

DESARROLLO DE UN MÉTODO DE PRODUCCIÓN DE ^{131}I A PARTIR DE LA FISIÓN DEL ^{235}U ¹

S.Siri*, A.V.Mondino

Comisión Nacional de Energía Atómica, Centro Atómico Ezeiza
Unidad de Actividad Radioquímica y Química de las Radiaciones
Presbítero González de Aragón N° 15, (B1802AYA) Ezeiza, Pcia. Bs.As., Argentina.

*Universidad Tecnológica Nacional, Facultad Regional Buenos Aires
Medrano 951, C1179AAQ Buenos Aires, Argentina.

E- Mail: ssiri@cae.cnea.gov.ar

Resumen

Se ha desarrollado un método de separación de yodo de otros radionucleídos generados por fisión de ^{235}U , para explorar las posibilidades de obtener ^{131}I como subproducto de la producción rutinaria de ^{99}Mo en el Centro Atómico Ezeiza. Los experimentos se orientaron básicamente al desplazamiento de este elemento a fase gaseosa, y su recuperación se investigó con y sin adición de portador. Se lograron altos porcentajes de volatilización en presencia de yodo portador. Algunas alternativas para aumentar el desplazamiento del yodo a fase gaseosa, a saber destilación en vacío, agregado de peróxido de hidrógeno, y uso de una corriente gaseosa de arrastre, también fueron estudiadas en experimentos realizados con la mínima masa de portador compatible con las condiciones reales. El método desarrollado permite la recuperación de aproximadamente 98% de la actividad de ^{131}I , de un modo limpio y relativamente sencillo.

Abstract

A method of iodine separation from other radionuclides generated by ^{235}U fission has been developed in order to explore the possibilities to obtain ^{131}I as by-product of the ^{99}Mo routine production in the Ezeiza Atomic Centre. The experiments were basically oriented to the displacement of this element to a gaseous phase, and the recoveries were investigated both with and without carrier addition. High volatilisation percentages were achieved in the presence of iodine carrier. Some alternatives to increase the iodine displacement to the gaseous phase, namely vacuum distillation, addition of hydrogen peroxide and use of a gaseous carrying stream, were also studied in experiments performed with the minimum carrier mass compatible with the real conditions. The method developed allows the recovery of about 98 % of the ^{131}I activity in simple and clean way.

¹Trabajo realizado sobre la base de la tesis presentada por S. Siri para optar al grado de Magister en Radioquímica, bajo la dirección de A.V. Mondino y J. Lago Fernández

Introducción

El descubrimiento de la radiactividad ha dado lugar al uso de los radioisótopos y las radiaciones ionizantes de modo tal que al presente pueden considerarse como parte importante del quehacer cotidiano de toda sociedad. Se han hallado y desarrollado aplicaciones de los radioisótopos y tecnologías basadas en el empleo de material radiactivo en áreas diversas como medicina, industria, agricultura, ganadería, hidrología, geología, investigación y desarrollo, contribuyendo de manera significativa a la mejora de la calidad de vida de la humanidad.

Desde hace ya varias décadas la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA) produce, por medio de sus reactores nucleares y aceleradores de partículas, la mayor parte de los radioisótopos empleados en el país, y abastece a gran porcentaje del mercado local, generando también saldos exportables. Entre estos radioisótopos, se encuentra el ^{131}I , un emisor β^- , con un período de semidesintegración de 8,02 días, que decae a ^{131}Xe (estable) luego de la emisión de varios rayos gamma. Su producción es una de las actividades de mayor interés para CNEA, dado que este radionucleído es uno de los más ampliamente utilizados en la actualidad, tanto en medicina y ciencias básicas como en áreas industriales y tecnológicas. El método rutinariamente empleado consiste en la activación neutrónica de blancos de óxido de telurio con enriquecimiento isotópico natural [Marqués, 1973]. Mediante la irradiación, el ^{130}Te presente en el blanco forma ^{131}Te y ^{131m}Te , que decaen a ^{131}I , el cual se separa por precipitación y posterior destilación.

Otro de los radioisótopos producidos por CNEA es el ^{99}Mo . Por decaimiento genera ^{99m}Tc , que es el radionucleído de uso más difundido actualmente en Medicina Nuclear; más del 80% de los procedimientos diagnósticos que se realizan con radioisótopos emplean ^{99m}Tc [Castiglia y Forneris, 1991]. Su producción se realiza en el reactor RA-3, sito en el Centro Atómico de Ezeiza, y se basa en la fisión de uranio; los blancos de irradiación empleados son de aluminuro de uranio, enriquecido al 20% en el isótopo 235, con posterior disolución de los mismos en medio alcalino y sucesivas etapas de procesamiento, separación y purificación del ^{99}Mo obtenido.

