural ¹²⁴ Xe	5 x 10 ¹³	15,0	200	40	29,15	787	55,11	0,77
				300	45	40,32	1089	76,26	0,89
				10	20	50,71	1370	3,42	0,02
				24	20	121,2	3275	8,18	0,11
McMaster Canadá	¹²⁴ Xe	5 x 10 ¹²	5,0	45*	*	300	8100	1,62	<0,005
		2 x 10 ¹³	6,0	75*	*	740	20000	3,33	<0,005
Uzbequistão	¹²⁴ Xe	6,0 x 10 ¹³	0,278	1	10	5,26	142,2	0,51	0,00039
		1,3 x 10 ¹⁴	0,278	2,5	10	28,47	769,5	2,76	0,00529
		1,3 x 10 ¹⁴	0,278	7	10	56,85	1536,6	5,52	0,02057
Texas A&M EUA	¹²⁴ Xe	-	7,65	14	10	216,08	5840	0,76	-
BARC Índia	¹²⁴ Xe	-	4,0	-	-	130	3513	0,87	-
UC Davis EUA	¹²⁴ Xe	1,17 x 10 ¹³	12,5**	8	3,5	307,1	8300	0,66	<0,005
		7,57 x 10 ¹²	33,5**	8	3,5	514,3	13900	0,41	<0,005
		6,37 x 10 ¹²	67,1**	8	3,5	869,5	23500	0,35	<0,005
		8,02 x 10 ¹²	64,2**	8	3,5	1047,1	28300	0,44	<0,005
		6,38 x 10 ¹²	128,4**	8	3,5	1672,4	45200	0,35	<0,005
IPEN Brasil	¹²⁴ Xe	5,5 x 10 ¹³	4,3 x 10 ⁻³	59,78	10	4,79	129,63	30,14	0,6
			4,3 x 10 ⁻³	59,78	10	4,44	120,02	27,97	0,7
			4,5 x 10 ⁻³	59,78	10	4,29	116,08	25,79	0,6

Fontes: IAEA, 2003; MCMaster, 1997, 1999, 2000, 2015; ABDUKAYUMOV et al., 2004; KAR, 2007; BOUSSOUFI et al., 2008; UCDAVIS, 2011; VENKATESH; BANERJEE, 2007.

Notas: Sinais convencionais utilizados:

- Dado numérico não disponível.

* A McMaster realiza um ciclo semanal de produção com intervalos de irradiação e decaimento (15 h/d de irradiação de 3 a 5 dias por semana).

** O valor da massa de ^{124}Xe foi calculada por meio dos valores de volume e pressão do gás disponível em Boussoufi et al. (2008), o valor da temperatura foi assumido como 22 °C.

Na TAB. 23 é possível verificar que maiores períodos de irradiação proporcionam maior rendimento da produção, porém proporcionam também o aumento do radionuclídeo contaminante iodo-126, o que leva a necessidade do aumento do período de decaimento, para que o produto final possa se adequar aos padrões legais exigidos. A produção na Hungria é a que melhor representa essa estratégia. Já as empresas que produzem o iodo-125 ultrapuro, com o nível do contaminante iodo-126 menor do que 0,005%, utilizam a estratégia de períodos menores de irradiação e grande quantidade de material alvo (xenônio-124). A produção na McMaster e na UC Davis representam este tipo de estratégia. No estudo realizado no Uzbequistão, que visava atingir este grau de pureza (iodo-126 < 0,005%), na produção de iodo-125, também chegou ao resultado de menor período de irradiação (2,5 h). Este trabalho, com tempo de irradiação de aproximadamente 60 h, produziu iodo-125 com o nível do contaminante iodo-126 entre 0,5 e 0,7%, abaixo do limite de 0,9% do produto húngaro, mas entre 100 e 140 vezes acima do valor necessário para o iodo-125 ultrapuro.

Os resultados de produções apresentados na TAB. 23 estão em conformidade com trabalhos publicados por Mirzadeh et al. (2003) e Martinho et al. (1984). A elaboração de um programa, que estimasse a quantidade de iodo-125 e iodo-126 produzidos no reator IEA-R1 em função do tempo de irradiação, auxiliaria o planejamento da produção e a comparação entre o valor estimado e o valor produzido possibilitaria o aperfeiçoamento mútuo do programa e da produção.

Na FIG. 75 é o mostrado o decaimento radioativo de 1 Ci de iodo-125 com um percentual de contaminação de 0,6% de iodo-126. Após um período de 114 dias o percentual de contaminação atingiria 0,005%, porém, a atividade de iodo-125 decairia para 0,26 Ci, uma perda de 74% da atividade total produzida.

FIGURA 75 – Gráfico do decaimento de 1 Ci de iodo-125 com 0,6% de iodo-126, a linha tracejada indica o tempo em que o percentual de impureza atinge 0,005%

6. CONCLUSÕES

Neste trabalho foi desenvolvida uma nova metodologia de produção de iodo-125, que resultou na primeira produção deste radionuclídeo no Brasil. Foi desenvolvido e avaliado um recipiente de alumínio, para encapsulamento de amostras gasosas, para irradiação em reator nuclear. Este recipiente obedece aos limites de liberação para fontes radioativas seladas de conteúdo lixiviável ou gasoso da norma ISO 9978 (1992). Baseado nos testes de vazamento, a cápsula foi aprovada pelo Comitê de Segurança Interno do Reator IEA-R1, para irradiação de amostras gasosas até um bar de pressão no reator IEA-R1.

Foi desenvolvido um Sistema de carga de gás em cápsulas de alumínio estanques, este sistema permite o carregamento do gás na pressão adequada na cápsula, e posterior recuperação do gás residual do sistema de volta ao cilindro.

Foi desenvolvido um Sistema de abertura da cápsula de alumínio e recuperação do gás que atua como blindagem e, também protege o operador da incorporação de gases radioativos provenientes da cápsula.

Foi desenvolvido um novo método de dissolução em NaOH do iodo-125 que fica adsorvido nas paredes da cápsula, utilizando-se a aplicação direta da solução de NaOH dentro da cápsula, com posterior imersão em banho ultrassônico.

Foram irradiadas três cápsulas de alumínio, contendo o gás xenônio enriquecido em Xe-124, no reator IEA-R1, consumando a primeira produção de iodo-125 do Brasil, estas cápsulas produziram um total de 13,53 GBq (365,73 mCi) de iodo-125, com um grau de contaminação entre 0,5 e 0,7% de iodo-126. As demais cápsulas serão irradiadas em experimentos futuros.

Foi desenvolvida uma fonte planar de iodo-125, a base de resina epóxi, para leitura em detector de HPGe, que obedece aos limites de liberação de fontes radioativas seladas da norma ISO 9978 (1992).

Foi demonstrado que é possível a produção do radionuclídeo iodo-125 no reator IEA-R1 do IPEN, e que, por meio da relação entre a quantidade de

material alvo e o período de irradiação e de decaimento, é possível planejar a quantidade do produto final e o nível do contaminante iodo-126, para atender às necessidades específicas do produto final. A utilização de filtros de retenção de iodo logo após a irradiação também colabora para a diminuição do contaminante.

7. TRABALHOS FUTUROS

Algumas sugestões de trabalhos futuros relacionados ao tema desta tese compreendem:

- A análise da cápsula de alumínio desenvolvida neste trabalho, com relação às mudanças causadas pelo tratamento térmico;
- Novos métodos de selamento da cápsula de alumínio com a utilização de solda a laser, solda por ultrassom, ou outros tipos de solda ou selagem adequados à finalidade de irradiação em reator nuclear;
- Desenvolvimento de novas cápsulas que atendam às características de irradiação de gases em reator nuclear, garantindo maior quantidade de material irradiado dentro dos padrões de operação e segurança exigidos;
- A comparação da extração de iodo-125 da cápsula em diferentes temperaturas e utilizando ou não o banho ultrassônico.
- A comparação entre diversos métodos de extração do iodo-125 das cápsulas visando obter o mais adequado, que maximize a eficiência de extração e ofereça facilidade de operação, baixa manutenção e menor risco de falha;
- Estimar a perda de iodo-125 durante o processo de dessecação do papel-filtro na fabricação de fontes planares, visando obter melhores estimativas da atividade final depositada de iodo-125 na fonte;
- Estudar novos métodos de análise radioquímica do iodo-125 produzido;
- Desenvolver, um programa de computador que permita estimar, a quantidade de iodo-125 e de iodo-126 produzida pela irradiação de xenônio no reator nuclear IEA-R1, e comparar os resultados com as irradiações realizadas para aperfeiçoamento mútuo do programa e das produções de iodo-125;
- Estudar a contaminação da solução de NaOH por radionuclídeos provenientes da liga de alumínio;

- Estudar métodos de filtração da composição xenônio-124/xenônio-125/iodo-125/iodo-126 visando a obtenção de iodo-125 ultrapuro com alto rendimento de produção; e
- Estudar métodos que possibilitem o controle da formação de bolhas, durante o procedimento de fabricação das fontes planares de resina epóxi.

ANEXO A – Formulário da Análise Radioquímica

FITA
WHATMAN 3MM
12,5 x 1,5 cm

FORMULÁRIO DE CONTROLE RADIOQUÍMICO DE RADIOISÓTOPOS
PRIMÁRIOS E MOLÉCULAS MARCADAS

FM-CR-C01.21-01 V2

Produto: <u>Iodo - 125</u>	Lote: <u>Teste</u>	Data: <u>18/05/15</u>
Reanálise: ☐ Sim ☒ Não	☐ Estoque GCQ	☐ Enviado pelo Médico
Motivo: <u>NA</u>		
1 - Solvente: <u>Metanol 50%</u>	Lote GCQ: <u>44000.120</u>	
2 - Diluente: <u>NA</u>	Lote GCQ: <u>NA</u>	
3 - Solução Tampão: <u>NA</u>	Lote GCQ: <u>NA</u>	
4 - Lote Sephadex-gel: <u>NA</u>		
5 - Resultados		
5.1 - Ensaio de EDTMP- ¹⁵³ Sm		
Atividade 1: <u>NA</u>	Atividade 2: <u>NA</u>	
5.2 - Pureza Radioquímica do Produto		
% Resultado 1 = <u>98,72</u>	% Resultado 2 = <u>71,91% > NA</u>	% Resultado 3 = <u>98,85%</u>
5.3 - Média dos Resultados de Pureza Radioquímica do Produto		
Moléculas Marcadas		pH: <u>NA</u>
% ⁵¹ Cr ³⁺	% ¹⁵³ Sm ³⁺	% ¹⁸ F ⁻
% Produto	% Produto	% Produto
% ¹¹¹ In ³⁺	% ¹⁷⁷ Lu ³⁺	% ⁶⁸ Ga ³⁺
% Produto	% Produto	% Produto
Radioisótopos Primários		pH:
% ⁶⁷ Ga-Cloreto	% ²⁰¹ Tl ⁺³	% ^{99m} TcO ₂
% ⁶⁷ Ga-Citrato	% ²⁰¹ Tl ⁺¹	% Na ^{99m} TcO ₄
% Impureza- ¹⁸ F ⁻		% ^{125/123/131} IO ₃ ⁻ <u>1,21</u>
% ¹⁸ F ⁻		% ^{125/123/131} I ⁻ <u>98,79%</u>

Obs.: Média da fita 1 e 3Ulaucelo

Técnico GCQ

Maryank

Responsável GCQ

18 May 2015 12:46

CONTADOR GAMA PACKARD COBRA CR 276

Page #1

Protocol #:17

125 - IODO

User : 521-i

Count Time(minutes): 0.20
 Assay Type: CPM
 Background Subtract : IPA Bkg
 Code: IODO 125 TES
 Outlier: 5.0 FLAG
 Screening: OFF

Window A
 Nuclide: MAN 15 - 75 keV
 Bkg: 54.8
 Sigma: 0.00
 LCR: 0
 Half Life(hours): 0.00
 Multiplier: 1.0000
 %EV Flag Limit: 0.00

SN	A:CPM
1	12020.2
2	2260.2
3	2165.2
4	2530.2
5	3455.2
6	6935.2
7	10280.2
8	104795
9	1520585
10	89555.2
11	575790
12	1915.2
13	110.2
14	2480.2
15	2670.2
16	4840.2
17	10290.2
18	1312420
19	38105.2
20	126635
21	9485.2
22	1525.2
23	1665.2
24	1615.2
25	2565.2
26	3965.2
27	10310.2
28	89375.2
29	1292630
30	55730.2

98,72 %

71,91 % → NA

98,85 %

Media da fita 1 e 3

Prod: 98,79 %

Imp: 1,21 %

Manulo

ANEXO B – Relatórios da Análise Radionuclídica

Library Listing Report

01/09/2015 18:42:40

Page 1

```
*****
*****      L I B R A R Y  L I S T I N G  R E P O R T      *****
*****
```

Filename: C:\GENIE2K\CAMFILES\Ba133.NLB

Nuclide Library Description:

Nuclide Name	Half-Life (Seconds)	Energy (keV)	Energy Uncert. (keV)	Yield (%)	Yield Uncert. (Abs.+ -)
BA-133	3.320E+008	30.850	0.010	96.8000	0.1000
		35.220	0.010	22.8000	0.1000
		53.161	0.001	2.1400	0.0200
		80.890	0.003	35.5000	0.3000
		160.613	0.008	0.6380	0.0080
		223.234	0.012	0.4530	0.0040
		276.398	0.002	7.1640	0.0220
		302.853	0.001	18.3400	0.0600
		356.017*	0.002	62.0500	0.1900
		383.851	0.003	8.9400	0.0300

* = key line

TOTALS: 1 Nuclides 10 Energy Lines

 ***** EFFICIENCY CALIBRATION REPORT *****

Detector Name: DET01
 Sample Title: I-125

Geometry Description: BaAlscl
 Efficiency Calibration Performed on: 20/05/2015 14:44:59
 by:
 Geometry Type Used: DUAL

Efficiency Triplets
 =====

Energy	Efficiency	Error
30.85	1.57E-002	1.11E-003
35.22	1.60E-002	1.18E-003
53.16	1.78E-002	2.08E-003
80.89	1.75E-002	1.26E-003
276.40	8.24E-003	7.10E-004
302.85	7.33E-003	5.66E-004
356.02	6.62E-003	4.78E-004
383.85	5.91E-003	5.10E-004

DUAL Efficiency Calibration Equation
 =====

Single Equation Terms ->	Offset:	-12.999
	Slope:	5.097
	Quadratic:	-0.874
	Cubic:	0.040
	4th Order:	0.000
	5th Order:	0.000
	6th Order:	0.000
	7th Order:	0.000
	8th Order:	0.000
	9th Order:	0.000

```
*****
*****      G A M M A   S P E C T R U M   A N A L Y S I S      *****
*****
```

Filename: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125\I125-disc1.CNF

```
Report Generated On      : 01/09/2015 15:16:35

Sample Title             : I-125
Sample Description       : Disco resina 1 de I-125
Sample Identification    : I-125
Sample Type              :
Sample Geometry          :

Peak Locate Threshold   : 3.00
Peak Locate Range (in channels) : 1 - 65535
Peak Area Range (in channels) : 1 - 8192
Identification Energy Tolerance : 1.000 keV

Sample Size             : 1.000E+000 disc

Sample Taken On         : 11/04/2015 21:00:00
Acquisition Started     : 19/05/2015 12:43:07

Live Time|              : 5000.0 seconds
Real Time               : 5011.3 seconds

Dead Time               : 0.23 %
```

```
Energy Calibration Used Done On : 04/03/2013
Efficiency Calibration Used Done On : 20/05/2015
Efficiency ID                   : BaAlscl
```

 ***** P E A K A N A L Y S I S R E P O R T *****

Detector Name: DET01
 Sample Title: I-125
 Peak Analysis Performed on: 01/09/2015 15:16:36
 Peak Analysis From Channel: 1
 Peak Analysis To Channel: 8192

	Peak No.	ROI start	ROI end	Peak centroid	Energy (keV)	FWHM (keV)	Net Peak Area	Net Area Uncert.	Continuum Counts
	1	104-	112	107.95	21.20	0.49	1.07E+003	75.95	1.72E+003
M	2	120-	165	129.56	25.47	0.94	3.11E+004	194.57	9.11E+003
m	3	120-	165	139.11	27.36	0.94	3.25E+005	575.68	7.30E+003
m	4	120-	165	157.86	31.06	0.96	7.19E+004	274.62	4.42E+003
	5	173-	188	180.44	35.52	0.83	1.85E+004	149.00	1.28E+003
	6	222-	235	227.92	44.90	0.65	5.14E+001	22.07	1.57E+002
M	7	271-	304	277.96	54.78	0.90	1.26E+003	41.73	5.67E+002
m	8	271-	304	296.33	58.41	0.91	5.65E+002	27.42	2.57E+002
	9	310-	327	319.01	62.89	0.88	2.72E+002	25.40	1.14E+002
	10	464-	476	468.89	92.49	0.79	4.81E+001	11.76	3.39E+001
	11	784-	793	788.58	155.63	0.29	1.77E+000	8.49	3.12E+001
	12	935-	947	940.65	185.67	0.32	9.66E+000	11.72	4.83E+001
	13	1960-	1975	1967.12	388.41	0.75	4.00E+001	10.60	2.40E+001
	14	3366-	3379	3372.08	665.91	1.06	3.49E+001	6.98	5.08E+000

M = First peak in a multiplet region

m = Other peak in a multiplet region

F = Fitted singlet

Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** N U C L I D E I D E N T I F I C A T I O N R E P O R T *****

Sample Title: I-125
 Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

..... IDENTIFIED NUCLIDES

Nuclide Name	Id Confidence	Energy (keV)	Yield (%)	Activity (Bq /disc)	Activity Uncertainty
I-125	0.998	27.38*	112.50	6.23747E+003	5.65887E+002
		31.18*	25.44	5.66501E+003	3.39339E+002
		35.49*	6.63	5.24914E+003	2.55885E+002
I-126	0.801	388.63*	34.00	2.96397E+001	8.54468E+000
		491.24	2.85		
		666.33*	33.10	4.80040E+001	2.24606E+001
		753.82	4.20		
		879.88	0.75		
		1420.19	0.29		

* = Energy line found in the spectrum.