Cuando se bombardea con neutrones térmicos, el ^{235}U fisiona dando más de tres centenares de productos de fisión radiactivos conocidos. Entre ellos, también se encuentra el ^{131}I y, de hecho, aparece en el proceso de producción de ^{99}Mo como importante interferencia a eliminar. Esto hace pensar en la posibilidad de desarrollar un proceso de obtención común para ambos nucleídos, dado su idéntico origen, cercano interés comercial y destino similar de mercado.

Varias tareas ha encarado CNEA para este fin. Sobre la base del actual método alcalino, se han realizado distintos ensayos con el fin de separar el yodo de otros productos de fisión, a saber: 1) retención de yodo en columna de óxido de plata, con posterior disolución en ácido nítrico y purificación final empleando Na_2S y NiCO_3 [Mondino y Marqués, 1985]; 2) retención en una columna de resina aniónica fuerte, elución y purificación por cromatografía de extracción con TBP [Casale y colaboradores, 1994]; 3) retención en una columna de plata metálica porosa, y elución con Na_2S [Mondino y colaboradores, 1999]. Asimismo, se encuentra en estudio un método alternativo para la producción de ^{99}Mo , en la actualidad en etapa inicial de exploración, que introduce modificaciones respecto a los blancos de irradiación empleados (folias de uranio enriquecido en menos del 20% en este caso), y en el ataque inicial, el cual se realizaría en medio ácido. Estos eventuales cambios podrían ser ventajosamente aprovechados para la separación de ^{131}I .

Este trabajo permitió desarrollar un método de producción de ^{131}I , como subproducto de la producción de ^{99}Mo , a través del uso de folias de uranio metálico y disolución ácida de las mismas. Tomando en cuenta las características de la disolución de uranio en medio ácido, y la influencia que éste ejerce sobre el yodo producido por fisión durante su irradiación, se estableció como marco experimental la se-

paración de ^{131}I a partir de su desplazamiento a fase gaseosa durante el proceso de disolución. El estudio representa una contribución original con relación al tipo de proceso utilizado para la producción del radionucleído buscado, introduciendo innovaciones técnicas en el esquema de tareas empleado hasta la actualidad.

Parte Experimental

Metodología de Trabajo

El paso inicial en la tarea experimental estuvo dado por la realización de experiencias de disolución de las folias de uranio metálico en medio ácido, a diferentes presiones y temperaturas, con el fin de optimizar las condiciones de proceso.

Teniendo en mente que la disolución ácida del uranio irradiado libera yodo a la fase gaseosa, se continuó con la realización de una serie de ensayos de disolución con agregado de ^{131}I trazador, para analizar su distribución en las diferentes fases formadas.

A partir de allí comenzaron los trabajos para lograr la volatilización total del yodo, como método de separación y obtención. Para esto se empleó como primera metodología el agregado de yodo portador¹, analizando la influencia en el desplazamiento del yodo activo a fase gaseosa de concentraciones crecientes de este material. Pero el yodo que podría obtenerse por este método sería de baja actividad específica², lo cual permitiría su uso en diversas aplicaciones, pero no como radioisótopo primario en medicina, donde la alta actividad específica es un requisito indispensable. Por tanto, se planteó a continuación el estudio de distintas alternativas para el desplazamiento de yodo a fase gaseosa sin el agregado de portador.

Materiales y Métodos

El equipo empleado para las experiencias realizadas consta de un disolutor de prueba, dos recipientes absorbedores y una columna de retención, todos instalados en serie, según se muestra en la figura 1. Las correspondientes dimensiones del disolutor se señalan en la tabla 1, y un detalle del mismo se muestra en la figura 2. Su diseño y construcción se basaron en prototipos previamente desarrollados [Srinivasan y colaboradores, 1995] [Mutalib y colaboradores, 1998].

El montaje de salida está formado por un conjunto de piezas que conectan el cuerpo principal del disolutor con un manómetro indicador de presión, una válvula de seguridad aliviadora, y una llave reductora de ajuste fino. Ambas partes, cuerpo principal y montaje de salida, están construidas en acero inoxidable 316L. El equipo completo fue sometido a pruebas neumáticas e hidrostáticas para verificar su hermeticidad y el correcto funcionamiento de cada una de sus partes.