@ = Energy line not used for Weighted Mean Activity

Energy Tolerance : 1.000 keV

Nuclide confidence index threshold = 0.30

Errors quoted at 1.000 sigma

Interference Corrected Activity Report

01/09/2015 15:16:36

Page 4

 ***** I N T E R F E R E N C E C O R R E C T E D R E P O R T *****

Nuclide Name	Nuclide Id Confidence	Wt mean Activity (Bq /disc)	Wt mean Activity Uncertainty
I-125	0.998	5.493074E+003	1.966832E+002
I-126	0.801	3.195825E+001	7.990534E+000

? = nuclide is part of an undetermined solution

X = nuclide rejected by the interference analysis

@ = nuclide contains energy lines not used in Weighted Mean Activity

Errors quoted at 1.000 sigma

***** U N I D E N T I F I E D P E A K S *****

Peak Locate Performed on: 01/09/2015 15:16:35
 Peak Locate From Channel: 1
 Peak Locate To Channel: 8192

Peak No.	Energy (keV)	Peak Size in Counts per Second	Peak CPS % Uncertainty	Peak Type	Tol. Nuclide
1	21.20	2.1421E-001	7.09		
M 2	25.47	6.2238E+000	0.63		
6	44.90	1.0281E-002	42.93		
M 7	54.78	2.5188E-001	3.31	Sum	
m 8	58.41	1.1296E-001	4.85	Sum	
9	62.89	5.4307E-002	9.35	Sum	
10	92.49	9.6110E-003	24.48		
11	155.63	3.5455E-004	478.91		
12	185.67	1.9310E-003	121.40		

M = First peak in a multiplet region

m = Other peak in a multiplet region

F = Fitted singlet

Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** N U C L I D E M D A R E P O R T *****

Detector Name: DET01
 Sample Geometry:
 Sample Title: I-125
 Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

	Nuclide Name	Energy (keV)	Yield (%)	Line MDA (Bq /disc)	Nuclide MDA (Bq /disc)	Activity (Bq /disc)
+	I-125	27.38*	112.50	7.6755E+000	7.68E+000	6.2375E+00
		31.18*	25.44	2.4592E+001		5.6650E+00
		35.49*	6.63	5.8015E+001		5.2491E+00
+	I-126	388.63*	34.00	2.2757E+001	2.06E+001	2.9640E+00
		491.24	2.85	3.7660E+002		-5.4777E+00
		666.33*	33.10	2.0563E+001		4.8004E+00
		753.82	4.20	3.1324E+002		1.0955E+00
		879.88	0.75	2.1477E+003		-7.2642E+00
		1420.19	0.29	6.9389E+003		3.3910E+00

+ = Nuclide identified during the nuclide identification

* = Energy line found in the spectrum

> = MDA value not calculated

@ = Half-life too short to be able to perform the decay correction

```

*****
*****      G A M M A      S P E C T R U M      A N A L Y S I S      *****
*****

```

Filename: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125\I125_01.001.3.CNF

Report Generated On : 21/07/2015 20:17:43

Sample Title : Iodo-125 XEE
 Sample Description : A~112nCi 26.05.2015 10h00
 Sample Identification : 01.001.3
 Sample Type :
 Sample Geometry :

Peak Locate Threshold : 3.00
 Peak Locate Range (in channels) : 1 - 65535
 Peak Area Range (in channels) : 1 - 8192
 Identification Energy Tolerance : 1.000 keV

Sample Size : 1.000E+000 disc

Sample Taken On : 11/04/2015 21:00:00
 Acquisition Started : 02/06/2015 15:24:48

Live Time : 65000.0 seconds
 Real Time : 65115.1 seconds

Dead Time : 0.18 %

Energy Calibration Used Done On : 04/03/2013
 Efficiency Calibration Used Done On : 20/05/2015
 Efficiency ID : BaAlsc1


```

*****
*****      P E A K      A N A L Y S I S      R E P O R T      *****
*****

```

```

Detector Name:  DET01
Sample Title:   Iodo-125 XEE
Peak Analysis Performed on: 21/07/2015 20:17:43
Peak Analysis From Channel: 1
Peak Analysis To Channel: 8192

```

	Peak No.	ROI start	ROI end	Peak centroid	Energy (keV)	FWHM (keV)	Net Peak Area	Net Area Uncert.	Continuum Counts
M	1	121-	165	129.88	25.53	0.95	3.32E+005	652.94	1.32E+005
m	2	121-	165	139.08	27.35	0.95	3.27E+006	1833.65	9.68E+004
m	3	121-	165	157.84	31.05	0.97	7.24E+005	875.36	5.35E+004
	4	174-	188	180.40	35.51	0.82	1.85E+005	469.58	1.30E+004
M	5	219-	252	227.47	44.81	0.80	6.62E+002	42.29	1.35E+003
m	6	219-	252	246.43	48.55	0.81	7.08E+001	30.79	1.50E+003
M	7	258-	304	267.84	52.78	1.16	3.07E+003	69.60	2.32E+003
m	8	258-	304	277.58	54.71	1.17	1.41E+004	127.30	2.30E+003
	9	258-	304	296.22	58.39	1.18	6.08E+003	87.38	1.97E+003
M	10	310-	345	318.24	62.74	1.09	2.03E+003	56.85	1.38E+003
m	11	310-	345	337.40	66.52	1.09	2.97E+002	29.49	8.55E+002
	12	464-	478	469.17	92.55	0.88	5.91E+002	52.18	7.21E+002
	13	934-	946	940.51	185.64	0.75	2.76E+002	38.91	4.71E+002
	14	1000-	1010	1005.13	198.41	0.45	6.03E+001	31.29	3.85E+002
	15	1199-	1219	1208.19	238.51	0.94	1.34E+002	47.19	5.77E+002
	16	1550-	1561	1555.16	307.05	0.31	1.83E+001	24.73	2.36E+002
	17	1704-	1716	1711.99	338.02	0.25	4.51E+001	23.84	1.99E+002
	18	1960-	1975	1967.17	388.42	1.19	3.06E+002	31.37	2.25E+002
	19	2572-	2599	2585.94	510.64	2.20	9.04E+002	49.94	3.53E+002
	20	3364-	3383	3372.74	666.04	1.09	1.96E+002	25.71	1.31E+002
	21	7386-	7409	7399.84	1461.45	0.87	1.33E+002	19.70	6.26E+001

```

M = First peak in a multiplet region
m = Other peak in a multiplet region
F = Fitted singlet

```

Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** N U C L I D E I D E N T I F I C A T I O N R E P O R T *****

Sample Title: Iodo-125 XEE
 Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

..... IDENTIFIED NUCLIDES

Nuclide Name	Id Confidence	Energy (keV)	Yield (%)	Activity (Bq /disc)	Activity Uncertainty
I-125	0.996	27.38*	112.50	5.71110E+003	5.18421E+002
		31.18*	25.44	5.19628E+003	3.10844E+002
		35.49*	6.63	4.80054E+003	2.31117E+002
I-126	0.778	388.63*	34.00	3.76638E+001	5.76546E+000
		491.24	2.85		
		666.33*	33.10	4.47229E+001	1.98197E+001
		753.82	4.20		
		879.88	0.75		
		1420.19	0.29		

* = Energy line found in the spectrum.
 @ = Energy line not used for Weighted Mean Activity
 Energy Tolerance : 1.000 keV
 Nuclide confidence index threshold = 0.30
 Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** I N T E R F E R E N C E C O R R E C T E D R E P O R T *****

Nuclide Name	Nuclide Id Confidence	Wt mean Activity (Bq /disc)	Wt mean Activity Uncertainty
I-125	0.996	5.025474E+003	1.787647E+002
I-126	0.778	3.820842E+001	5.542932E+000

? = nuclide is part of an undetermined solution
 X = nuclide rejected by the interference analysis
 @ = nuclide contains energy lines not used in Weighted Mean Activity

Errors quoted at 1.000 sigma

Interference Corrected Activity Report 21/07/2015 20:17:44 Page 5

***** U N I D E N T I F I E D P E A K S *****

Peak Locate Performed on: 21/07/2015 20:17:43
Peak Locate From Channel: 1
Peak Locate To Channel: 8192