El calentamiento del disolutor fue llevado a cabo por un manto calefactor eléctrico, tipo suncho, capaz de rodear al cuerpo principal del disolutor, conectado a un sistema automático de control de temperatura, la cual fue sensada a través de una termocupla externa.

1. La cantidad de material radiactivo producida en una reacción nuclear es generalmente muy pequeña. Dichas cantidades a menudo presentan un comportamiento diferente respecto del esperado para concentraciones de trabajo habituales. Por tanto, las operaciones químicas convencionales de separación y obtención de un producto en particular pueden no resultar útiles en el ámbito de la producción de radioisótopos. Para el trabajo a bajas concentraciones, a menudo se utiliza el agregado de portador. Un portador es un material inactivo al cual el elemento radiactivo en baja concentración tenderá a seguir, y se agrega deliberadamente al medio con el fin de asegurar que la sustancia activa se comporte de un modo determinado en los subsiguientes procesos químicos y físicos a los que se la quiera someter.

2. Actividad específica $A_e = [\text{Concentración de } ^{131}\text{I}] / [\text{Concentración de I total}]$

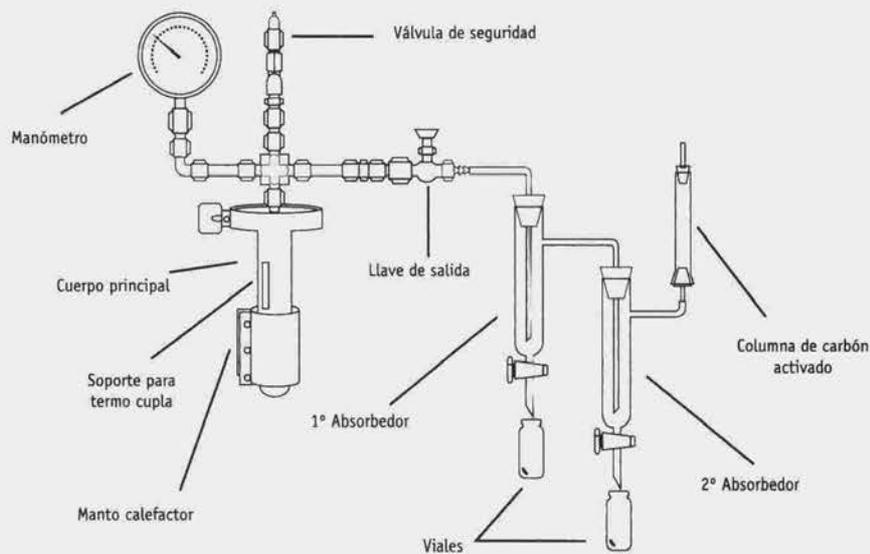


Figura 1. Equipo experimental

Diámetro externo	33.2 mm
Diámetro interno	30.6 mm
Espesor de pared	2.6 mm
Altura externa	163.0 mm
Volumen	111.2 mm
Volumen total aproximado (cuerpo principal más montaje de salida)	111.2 cm ³ 136.0 cm ³

Tabla 1: Dimensiones del disolutor



Figura 2. Disolutor en su diseño original (cuerpo principal más montaje de salida).

Las experiencias se realizaron empleando uranio empobrecido en forma de folias metálicas de 0,2 mm de espesor, con el fin de reproducir las condiciones químicas reales del proceso de producción de ⁹⁹Mo en estudio.

Para supervisar los resultados de las separaciones químicas se emplearon ¹³¹I y trazadores de nucleídos relevantes generados por fisión de uranio y obtenidos como parte del proceso de producción de ⁹⁹Mo. Las actividades de los radioisótopos presentes fueron medidas con detectores de centelleo sólido de yoduro de sodio activado con talio, y por espectrometría gamma de alta resolución empleando detector de germanio hiperpuro.

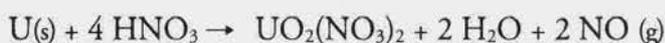
El programa ORIGEN 2, versión 2.1, fue utilizado para los cálculos de los inventarios de los productos de fisión involucrados, al cual se le suministraron datos de entrada acordes a los parámetros de opera-

ción del reactor RA-3 y a las características del proceso de irradiación de los blancos de uranio para producción de ^{99}Mo [Croff, 1983]

Experiencias de Disolución

Luego del análisis del comportamiento del uranio frente a la disolución ácida y del estudio de factibilidad de uso de distintos reactivos, se eligió al ácido nítrico como agente disolutor, dado que presenta características de acción simples y adecuadas para la tarea.

La reacción para la disolución de uranio metálico en medio nítrico, a concentraciones no mayores a 8 M ocurre bajo la siguiente reacción global [Peterson y Wymer, 1963]



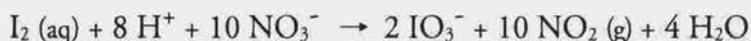
Se verifica la presencia de NO_2 (g) y HNO_2 como productos de la secuencia de reacciones que llevan a la ecuación global que antecede.

La disolución de uranio irradiado en presencia de ácido nítrico libera, además de óxidos de nitrógeno, productos de fisión volátiles, principalmente xenón, tritio, yodo y compuestos de rutenio.

Dado que el uranio metálico es altamente reductor, el yodo formado durante su irradiación se presenta en forma de yoduro. Durante la disolución en medio nítrico, es sometido a oxidación por los iones NO_3^- y NO_2^- , formados a partir de los ácidos nítrico y nitroso presentes, según las siguientes reacciones: [Sakurai y colaboradores, 1996]



El yodo disuelto, I_2 (aq), pasa en parte a fase gaseosa, quedando sometido el resto a ulterior oxidación, hasta llegar a iodato, no volátil.



En cada una de las experiencias de disolución realizadas se empleó 1 g de uranio metálico, utilizando 30 mL de ácido nítrico 4 M para su disolución, trabajando a una temperatura promedio de 102 °C.

Experiencias con Adición de Portador

Para el desarrollo de estas experiencias se incorporó ^{131}I como trazador en forma de NaI, sin portador y sin reductor, y solución de KI como portador. Ambos, portador y trazador, fueron agregados al medio antes del comienzo de la disolución.

En estas experiencias, y en las subsiguientes, el yodo liberado a fase gaseosa fue retenido en sendos recipientes absorbedores, conteniendo 30 mL de NaOH 2,5 M y 0,2 g de sulfito de sodio cada uno. Los frascos absorbedores fueron colocados en serie de modo de permitir un recurso de retención redundante. Como tercer paso de retención se colocó una columna rellena con pellets de carbón activado impregnado con yoduro de potasio al 1%.

La concentración de yodo portador empleada fue tomada sobre la base de la masa de yodo generado por

fisión de 1 g de uranio enriquecido al 20% en ^{235}U , irradiado en condiciones similares al proceso rutinario de producción de ^{99}Mo .

En lo sucesivo, la magnitud de portador agregado en cada experimento se indicará como múltiplos de M, siendo M la masa de yodo producida por fisión de 1 g de uranio.

Al finalizar cada experiencia se realizaron cuidadosos lavados del disolutor, los frascos absorbedores y las vías de conexión entre equipos; los líquidos de lavado fueron colectados e incorporados en las fracciones correspondientes.

Tanto la actividad recogida en las soluciones alcalinas (a partir de aquí "actividad volatilizada") y la remanente en la solución disolutora ("actividad en solución") fueron medidas por espectrometría gamma. Concentraciones crecientes de portador (iguales a 1 M, 10 M, 50 M y 100 M) fueron agregadas, obteniendo así datos comparativos con respecto a los experimentos libres de portador.

Con miras a analizar las especies de yodo en la actividad remanente en solución, en experiencias con agregado de portador igual a 1 M (situación que representa un caso real), se recurrió al método de extracción de yodo en bajas concentraciones con tetracloruro de carbono desarrollado por Castleman [Castleman, 1968]. Las distintas fracciones de yodo en sus diferentes estados de oxidación (yodo, yoduro, yodato) fueron extraídas y su actividad fue cuantificada.

Experiencias sin Agregado de Portador

Se estudiaron distintas alternativas para aumentar el desplazamiento de yodo a fase gaseosa con la mínima cantidad de agregado de portador compatible con condiciones reales, es decir 1 M. A saber, éstas fueron: destilación en vacío, adición de peróxido de hidrógeno, y presencia de una corriente gaseosa de arrastre. Destilación en vacío. con el fin de facilitar la extracción de los gases producidos durante la disolución, el equipo fue conectado a una bomba de vacío seca a diafragma, al final de la serie de recipientes absorbedores. Una vez concluida la disolución y evacuados los gases se puso en funcionamiento la bomba de vacío, logrando una presión final del sistema de 40 kPa. Se continuó el calentamiento, para obtener la generación de yodo volátil por destilación. Se dejó evolucionar el sistema, hasta lograr un destilado del 15% como máximo del volumen de la solución original. La actividad colectada fue cuantificada.