Peak No.	Energy (keV)	Peak Size in Counts per Second	Peak CPS % Uncertainty	Peak Type	Tol. Nuclide
M 1	25.53	5.1145E+000	0.20		
M 5	44.81	1.0179E-002	6.39		
m 6	48.55	1.0891E-003	43.50		
M 7	52.78	4.7054E-002	2.33		
m 8	54.71	2.1673E-001	0.90	Sum	
m 9	58.39	9.3503E-002	1.44	Sum	
M 10	62.74	2.7569E-002	3.26	Sum	
m 11	66.52	4.2742E-003	11.16	Sum	
12	92.55	9.1189E-004	99.80		
13	185.64	-4.9904E-004	-143.64		
14	198.41	9.2723E-004	51.91		
15	238.51	5.8142E-005	1346.68		
16	307.05	2.8216E-004	134.86		
17	338.02	6.9332E-004	52.89		
19	510.64	1.4604E-003	59.00		
21	1461.45	-3.8219E-004	-91.55		

M = First peak in a multiplet region
m = Other peak in a multiplet region
F = Fitted singlet

Errors quoted at 1.000 sigma

Nuclide MDA Report 21/07/2015 20:17:44 Page 6

***** N U C L I D E M D A R E P O R T *****

Detector Name: DET01
Sample Geometry:
Sample Title: Iodo-125 XEE
Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

	Nuclide Name	Energy (keV)	Yield (%)	Line MDA (Bq /disc)	Nuclide MDA (Bq /disc)	Activity (Bq /disc)
+	I-125	27.38*	112.50	2.5335E+000	2.53E+000	5.7111E+00
		31.18*	25.44	7.7465E+000		5.1963E+00
		35.49*	6.63	1.6047E+001		4.8005E+00
+	I-126	388.63*	34.00	1.0875E+001	1.09E+001	3.7664E+00
		491.24	2.85	1.9096E+002		-8.6382E+00
		666.33*	33.10	1.6820E+001		4.4723E+00
		753.82	4.20	1.8507E+002		7.6292E+00
		879.88	0.75	1.1289E+003		-2.3821E+00
		1420.19	0.29	4.0494E+003		3.5829E+00

+ = Nuclide identified during the nuclide identification
* = Energy line found in the spectrum
> = MDA value not calculated
@ = Half-life too short to be able to perform the decay correction


```
*****
*****      G A M M A      S P E C T R U M      A N A L Y S I S      *****
*****
```

Filename: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125\I125_01.001.4.CNF

```
Report Generated On           : 21/07/2015 20:20:01

Sample Title                  : Iodo-125 XEE
Sample Description             : A~200nCi 27.05.2015 10h00
Sample Identification          : 01.001.4
Sample Type                   :
Sample Geometry               :

Peak Locate Threshold         : 3.00
Peak Locate Range (in channels) : 1 - 65535
Peak Area Range (in channels)  : 1 - 8192
Identification Energy Tolerance : 1.000 keV

Sample Size                   : 1.000E+000 disc

Sample Taken On               : 11/04/2015 21:00:00
Acquisition Started           : 03/06/2015 09:43:20

Live Time                     : 22000.0 seconds
Real Time                      : 22066.5 seconds

Dead Time                     : 0.30 %
```

```
Energy Calibration Used Done On : 04/03/2013
Efficiency Calibration Used Done On : 20/05/2015
Efficiency ID                     : BaAlsc1
```

 ***** P E A K A N A L Y S I S R E P O R T *****

Detector Name: DET01
 Sample Title: Iodo-125 XEE
 Peak Analysis Performed on: 21/07/2015 20:20:01
 Peak Analysis From Channel: 1
 Peak Analysis To Channel: 8192

	Peak No.	ROI start	ROI end	Peak centroid	Energy (keV)	FWHM (keV)	Net Peak Area	Net Area Uncert.	Continuum Counts
	1	104-	112	107.95	21.20	0.48	8.92E+003	209.85	1.31E+004
M	2	121-	165	130.00	25.56	0.94	2.27E+005	539.05	8.80E+004
m	3	121-	165	139.09	27.35	0.95	2.51E+006	1603.56	6.49E+004
m	4	121-	165	157.85	31.06	0.96	5.54E+005	763.79	3.67E+004
	5	174-	188	180.40	35.51	0.82	1.42E+005	408.80	9.29E+003
	6	219-	236	227.98	44.91	1.00	7.75E+002	62.34	9.54E+002
M	7	269-	304	277.77	54.74	0.98	9.39E+003	109.63	3.37E+003
m	8	269-	304	296.48	58.44	0.99	4.22E+003	73.16	1.57E+003
M	9	309-	345	318.14	62.72	1.12	1.63E+003	47.27	7.18E+002
m	10	309-	345	337.40	66.52	1.12	2.72E+002	21.63	2.98E+002
	11	461-	476	469.33	92.58	1.27	1.27E+002	31.22	2.82E+002
	12	937-	950	941.15	185.77	0.95	8.83E+001	24.20	1.78E+002
	13	1203-	1216	1207.88	238.45	0.38	7.05E+001	20.43	1.25E+002
	14	1840-	1853	1845.03	364.30	0.39	3.70E+001	13.94	5.70E+001
	15	1957-	1976	1966.07	388.21	1.14	2.15E+002	24.28	1.07E+002
	16	2572-	2599	2586.14	510.68	2.49	3.23E+002	27.18	9.16E+001
	17	3362-	3383	3373.00	666.09	0.81	1.27E+002	18.07	5.23E+001
	18	7392-	7407	7399.33	1461.35	0.46	4.07E+001	9.22	1.43E+001

M = First peak in a multiplet region
 m = Other peak in a multiplet region
 F = Fitted singlet

Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** N U C L I D E I D E N T I F I C A T I O N R E P O R T *****

Sample Title: Iodo-125 XEE
 Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

..... IDENTIFIED NUCLIDES

Nuclide Name	Id Confidence	Energy (keV)	Yield (%)	Activity (Bq /disc)	Activity Uncertainty
I-125	0.996	27.38*	112.50	1.30167E+004	1.18145E+003
		31.18*	25.44	1.18251E+004	7.07299E+002
		35.49*	6.63	1.09343E+004	5.26629E+002
I-126	0.768	388.63*	34.00	8.03394E+001	1.28676E+001
		491.24	2.85		
		666.33*	33.10	8.78864E+001	3.92618E+001
		753.82	4.20		
		879.88	0.75		
		1420.19	0.29		

* = Energy line found in the spectrum.
 @ = Energy line not used for Weighted Mean Activity
 Energy Tolerance : 1.000 keV
 Nuclide confidence index threshold = 0.30
 Errors quoted at 1.000 sigma

Interference Corrected Activity Report 21/07/2015 20:20:02 Page 4

 ***** I N T E R F E R E N C E C O R R E C T E D R E P O R T *****

Nuclide Name	Nuclide Id Confidence	Wt mean Activity (Bq /disc)	Wt mean Activity Uncertainty
I-125	0.996	1.144452E+004	4.071625E+002
I-126	0.768	8.106409E+001	1.224409E+001

? = nuclide is part of an undetermined solution

X = nuclide rejected by the interference analysis

@ = nuclide contains energy lines not used in Weighted Mean Activity

Errors quoted at 1.000 sigma

***** U N I D E N T I F I E D P E A K S *****

Peak Locate Performed on: 21/07/2015 20:20:01
 Peak Locate From Channel: 1
 Peak Locate To Channel: 8192

Peak No.	Energy (keV)	Peak Size in Counts per Second	Peak CPS % Uncertainty	Peak Type	Tol. Nuclide
1	21.20	4.0137E-001	2.38		
M 2	25.56	1.0305E+001	0.24		
6	44.91	3.5211E-002	8.05		
M 7	54.74	4.2687E-001	1.17	Sum	
m 8	58.44	1.9172E-001	1.73	Sum	
M 9	62.72	7.0598E-002	3.06	Sum	
m 10	66.52	1.2084E-002	8.23	Sum	
11	92.58	-2.4149E-003	-61.38		
12	185.77	-7.2918E-004	-160.26		
13	238.45	1.1978E-003	81.30		
14	364.30	1.6804E-003	37.71		
16	510.68	2.2601E-003	57.32		
18	1461.35	-5.8566E-004	-77.53		

M = First peak in a multiplet region

m = Other peak in a multiplet region

F = Fitted singlet

Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** N U C L I D E M D A R E P O R T *****

Detector Name: DET01
 Sample Geometry:
 Sample Title: Iodo-125 XEE
 Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