Adición de peróxido de hidrógeno. Los sistemas sometidos a radiación ionizante de alta energía sufren distintos cambios químicos por radiólisis, dando lugar a la aparición de intermediarios reactivos que forman una gran variedad de especies químicas. La radiólisis del agua y de las soluciones acuosas conduce a la formación de agentes oxidantes y reductores, de los cuales el H_2O_2 es uno de los principales, por su vida larga y estabilidad. Por consiguiente, se analizó la influencia de la presencia de peróxido de hidrógeno en la solución contenida en el disolutor. Además de su conocido comportamiento oxidante, el H_2O_2 actúa como reductor en medio ácido, en presencia de yodo y a temperatura cercana a los 100 °C. Su influencia fue evaluada incorporando 1 ml de 0.05 M H_2O_2 en el disolutor luego de finalizada la disolución, dejando que el sistema evolucione por un tiempo adicional. Dos diferentes fracciones de actividad volatilizada fueron colectadas (antes y después de la adición de H_2O_2).

Presencia de una corriente gaseosa de arrastre. Con el fin de permitir el ingreso de una corriente de gas de arrastre dentro del cuerpo principal del disolutor, fue necesario el uso de un equipo modificado, en el cual un tubo insertado en la tapa del cuerpo principal del disolutor y una llave de paso asociada fueron utilizados para permitir el ingreso de la corriente gaseosa. El detalle se muestra en la figura 3. La finalidad buscada fue facilitar la extracción inmediata de los gases originados durante la disolución y conducirlos hacia los recipientes absorbedores. Debido a esta reforma, el proceso de disolución a partir de aquí se realizaría

con sólo una ligera sobrepresión, dada por la misma corriente gaseosa. Se empleó nitrógeno a una presión de 50 kPa, con un flujo operativo de 30 mL/min.

Al llevar a cabo estas experiencias, se estudió la influencia de los siguientes parámetros: corriente de arrastre con y sin portador agregado, presencia y ausencia de H₂O₂ y tiempo de acción de la corriente de arrastre.

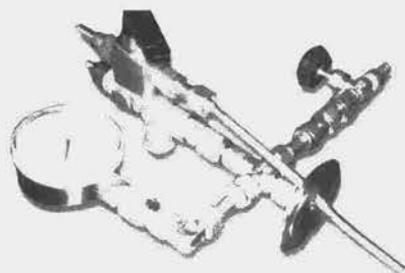


Figura 3. Montaje de salida del disolutor modificado. Detalle del tubo pescante y llave para barrido de gases.

Experiencias con Radioisótopos de Fisión

Por último se programó la realización de ensayos simulando un proceso real, en presencia de otros radionucleídos producidos por fisión. La finalidad de esta experiencia consistió en estudiar la conducta de otros isótopos de fisión sometidos al proceso en estudio, principalmente el rutenio, dado el similar comportamiento químico que éste y el yodo presentan. En estas experiencias se encontraban presentes actividades de ⁹⁹Mo, ⁹⁵Zr, ⁹⁵Nb, ¹³¹I, ¹⁰³Ru y ¹³⁷Cs.

La muestra descrita fue sometida al mismo esquema de operación aplicado en experiencias anteriores, en las condiciones de trabajo optimizadas, agregando portador de yodo y de rutenio al medio, en las cantidades proporcionales a la masa de dichos elementos que se producirían por fisión en un proceso real.

Resultados y Discusión

Las curvas que representan la variación de la temperatura en función del tiempo durante los procesos de disolución se muestran en la figura 4. En estas curvas pueden apreciarse tres partes diferenciadas: un primer tramo, que va desde el inicio del proceso hasta aproximadamente 30 minutos, momento en que el sistema se estabiliza térmicamente.

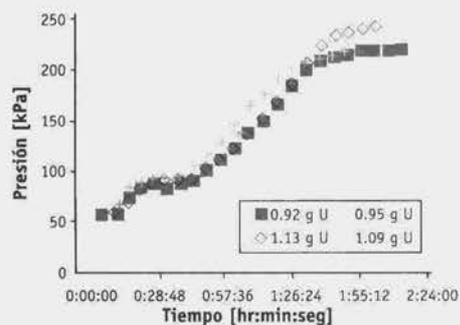


Figura 4. Experiencias de disolución. Variación de la presión en el tiempo.