	Nuclide Name	Energy (keV)	Yield (%)	Line MDA (Bq /disc)	Nuclide MDA (Bq /disc)	Activity (Bq /disc)
+	I-125	27.38*	112.50	6.1707E+000	6.17E+000	1.3017E+00
		31.18*	25.44	1.9066E+001		1.1825E+00
		35.49*	6.63	4.0321E+001		1.0934E+00
+	I-126	388.63*	34.00	2.4796E+001	2.48E+001	8.0339E+00
		491.24	2.85	3.6643E+002		8.4346E+00
		666.33*	33.10	3.4140E+001		8.7886E+00
		753.82	4.20	3.2940E+002		1.2626E+00
		879.88	0.75	2.1111E+003		7.5942E+00
		1420.19	0.29	7.0582E+003		-5.1507E+00

+ = Nuclide identified during the nuclide identification

* = Energy line found in the spectrum

> = MDA value not calculated

@ = Half-life too short to be able to perform the decay correction


```

*****
*****      G A M M A      S P E C T R U M      A N A L Y S I S      *****
*****

```

Filename: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125\I125_01.003.5.CNF

```

Report Generated On           : 21/07/2015 20:24:17

Sample Title                  : Iodo-125 XEE
Sample Description             : A~271nCi 25.06.2015 10h20 UTC-3h
Sample Identification          : 01.003.5
Sample Type                   :
Sample Geometry                :

Peak Locate Threshold         : 3.00
Peak Locate Range (in channels) : 1 - 65535
Peak Area Range (in channels)  : 1 - 8192
Identification Energy Tolerance : 1.000 keV

Sample Size                   : 1.000E+000 disc

Sample Taken On               : 11/04/2015 21:00:00
Acquisition Started           : 06/07/2015 19:16:41

Live Time                     : 30000.0 seconds
Real Time                     : 30103.3 seconds

Dead Time                     : 0.34 %

```

```

Energy Calibration Used Done On : 04/03/2013
Efficiency Calibration Used Done On : 20/05/2015
Efficiency ID                    : BaAlsc1

```

```
*****
*****      P E A K      A N A L Y S I S      R E P O R T      *****
*****
```

```
Detector Name:  DET01
Sample Title:   Iodo-125 XEE
Peak Analysis Performed on: 21/07/2015 20:24:17
Peak Analysis From Channel: 1
Peak Analysis To Channel: 8192
```

	Peak No.	ROI start	ROI end	Peak centroid	Energy (keV)	FWHM (keV)	Net Peak Area	Net Area Uncert.	Continuum Counts
	1	104-	111	107.95	21.20	0.44	1.42E+004	257.99	2.04E+004
M	2	120-	165	129.59	25.48	0.96	4.80E+005	768.49	1.44E+005
m	3	120-	165	139.07	27.35	0.96	4.56E+006	2160.08	1.15E+005
m	4	120-	165	157.84	31.06	0.97	1.01E+006	1033.38	7.04E+004
	5	174-	188	180.41	35.51	0.82	2.58E+005	549.81	1.65E+004
M	6	219-	251	227.44	44.80	0.81	6.29E+002	141.41	1.80E+003
m	7	219-	251	246.18	48.50	0.82	8.02E+001	19.82	1.90E+003
M	8	258-	304	267.84	52.78	1.15	5.01E+003	85.61	2.93E+003
m	9	258-	304	277.66	54.72	1.16	2.20E+004	156.93	2.77E+003
m	10	258-	304	296.34	58.41	1.17	9.75E+003	107.29	2.19E+003
M	11	310-	346	318.22	62.73	1.11	3.24E+003	65.65	1.21E+003
m	12	310-	346	337.69	66.58	1.12	5.25E+002	29.76	4.97E+002
	13	460-	478	469.39	92.59	0.77	2.12E+002	41.61	4.49E+002
M	14	821-	846	827.14	163.25	0.26	1.12E+000	18.03	8.68E+001
m	15	821-	846	840.77	165.94	0.26	1.60E+000	25.67	8.56E+001
	16	934-	948	940.39	185.62	1.05	1.65E+002	29.52	2.44E+002
	17	1060-	1079	1068.39	210.90	0.38	5.94E+001	28.61	2.17E+002
	18	1202-	1214	1208.10	238.50	0.86	1.10E+002	21.32	1.31E+002
	19	1959-	1975	1966.82	388.36	1.09	7.17E+001	20.65	1.13E+002
	20	2573-	2600	2587.03	510.86	1.54	4.55E+002	31.97	1.26E+002
	21	3366-	3382	3374.37	666.36	0.35	6.55E+001	13.79	3.95E+001
	22	7390-	7409	7399.62	1461.41	1.05	5.65E+001	10.97	1.75E+001

```
M = First peak in a multiplet region
m = Other peak in a multiplet region
F = Fitted singlet
```

```
Errors quoted at 1.000 sigma
```

Interference Corrected Activity Report 21/07/2015 20:24:18 Page 3

 ***** N U C L I D E I D E N T I F I C A T I O N R E P O R T *****

Sample Title: Iodo-125 XEE
 Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

..... IDENTIFIED NUCLIDES

Nuclide Name	Id Confidence	Energy (keV)	Yield (%)	Activity (Bq /disc)	Activity Uncertainty
I-125	0.989	27.38*	112.50	2.56581E+004	2.32966E+003
		31.18*	25.44	2.33735E+004	1.39794E+003
		35.49*	6.63	2.14912E+004	1.03428E+003
I-126	0.680	388.63*	34.00	1.16590E+002	3.61667E+001
		491.24	2.85		
		666.33*	33.10	1.97695E+002	9.36171E+001
		753.82	4.20		
		879.88	0.75		
		1420.19	0.29		

* = Energy line found in the spectrum.
 @ = Energy line not used for Weighted Mean Activity
 Energy Tolerance : 1.000 keV
 Nuclide confidence index threshold = 0.30
 Errors quoted at 1.000 sigma

Interference Corrected Activity Report 21/07/2015 20:24:18 Page 4

 ***** I N T E R F E R E N C E C O R R E C T E D R E P O R T *****

Nuclide Name	Nuclide Id Confidence	Wt mean Activity (Bq /disc)	Wt mean Activity Uncertainty
I-125	0.989	2.253741E+004	8.016215E+002
I-126	0.680	1.270847E+002	3.379087E+001

? = nuclide is part of an undetermined solution
 X = nuclide rejected by the interference analysis
 @ = nuclide contains energy lines not used in Weighted Mean Activity
 Errors quoted at 1.000 sigma

Interference Corrected Activity Report

21/07/2015 20:24:18

Page 5

***** UNIDENTIFIED PEAKS *****

Peak Locate Performed on: 21/07/2015 20:24:17
 Peak Locate From Channel: 1
 Peak Locate To Channel: 8192

Peak No.	Energy (keV)	Peak Size in Counts per Second	Peak CPS % Uncertainty	Peak Type	Tol. Nuclide
1	21.20	4.7066E-001	1.83		
M 2	25.48	1.6001E+001	0.16		
M 6	44.80	2.0981E-002	22.47		
m 7	48.50	2.6734E-003	24.71		
M 8	52.78	1.6677E-001	1.72		
m 9	54.72	7.3391E-001	0.71	Sum	
m 10	58.41	3.2507E-001	1.10	Sum	
M 11	62.73	1.0442E-001	2.11	Sum	
m 12	66.58	1.7219E-002	5.82	Sum	
13	92.59	-1.1314E-003	-128.31		
M 14	163.25	-4.8168E-004	-137.35		
m 15	165.94	5.3206E-005	1607.92		
16	185.62	7.5219E-004	140.93		
17	210.90	1.9788E-003	48.19		
18	238.50	1.6509E-003	46.56		
20	510.86	2.7262E-003	41.63		
22	1461.41	-5.5304E-004	-73.26		

M = First peak in a multiplet region

m = Other peak in a multiplet region

F = Fitted singlet

Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** N U C L I D E M D A R E P O R T *****

Detector Name: DET01
 Sample Geometry:
 Sample Title: Iodo-125 XEE
 Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

	Nuclide Name	Energy (keV)	Yield (%)	Line MDA (Bq /disc)	Nuclide MDA (Bq /disc)	Activity (Bq /disc)
+	I-125	27.38*	112.50	8.9095E+000	8.91E+000	2.5658E+00
		31.18*	25.44	2.8594E+001		2.3373E+00
		35.49*	6.63	5.8200E+001		2.1491E+00
+	I-126	388.63*	34.00	1.0514E+002	1.05E+002	1.1659E+00
		491.24	2.85	1.8418E+003		4.3922E+00
		666.33*	33.10	1.1903E+002		1.9770E+00
		753.82	4.20	1.7458E+003		8.2168E+00
		879.88	0.75	1.0747E+004		6.5147E+00
		1420.19	0.29	3.7857E+004		3.2071E+00

+ = Nuclide identified during the nuclide identification
 * = Energy line found in the spectrum
 > = MDA value not calculated
 @ = Half-life too short to be able to perform the decay correction

```

*****
*****      G A M M A      S P E C T R U M      A N A L Y S I S      *****
*****

```

Filename: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125\I125_01.003.6.CNF

```

Report Generated On           : 21/07/2015 20:28:21

Sample Title                  : Iodo-125 XEE
Sample Description             : A~157nCi 29.06.2015 09h43 UTC-3h
Sample Identification          : 01.003.6
Sample Type                   :
Sample Geometry               :

Peak Locate Threshold         : 3.00
Peak Locate Range (in channels) : 1 - 65535
Peak Area Range (in channels)  : 1 - 8192
Identification Energy Tolerance : 1.000 keV

Sample Size                   : 1.000E+000 disc

Sample Taken On               : 11/04/2015 21:00:00
Acquisition Started           : 07/07/2015 09:56:43

Live Time                     : 30000.0 seconds
Real Time                     : 30072.5 seconds

Dead Time                     : 0.24 %

```

```

Energy Calibration Used Done On : 04/03/2013
Efficiency Calibration Used Done On : 20/05/2015
Efficiency ID                     : BaAlsc1

```

 ***** P E A K A N A L Y S I S R E P O R T *****

Detector Name: DET01
 Sample Title: Iodo-125 XEE
 Peak Analysis Performed on: 21/07/2015 20:28:21
 Peak Analysis From Channel: 1
 Peak Analysis To Channel: 8192

	Peak No.	ROI start	ROI end	Peak centroid	Energy (keV)	FWHM (keV)	Net Peak Area	Net Area Uncert.	Continuum Counts
	1	105-	112	108.00	21.21	0.49	8.61E+003	225.05	1.54E+004
M	2	121-	165	129.85	25.53	0.96	2.70E+005	588.38	1.04E+005
m	3	121-	165	139.06	27.35	0.97	2.67E+006	1658.26	7.67E+004
m	4	121-	165	157.84	31.06	0.98	5.93E+005	792.00	4.32E+004
	5	173-	188	180.42	35.51	0.83	1.51E+005	435.16	1.33E+004
M	6	219-	304	227.08	44.73	1.15	7.76E+002	41.46	1.29E+003
m	7	219-	304	247.93	48.85	1.16	1.37E+002	29.96	1.37E+003
m	8	219-	304	267.78	52.77	1.17	2.58E+003	58.80	1.44E+003
m	9	219-	304	277.57	54.70	1.18	1.34E+004	128.01	1.44E+003
m	10	219-	304	296.26	58.40	1.18	5.49E+003	81.38	1.36E+003
M	11	310-	345	318.30	62.75	1.14	1.89E+003	51.53	8.47E+002
m	12	310-	345	337.70	66.58	1.15	3.06E+002	23.94	4.02E+002
	13	463-	478	469.60	92.63	1.12	2.13E+002	36.55	3.69E+002
	14	934-	949	940.57	185.66	0.79	1.43E+002	29.89	2.49E+002
	15	1203-	1216	1208.11	238.50	0.80	4.33E+001	23.08	1.77E+002
	16	1907-	1918	1912.89	377.70	0.20	-4.37E+000	14.06	8.04E+001
	17	1961-	1975	1966.99	388.39	0.42	4.79E+001	17.62	9.11E+001
	18	2573-	2600	2587.07	510.86	2.24	4.67E+002	33.42	1.44E+002
	19	3077-	3091	3083.88	608.99	1.12	3.25E+001	14.04	5.65E+001
	20	3365-	3378	3372.43	665.98	0.40	3.88E+001	11.67	3.52E+001
	21	7392-	7412	7401.56	1461.79	0.62	7.16E+001	12.29	2.14E+001

M = First peak in a multiplet region
 m = Other peak in a multiplet region
 F = Fitted singlet

Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** N U C L I D E I D E N T I F I C A T I O N R E P O R T *****

Sample Title: Iodo-125 XEE
 Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

..... IDENTIFIED NUCLIDES

Nuclide Name	Id Confidence	Energy (keV)	Yield (%)	Activity (Bq /disc)	Activity Uncertainty
I-125	0.989	27.38*	112.50	1.51493E+004	1.37585E+003
		31.18*	25.44	1.37978E+004	8.25325E+002
		35.49*	6.63	1.26466E+004	6.09123E+002
I-126	0.672	388.63*	34.00	8.05049E+001	3.10140E+001
		491.24	2.85		
		666.33*	33.10	1.20985E+002	6.28561E+001
		753.82	4.20		
		879.88	0.75		
		1420.19	0.29		

* = Energy line found in the spectrum.
 @ = Energy line not used for Weighted Mean Activity
 Energy Tolerance : 1.000 keV
 Nuclide confidence index threshold = 0.30
 Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** I N T E R F E R E N C E C O R R E C T E D R E P O R T *****

Nuclide Name	Nuclide Id Confidence	Wt mean Activity (Bq /disc)	Wt mean Activity Uncertainty
I-125	0.989	1.327950E+004	4.725979E+002
I-126	0.672	8.841659E+001	2.785194E+001

? = nuclide is part of an undetermined solution
 X = nuclide rejected by the interference analysis
 @ = nuclide contains energy lines not used in Weighted Mean Activity
 Errors quoted at 1.000 sigma

***** U N I D E N T I F I E D P E A K S *****

Peak Locate Performed on: 21/07/2015 20:28:21
 Peak Locate From Channel: 1
 Peak Locate To Channel: 8192

Peak No.	Energy (keV)	Peak Size in Counts per Second	Peak CPS % Uncertainty	Peak Type	Tol. Nuclide
1	21.21	2.8324E-001	2.65		
M 2	25.53	8.9923E+000	0.22		
M 6	44.73	2.5859E-002	5.34		
m 7	48.85	4.5673E-003	21.87		
m 8	52.77	8.5908E-002	2.30		
m 9	54.70	4.4618E-001	0.96	Sum	
m 10	58.40	1.8316E-001	1.48	Sum	
M 11	62.75	5.9520E-002	2.91	Sum	
m 12	66.58	9.9033E-003	8.19	Sum	
13	92.63	-1.0906E-003	-118.43		
14	185.66	3.4863E-005	3073.91		
15	238.50	-5.6474E-004	-145.76		
16	377.70	-1.4561E-004	-321.80		
18	510.86	3.1297E-003	37.71		
19	608.99	4.2443E-004	118.85		
21	1461.79	2.3863E-003	17.16		

M = First peak in a multiplet region

m = Other peak in a multiplet region

F = Fitted singlet

Errors quoted at 1.000 sigma

 ***** N U C L I D E M D A R E P O R T *****

Detector Name: DET01
 Sample Geometry:
 Sample Title: Iodo-125 XEE
 Nuclide Library Used: C:\GENIE2K\CAMFILES\I-125.NLB

	Nuclide Name	Energy (keV)	Yield (%)	Line MDA (Bq /disc)	Nuclide MDA (Bq /disc)	Activity (Bq /disc)
+	I-125	27.38*	112.50	7.3175E+000	7.32E+000	1.5149E+00
		31.18*	25.44	2.2573E+001		1.3798E+00
		35.49*	6.63	5.4680E+001		1.2647E+00
+	I-126	388.63*	34.00	9.4064E+001	9.41E+001	8.0505E+00
		491.24	2.85	1.8831E+003		1.3199E+00
		666.33*	33.10	1.0966E+002		1.2098E+00
		753.82	4.20	1.7155E+003		-1.3121E+00
		879.88	0.75	1.1250E+004		2.0923E+00
		1420.19	0.29	3.7984E+004		-1.9055E+00

+ = Nuclide identified during the nuclide identification

* = Energy line found in the spectrum

> = MDA value not calculated

@ = Half-life too short to be able to perform the decay correction

I125-A2.CNF

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ABDUKAYUMOV, M. N.; ABDULAKHATOV, P.; ABDUSALYAMOV, N. N.; TILLAEV, T. S.; RIKHSIEV, A. Z.; YAKUSHEV, V. P. Optimization of the process for preparing high-purity carrier-free Na¹²⁵I. **Radiochemistry**, v. 46, n. 3, p. 287-289, 2004.

ABNT - ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **Alumínio e suas ligas – Classificação**. Rio de Janeiro: ABNT, 2000. (NBR 6834).