A medida que la disolución avanza, la presión se incrementa marcadamente por los gases liberados por la reacción. Finalmente, luego de la disolución de todo el uranio, el sistema llega a presión estable. Las actividades de las diferentes fracciones medidas se señalará de aquí en más según la siguiente notación: A_T (actividad total incorporada en la experiencia), A_{sol} (actividad en solución), A_{vol} (actividad volatilizada, que incluye todo el yodo activo que ha pasado a fase gaseosa), A_{ab1} , A_{ab2} (actividad volatilizada colectada en el primer y segundo recipiente absorbedor respectivamente), A_{col} (actividad volatilizada colectada en la columna de retención) y A_L (actividad retenida en la línea de conducción de gases, e incluye a toda aquella actividad volatilizada que no ha sido recogida en los recipientes absorbedores ni en la columna de retención). Para las actividades mencionadas se verifican las siguientes relaciones:

$$A_T = A_{sol} + A_{vol}$$

$$A_{vol} = A_{ab1} + A_{ab2} + A_{col} + A_L$$

$$A_L = A_{Lrec} + A_{Lin}$$

siendo A_{Lrec} (actividad recuperable) la actividad que fue recogida en los lavados de los recipientes absorbedores y las vías de conexión, y A_{Lin} (actividad inaccesible) aquella que quedó adherida a la superficie interna del equipo en zonas inabordables por los lavados.

Según surge de las ecuaciones anteriores, el balance de actividad estará dado por la siguiente ecuación

$$A_T = A_{sol} + A_{ab1} + A_{ab2} + A_{col} + A_{Lrec} + A_{Lin}$$

Los valores de actividad volatilizada, A_{vol} obtenidos en las experiencias con agregado de portador se grafican en la figura 5, expresados como porcentajes relativos a A_T .

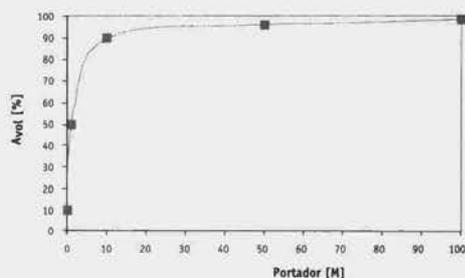


Figura 5. Actividad volatilizada en función de la adición de portador.

La distribución de actividad medida entre el primer y segundo recipiente absorbedor se señala en la tabla 2. En ninguna experiencia se detectó actividad en la columna de carbón activado.

PORTADOR (M)	1º ABSORBEDOR	2º ABSORBEDOR
1	99.8	0.2
10	99.9	0.1
50	99.7	0.3
100	98.8	1.2

Tabla 2. Distribución del total de la actividad medida en primer y segundo absorbedor

Los porcentajes de A_{Lin} en cada experiencia son los señalados en la tabla 3 y surgen de la ecuación de balance de actividad, sobre la base de las mediciones realizadas de A_T , A_{sob} , A_{ab1} , A_{ab2} , A_{col} y A_{Lrec} .

PORTADOR (M)	A_{Lin} (%)
0	9.4
1	47.7
10	73.2
50	78.7
100	92.7

Tabla 3. Porcentajes de actividad inaccesible

Del análisis de los valores mostrados en las tablas y figura precedentes, puede observarse que la adición de cantidades crecientes de iodo portador produce un notorio incremento en el pasaje de iodo activo a fase gaseosa, en comparación con los valores obtenidos sin adición de portador, es decir 0 M. Los resultados podrían ser considerados auspiciosos, dado que la adición de 10 M desplaza casi un 90% del iodo activo a fase gaseosa. Sin embargo, los altos porcentajes de actividad inaccesible deben ser tenidos en cuenta. Es importante reiterar aquí que los lavados fueron llevados a cabo minuciosamente, y los valores de actividad en ellos obtenidos se contabilizaron en las fracciones correspondientes, respetando el mismo esquema de trabajo para cada experiencia. Pero por razones de diseño del equipamiento, o para prevenir daño por contacto con líquidos, los lavados no se realizaron en la totalidad del equipo, sino en forma parcial. De esta manera, la actividad inaccesible es la que queda retenida en las paredes internas del equipamiento, en zonas en las que los lavados no pudieron acceder.