ALBERT, J. B.; AUGER, M.; AUTY, D. J.; BARBEAU, P. S.; BEAUCHAMP, E.; BECK, D.; BELOV, V.; BENITEZ-MEDINA, C.; BONATT, J.; BREIDENBACH, M.; BRUNNER, T.; BURENKOV, A.; CAO, G. F.; CHAMBERS, C.; CHAVES, J.; CLEVELAND, B.; COOK, S.; CRAYCRAFT, A.; DANIELS, T.; DANILOV, M.; DAUGHERTY, S. J.; DAVIS, C. G.; DAVIS, J.; DEVOE, R.; DELAQUIS, S.; DOBI, A.; DOLGOLENKO, A.; DOLINSKI, M. J.; DUNFORD, M.; FAIRBANK JUNIOR, W.; FARINE, J.; FELDMEIER, W.; FIERLINGER, P.; FRANCO, D.; FUDENBERG, D.; GIROUX, G.; GORNEA, R.; GRAHAM, K.; GRATTA, G.; HALL, C.; HALL, K.; HARGROVE, C.; HERRIN, S.; HUGHES, M.; JIANG, X. S.; JOHNSON, A.; JOHNSON, T. N.; JOHNSTON, S.; KARELIN, A.; KAUFMAN, L. J.; KILLICK, R.; KRAVITZ, S.; KUCHENKOV, A.; KUMAR, K. S.; LEONARD, D. S.; LEONARD, F.; LICCIARDI, C.; MACLELLAN, R.; MARINO, M. G.; MONG, B.; MONTERO D'ÍEZ, M.; MOORE, D.; NELSON, R.; O'SULLIVAN, K.; ODIAN, A.; OSTROVSKIY, I.; OUELLET, C.; PIEPKE, A.; POCAR, A.; PRESCOTT, C. Y.; RIVAS, A.; ROWSON, P. C.; ROZO, M. P.; RUSSELL, J. J.; SABOUROV, A.; SINCLAIR, D.; SKARPAAS, K.; SLUTSKY, S.; STEKHANOV, V.; STRICKLAND, V.; TARKA, M.; TOLBA, T.; TOSI, D.; TWELKER, K.; VOGEL, P.; VUILLEUMIER, J. -L.; WAITE, A.; WALTON, J.; WALTON, T.; WEBER, M.; WEN, L. J.; WICHOSKI, U.; WODIN, J.; WRIGHT, J. D.; YANG, L.; YEN, Y.-R.; ZELDOVICH, O. Y.; ZHAO, Y. B.. Improved measurement of the 2vββ half-life of ¹³⁶Xe with the EXO-200 detector. **Physical Review C**, v.89, n. 015502, p. 1-29, 2014.

ALVORD, C. W.; WILLIAMSON, A. C.; GRAVES, T. L.; ZIGLER, S. S. Design, test and widespread implementation of a compact kilo-Watt fluoride ion target. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B**, v. 241, p. 708-712, 2005.

ASM International. **ASM Handbook v. 2: Properties and selection: nonferrous alloys and special-purpose materials**. ASM International Handbook Committee, 1990.

AVILA-RODRIGUES, M. A.; WILSON, J. S.; MCQUERRIE, S. A. A quantitative and comparative study of radionuclidic and chemical impurities in water samples irradiated in a niobium target with Havar vs. Niobium-sputtered Havar entrance foils. **Applied Radiation and Isotopes**, 2008. Disponível em: <doi:10.1016/j.apradiso.2008.04.016>. Acesso em: 3 jul. 2015.

BARTLETT, N. **The Noble Gases**. Chemical & Engineering News. American Chemical Society, 2003. Disponível em:
<<http://pubs.acs.org/cen/80th/noblegases.html>>. Acesso em: 19 out. 2015.

BASTIAN, T.; COENEN, H. H.; QUAIM, S. M. Excitation functions of $^{124}\text{Te}(d,xn)^{124,125}\text{I}$ reaction from threshold up to 14 MeV: comparative evaluation of nuclear routes for production of ^{124}I . **Applied Radiation and Isotopes** v. 55, p. 303-308, 2001.

BENEGA, M. A. G.; NAGATOMI, H. R.; ROSTELATO, M. E. C. M.; KARAN JR., D.; PELEIAS JR., F. S.; SOUZA, C. D.; TIEZZI, R.; RODRIGUES, B. T. Development of radioactive sealed sources in epoxy matrix. In: INTERNATIONAL NUCLEAR ATLANTIC CONFERENCE – INAC 2013, Nov. 24-29, 2013, Recife. **Proceedings...** São Paulo: ABEN, 2013. Disponível em:
<<https://www.ipen.br/biblioteca/2013/inac/19475.pdf>>. Acesso em: 24 ago. 2015.

BOUSSOUFI, M.; FLOCHINI, R. G.; LAGUNAS-SOLAR, M. C.; LIU, H. B.; STEINGASS, W. G. Development of a Large-Scale Iodine-125 Production System at UC Davis/MNRC. In: ISOTOPES FOR MEDICINE AND INDUSTRY – ANS TOPICAL MEETING, Jun. 9 – 12, 2008, Anaheim. **Proceedings...** Anaheim: ANS, 2008. p. 905 – 906. Disponível em: <<http://escholarship.org/uc/item/2zs5039m>>. Acesso em: 23 fev. 2012.

BRESESTI, M.; CAPPELLANI, F.; DEL TURCO, A. M.; ORVINI, E. The thermal neutron capture cross-section and resonance capture integral of ^{124}Xe . **J. Inorg. Nucl. Chem.** v. 26, p. 9-14, 1964.

CANBERRA **High-purity Germanium (HPGe) Detectors – Extended Range Coaxial Ge Detectors (XtRa)**. Disponível em:
<<http://www.canberra.com/products/detectors/germanium-detectors.asp>>. Acesso em: 03 jul. 2015.

CMR – **Center of Molecular Research**. Disponível em: <<http://www.isotope-cmr.com/>>. Acesso em: 01 jul. 2015.

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

CNEN - COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Receita de Produtos e Serviços Relatório 2014**. Coordenação Geral de Planejamento e Avaliação/Divisão Comercial. Fev. 2015. Disponível em:
<<http://intranet.sede/documentos/receita/Relatorio-2014-Receita-de-Produtos-e-Servicos.pdf>>. Acesso em: 12 ago. 2015.

EC – European Commission. **Medical Devices**. Disponível em:
<http://ec.europa.eu/growth/sectors/medical-devices/index_en.htm>. Acesso em: 21 jul. 2015.

EP – European Pharmacopoeia 8.0. EDQM, 2014.

EZIP – ECKERT & ZIEGLER ISOTOPE PRODUCTS. **Eckert & Ziegler Reference & Calibration Sources Product Information**. Disponível em: <http://www.ezag.com/fileadmin/ezag/user-uploads/isotopes/isotopes/Isotrak/isotrak-pdf/Product_literature/EZIPL/EZIP_catalogue_reference_and_calibration_sources.pdf>. Acesso em: 21 ago. 2015.

FEHER, A. **Desenvolvimento de procedimento utilizando processo de soldagem plasma para confecção de sementes de ^{125}I** . 2006. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

FIRESTONE, R. B.; SHIRLEY, V.S.; CHU, S. Y. F.; BAGLIN, C. M.; ZIPKIN, J. **Table of Isotopes CD ROM Edition**. Wiley-Interscience, 1996.

HAN, B. **Measurements of true leak rates of MEMS packages**. Sensors, v. 12, p. 3082-3104, 2012.

HOHN, A.; NORTIER, F. M.; SCHOLTEN, B.; van der WALT, T. N.; COENEN, H. H.; QUAIM, S. M. Excitation functions of $^{125}\text{Te}(p,xn)$ -reactions from their respective thresholds up to 100 MeV with special reference to the production of ^{124}I . **Applied Radiation and Isotopes** v. 55, p. 149-156, 2001.

HOUAISS Dicionário Eletrônico. Versão monousuário 3.0. Instituto Antonio Houaiss. Objetiva, 2009.

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY **IAEA-TECDOC-1340 Manual for reactor produced radioisotopes**. Vienna, Austria: IAEA, 2003.

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY **IAEA-TECDOC-1512 Production techniques and quality control of sealed radioactive sources of palladium-103, iodine-125, iridium-192 and ytterbium-169**. Vienna, Austria: IAEA, 2006.

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/ipen-produtos_servicos_comercializados.doc>. Acesso em: 19 out. 2015.

ISO - INTERNATIONAL ORGANIZATION FOR STANDARDIZATION. **Radiological protection - Sealed radioactive sources – Leak test methods**. Feb. 15, 1992. (ISO 9978-1992).

ISO - INTERNATIONAL ORGANIZATION FOR STANDARDIZATION. **Radiation protection - Sealed radioactive sources – General requirements and classification**. Feb. 15, 2012. (ISO 2919-2012).

ISOTOPE Browser. IAEA Nuclear Data Section, para sistema operacional Android, versão 1.5.0.2. International Atomic Energy Agency, 2015. Disponível em: <<https://play.google.com/store/apps/details?id=iaea.nds.nuclides&hl=pt-BR>>. Acesso em: 12 jun. 2015.

ITO, S.; SAKANE, H.; DEJI, S.; SAZE, T.; NISHIZAWA, K. Radioactive byproducts in [^{18}O]H₂O used to produce ^{18}F for [^{18}F]FDG synthesis. ***Applied Radiation and Isotopes***, v. 64, p. 298-305, 2006.