De los valores de actividad colectados en las soluciones absorbedoras, se infiere que la función principal es ejercida por el primer absorbedor, el que resulta suficiente para la retención de prácticamente toda la actividad de iodo involucrada. El segundo recipiente y la columna de carbón colocados en el final de la línea del equipo actúan como componentes redundantes para la retención de iodo, por cuestiones de seguridad. El análisis de las especies de iodo en solución, en experimentos realizados con 1 M, revelaron que el 70 % de la actividad en solución correspondía a iodo en forma de iodato. Este hecho prueba que el proceso de disolución produce la oxidación del iodo trazador (inicialmente agregado como ioduro) a iodato, no volátil, lo cual explica los bajos valores en la actividad volatilizada obtenidos para este agregado de portador (<50 %). Los resultados obtenidos para los experimentos realizados con destilación en vacío y sin adición de portador se indican en la tabla 4, y son comparados con los valores obtenidos para experimentos similares previos, sin destilación.

EXPERIENCIAS	A_{vol} (%)	A_{Lin} (%)
0 M, con 13% de volumen destilado	51.6	36.0
Sin destilación	9.8	9.4

Tabla 4. Porcentajes de actividades medidas en experiencias sin adición de portador y con destilación

El proceso de destilación influyó positivamente en la extracción de iodo, lo que se evidencia en el aumento de la actividad volatilizada, comparada con experiencias similares anteriores. El porcentaje de actividad inaccesible aumentó notablemente, como era de esperar según los valores precedentes, donde a mayor porcentaje volatilizado se verificó un mayor porcentaje de actividad no colectada. Es de esperar que la combinación del proceso de destilación con el agregado de portador aumente el porcentaje de volatilización de iodo notablemente.

Los resultados obtenidos en experiencias con agregado de peróxido de hidrógeno se presentan en la tabla

EXPERIENCIAS	A_{vol} (%)	A_{lin} (%)
Primera evacuación (antes de la adición de H_2O_2)	47.4	24.8
Segunda evacuación (después de la adición de H_2O_2)	41.3	15.4
Valores totales	88.7	40.2

Tabla 5. Porcentajes de actividad en experiencias con adición de H_2O_2 , 1M

Los valores totales indican un notable aumento en la actividad volatilizada, respecto de similares experiencias sin agregado de H_2O_2 . La influencia favorable del agregado de peróxido en la volatilización del yodo se ve directamente en el porcentaje de actividad colectada en la segunda evacuación (41,3%). Considerando los resultados obtenidos, podemos inferir que la presencia de H_2O_2 producido por radiólisis ejercería un efecto beneficioso para el desplazamiento de yodo a fase gaseosa.

Los resultados de las diferentes experiencias realizadas en presencia de una arrastre de corriente gaseosa, se resumen en la tabla 6.

EXPERIENCIAS	PORTADOR (M)	ADICIÓN DE H_2O_2	TIEMPO DE ARRASTRE (horas)	A_{vol} (%)	A_{lin} (%)
A	0	No	0.5(*)	12.9	10.8
B	0	No	3	26.3	12.7
C	1	No	4	96.5	7.9
D	1	Sí	3	85.3	5.4
E	1	Sí	4	97.7	4.7

(*) El tiempo de arrastre considerado es en todos los casos desde el inicio de la disolución, con excepción de este caso, donde se contó a partir del final de la disolución.

Tabla 6. Experiencias con el uso de corriente gaseosa de arrastre

La importancia de la incorporación de la corriente gaseosa desde el principio de la disolución es evidenciada al comparar los porcentajes de actividad volatilizada en los experimentos A y B, realizados sin adición de portador y tomados como referencia para los siguientes ensayos.

Un valor de actividad volatilizada muy satisfactorio, con bajo porcentaje de actividad inaccesible, fue alcanzado en las experiencias C. Los experimentos D y E, realizados con adición de peróxido de hidrógeno, para mejorar los resultados alcanzados, dieron mejores valores, comparando actividades volatilizadas e inaccesibles. Los resultados óptimos se hallaron en las experiencias E, debido a la mayor duración del proceso.

Se seleccionaron las condiciones realizadas en las experiencias E para llevar a cabo experiencias con otros radioisótopos producidos por fisión. Los resultados obtenidos se indican en la tabla 7.

De los datos expresados en la tabla anterior se desprende que el método aplicado para la volatilización de yodo demuestra su efectividad, al efectuar sólo el pasaje a fase gaseosa del nucleído buscado, dejando a los demás radioisótopos presentes en la muestra original, en la solución remanente en el disolutor.

RADIONUCLEÍDOS EN LA MUESTRA ORIGINAL	ACTIVIDAD EN SOLUCIÓN (%)	ACTIVIDAD EN LAS FRACCIONES VOLATILIZADAS (%)
¹³¹ I	<10	>90
¹⁰³ Ru	100	No se detecta
⁹⁵ Zr	100	No se detecta
⁹⁵ Nb	100	No se detecta
¹³⁷ Cs	100	No se detecta
⁹⁹ Mo	100	No se detecta

Tabla 7. Experiencias con radioisótopos producidos por fisión

Conclusiones

La significación de estos resultados está principalmente relacionada con el proceso de producción de ⁹⁹Mo, donde el yodo actúa como una interferencia sustancial. Dado que la disolución es el obvio primer paso en el procesamiento de los blancos de uranio irradiados, la separación del yodo en este punto podría facilitar la subsiguiente separación del molibdeno y su purificación.

Además, la separación del yodo disminuiría la dosis de radiación en los pasos sucesivos del proceso, también mejorando el comportamiento de las resinas de intercambio utilizadas, las cuales actualmente sufren serios daños por radiación.

El método desarrollado con adición de portador, el cual desplaza a fase gaseosa casi un 90% de la actividad de yodo, es una alternativa viable para la producción de ¹³¹I, con tal que no sea demandada una alta actividad específica.

El método basado en el uso de una corriente de nitrógeno como arrastre desde el principio de la disolución permite alcanzar un porcentaje de volatilización de yodo de aproximadamente el 98% sin la adición de portador. El yodo se obtiene libre de otros radionucleídos producidos por fisión, en una manera limpia y relativamente sencilla.

Referencias

- CASALE, G. A., COLS, H. J., LAGO FERNÁNDEZ, J. L. (1994) Comunicación personal. Unidad Actividad Radioquímica. CNEA Buenos Aires, Argentina.
- CASTIGLIA, S.; FORNERIS, M. (1991) Tomografía en Medicina Nuclear. Editado por el Comité de Instrumentación y Garantía de Calidad de la Asociación Latinoamericana de Biología y Medicina Nuclear. Buenos Aires, Argentina.
- CASTLEMAN, A. W., TANG, I. N., MUNKEWITZ, H. R., (1968) J. Inorg. Nucl. Chem. 30, 5.
- CROFF, A. G. (1983) Nucl. Technol. 62, 335.
- MARQUÉS, R. O. (1973) Informe Técnico CNEA N° 348. Buenos Aires, Argentina.
- MONDINO, A. V., MARQUÉS, R. O. (1985) XIII Reunión Científica de la Asociación Argentina de Tecnología Nuclear, Buenos Aires, Argentina.
- MONDINO, A. V., COLS, H. J., CRISTINI, P. R., FURNARI, J. C. (1999) J. Radioanal. Nucl. Chem., 240(3), 731.
- MUTALIB, A., PURWADI, B., ADANG, H., HOTMAN, I., MOERIDOEN, KADARISMAN, SUKMANA, A., SRIYONO, SU-RIPTO, A., NASUTION, H., AMIN, D., BASIRAN, A., GOGO, A., SUNARYADI, D., TARYO, T., VANDEGRIFT, G., HOF-

MAN, G., CONNER, C., SEDLET, J., WALKER, D., LEONARD, R., WOOD, E., WIENCEK, T., SNELGROVE, J. (1998) International Meeting of Reduced Enrichment for Research and Test Reactors. San Pablo, Brasil.

PETERSON, S., WYMER, R. (1963) Chemistry in Nuclear Technology. Addison Wesley Publishing Company, U.S.A. - pag.211

SAKURAI, T., KOMATSU, K., TAKAHASHI, A. (1996) Proceedings of the 24th DOE/NRC Nuclear Air Cleaning and Treatment Conference. Oregon, U.S.A.

SRINIVASAN, B., LEONARD, R., AASE, S., VANDEGRIFT, G., MOERIDUN, RAUF, A., LUBIS, H., HARDI, A., AMINI, S., NAMPIRA, Y. (1995) International Meeting of Reduced Enrichment for Research and Test Reactors. Paris, Francia.