IZOTOP. ***High purity ^{125}I sodium iodide solution for labeling***. Disponível em: <<http://www.izotop.hu/pdf/ragyo/irb41a.pdf>>. Acesso em: 6 mar. 2015.

JOHNSON, R. R.; WATT, R.; KOVAC, B.; ZYUZIN, A.; VAN LIER, E.; ERDMAN, K. L.; GYLES, W.; SABAIUDUC, V.; MACQUERRIE, S. A.; WILSON, J.; BLACKHOUSE, C.; GELBART, W.; KUO, T. Advances in intense beams, beam delivery, targetry, and radiochemistry at advanced cyclotrons systems. ***Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B***, v. 261, p. 803-808, 2007.

KAERI - KOREA ATOMIC ENERGY RESEARCH INSTITUTE. Heon Il Kim, UI Jae Park, Byung Jin Jun, Hyon Soo Han. ***Internal circulating irradiation capsule for iodine-125 and method for producing iodine-125 using same***. US Pub. 2006/0126774, 18 May 2005, 15 Jun. 2006.

KAR, A. ***Novel ^{125}I production and recovery system***. 2007. Dissertation (Master of Science) – Texas A&M University, Texas.

KLEINBERG, J.; COWAN, G. A. ***The Radiochemistry of Fluorine, Chlorine, Bromine and Iodine***. Washington, DC: Department of Commerce, 1960.

LAGUNAS-SOLAR, M. ***UC Davis MNRC iodine-125 production, Accident analysis, On-site target transfer process***. NRC/UC Davis Public Meeting, 18 Dec. 2012. Disponível em: <<http://pbadupws.nrc.gov/docs/ML1234/ML12348A155.pdf>>. Acesso em: 11 ago. 2015.

LIDE, D. R. ***CRC Handbook of Chemistry and Physics***. Boca Raton, FL: CRC, 2006.

MARENGO, M.; LODI, F.; MAGI, S.; CICORIA, G.; PANCALDI, D.; BOSCHI, S. Assessment of radionuclidic impurities in 2- [^{18}F]fluoro-2-deoxy-D-glucose ([^{18}F]FDG) routine production. ***Applied Radiation and Isotopes***, v. 66, p. 295-302, 2008.

MARTINHO, E.; NEVES, M. A.; FREITAS, M. C. ^{125}I Production: Neutron Irradiation Planning. ***Int. J. Appl. Radiat. Isot.*** v. 35, n. 10, p. 933-938, 1984.

MCMMASTER University. ***Radioisotopes Iodine-125***. Disponível em: <<http://mnr.mcmaster.ca/index.php/services/radioisotopes-.html>>. Acesso em: 27 mar. 2015.

MCMASTER University. Scott Bradley Hassal. **Method and apparatus for production of radioactive iodine**. US 5633900, 27 May 1997.

MCMASTER University. Scott Bradley Hassal. **Method and apparatus for production of radioactive iodine**. US 5867546, 2 Feb. 1999.

MCMASTER University. Scott Bradley Hassal. **Method and apparatus for production of radioactive iodine**. US 6056929, 2 May 2000.

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.

MOURA, J. A. **Estudo e desenvolvimento de metodologia para o controle de qualidade em processo de produção de fontes seladas de iodo-125 para aplicação em braquiterapia**. 2009. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

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 jun. 2015.

MYERS, W. G. Radioiodine-125 in Biomedicine: 1959 – 1984. **J. Nucl. Med.** v. 25, p. 1389-1391, 1984.

NORDION. **I-125 Fact Sheet**. Disponível em: <http://www.nordion.com/wp-content/uploads/2014/10/MI_Iodine-125_Solution_Canada.pdf>. Acesso em: 4 mar. 2015.

NUCLEAR Data Services – International Atomic Energy Agency: banco de dados. Disponível em: <<https://www-nds.iaea.org/>>. Acesso em: 12 jun. 2015.

PARMA, E. J. **I-125 Production Assembly Design Specifications and Operating Theory**. Relatório não publicado. Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM, 27 Oct., 1999. Apud Kar, 2007.

PERKINELMER. **Iodine-125 Radionuclide**. Disponível em: <<http://www.perkinelmer.com/Catalog/Family/ID/Iodine125%20Radionuclide%20Family>>. Acesso em: 4 mar. 2015.

ROBERTSON, R.. **Method for making iodine-125 loaded substrates for use in radioactive sources**. CA 2261444, 11 Feb. 1999.

ROSTELATO, M. E. C. M. **Estudo e desenvolvimento de uma nova metodologia para confecção de sementes de iodo-125 para aplicação em braquiterapia**. 2005. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

SOUZA, C. D. **Comparação entre métodos de fixação do iodo radioativo em substrato de prata para confecção de fontes utilizadas em braquiterapia.**

2012. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

STABIN, M. Nuclear Medicine Dosimetry. **Phys. Med. Biol.** v. 51 p. R187-R202, 2006.

STANG, P. J.. **Iodine**. Chemical & Engineering News. American Chemical Society, 2003. Disponível em: <<http://pubs.acs.org/cen/80th/iodine.html>>. Acesso em: 19 out. 2015.

SUMIYA, L. C. A.; SCIANI, V. Evaluation of irradiation parameter of enriched ^{124}Xe target for ^{123}I production in cyclotrons. **Applied Radiation and Isotopes** v. 66, p. 1337-1340, 2008.

SUMIYA, L. C. A. **Estudo de parâmetros relevantes na irradiação de ^{124}Xe , visando a otimização na obtenção de ^{123}I ultra puro no ciclotron Cyclone 30 do IPEN-CNEN/SP.** 2006. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

SWAGELOK Company. **Tubing data**. 2014. Disponível em: <<http://www.swagelok.com/downloads/webcatalogs/EN/MS-01-107.PDF>>. Acesso em: 19 out. 2015.

UDDIN, M. S.; HERMANNE, A.; SUDÁR, S.; ASLAM, M. N.; SCHOLTEN, B.; COENEN, H.H.; QAIM, S. M. Excitation functions of α -particle induced reactions on enriched ^{123}Sb and ^{nat}Sb for production of ^{124}I . **Applied Radiation and Isotopes** v. 69, p. 699-704, 2011.

UCDAVIS - University of California - Davis. Lagunas-Solar, M. C., Steingass, W. G., Liu, H. B., Boussoufi, M. **Iodine 125 production system and method**. WO 2011/063355 A2, 26 May 2011.

UCDAVIS - University of California - Davis. **Neutron Irradiation**. Disponível em: <<http://mnrc.ucdavis.edu/isotopeproduction.html>>. Acesso em: 6 mar. 2015.

USDOE – United States Department of Energy. Saed Mizardeh, Richard M. Lambrecht. **Method for simultaneous preparation of radon-211, xenon 125, xenon-123, astatine-211, iodine-125 and iodine-123**. US 4664869, 12 May 1987.

USFDA – United States Food and Drug Administration. **Medical Devices**. Disponível em: <<http://www.fda.gov/MedicalDevices/default.htm>>. Acesso em: 21 jul. 2015.

USNRC – United States Nuclear Regulatory Commission. Disponível em: <<http://www.nrc.gov/>>. Acesso em: 11 ago. 2015.

USP-NF – United States Pharmacopeia - National Formulary. The United States Pharmacopeial Convention, 2015.

VENKATESH, M.; BANERJEE, S. ***I-125 Story***. Chemical Sciences & Engineering – BARC Highlights, p. 18 – 19. Bhabha Atomic Research Centre, Mumbai, Índia – 2007. Disponível em:
<http://www.barc.gov.in/publications/eb/golden/chemical/toc/chapter3/3_2.pdf>. Acesso em: 4 mar. 2015.

VIGNERI, P.; HERATI, A. S.; POTTERS, L. The second decade of prostate brachytherapy: evidence and cost based outcomes. ***Urologic Oncology: Seminars and Original Investigations***, v. 28, p. 86-90, 2010.

ZEITUNI, C. ***Dosimetria de fontes de iodo-125 aplicadas em braquiterapia***. 2008. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

ZEITUNI, C. A.; SOUZA, C. D.; MOURA, E. S.; SAKURABA, R. K.; ROSTELATO, M. E. C. M.; FEHER, A.; MOURA, J. A.; SOMESSARI, S.; COSTA, O. L. Theoretical, Manufacturing and Clinical Application Aspects of a Prostate Brachytherapy I-125 Source in Brazil. In: Dr. Kazushi Kishi (Ed.). ***Brachytherapy***. ISBN: 978-953-51-0602-9, InTech, 2012. Disponível em:
<<http://www.intechopen.com/books/brachytherapy/theoretical-manufacturing-and-clinical-application-aspects-of-a-prostate-brachytherapy-i-125-source>>. Acesso em: 28 fev. 2013.