



UNIVERSIDAD NACIONAL AUTONOMA  
DE MEXICO

FACULTAD DE QUIMICA

DIVISION DE ESTUDIOS DE POSGRADO

ESTUDIO DE INVESTIGACION Y OPTIMIZACION  
DE LOS PARAMETROS DEL PROCESO DE  
OBTENCION DE YODO-131 DEL ININ

**T E S I S**

QUE PARA OBTENER EL TITULO DE  
DOCTOR EN CIENCIAS QUIMICAS

(QUIMICA NUCLEAR)

P R E S E N T A :

M. en C. JOSE ALANIS MORALES

COMITE TUTORAL:

TUTOR: DR. MANUEL NAVARRETE TEJERO

ASESOR: DRA. GUILLERMINA BURILLO AMEZCUA

ASESOR: DR. JOSE SANIGER BLESIA

MEXICO, D.F.

AGOSTO 2000



282413



Universidad Nacional  
Autónoma de México



**UNAM – Dirección General de Bibliotecas**  
**Tesis Digitales**  
**Restricciones de uso**

**DERECHOS RESERVADOS ©**  
**PROHIBIDA SU REPRODUCCIÓN TOTAL O PARCIAL**

Todo el material contenido en esta tesis esta protegido por la Ley Federal del Derecho de Autor (LFDA) de los Estados Unidos Mexicanos (México).

El uso de imágenes, fragmentos de videos, y demás material que sea objeto de protección de los derechos de autor, será exclusivamente para fines educativos e informativos y deberá citar la fuente donde la obtuvo mencionando el autor o autores. Cualquier uso distinto como el lucro, reproducción, edición o modificación, será perseguido y sancionado por el respectivo titular de los Derechos de Autor.

COORDINACIÓN DEL PROGRAMA  
DE MAESTRÍA Y DOCTORADO EN  
CIENCIAS QUÍMICAS



UNIVERSIDAD NACIONAL  
AUTÓNOMA DE  
MÉXICO

**BIÓL. FRANCISCO INCERA UGALDE**

Jefe de la Unidad Administrativa del Posgrado.  
Presente

Me es grato informarle que el alumno JOSÉ ALANÍS MORALES presentará próximamente su examen para obtener el grado de Doctor correspondiente al Programa de Doctorado en Ciencias Químicas, adecuado al Reglamento General de Estudios de Posgrado, quien defenderá el proyecto de investigación titulado: "Estudio de investigación y optimización de los parámetros del proceso de obtención de yodo-131 en el ININ", ante el siguiente jurado:

Presidente	Dr. José Luis Mateos Gómez	Facultad de Química, UNAM
Primer vocal	Dra. Guillermina Burillo Amezcua	Instituto de Ciencias Nucleares, UNAM
Segundo vocal	Dr. Miguel Balcázar García	ININ
Tercer vocal	Dr. Luis Carlos Longoria Gándara	ININ
Secretario	Dra. Alicia Negrón Mendoza	Instituto de Ciencias Nucleares, UNAM
Primer suplente	Dr. José Saniger Blesa	Centro de Instrumentos, UNAM
Segundo suplente	Dra. Martha Elena Sosa Torres	Facultad de Química, UNAM

Atentamente

**"POR MI RAZA HABLARÁ EL ESPÍRITU"**

Ciudad Universitaria, D.F., 20 de junio, 2000.

**DRA. NORÁH BARBA BEHRENS.**  
Coordinadora del Programa de Maestría  
y Doctorado en Ciencias Químicas

c.c p.. Integrantes del Jurado  
Departamento de Control Escolar  
• Interesado

Dra. Noráh Barba Behrens.  
Facultad de Química  
Tel./Fax 5 50 91 96

# “ESTUDIOS DE INVESTIGACION Y OPTIMIZACION DE LOS PARAMETROS DEL PROCESO DE OBTENCION DE YODO-131 DEL ININ”

## RESUMEN

Este proyecto fue llevado a cabo en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, Centro Nuclear de México (ININ), con el nombre “ Un Nuevo Método para Obtener  $^{131}\text{I}$  por Irradiación Neutrónica de  $\text{TeO}_2$  y su Destilación Seca”.

Este trabajo establece los parámetros óptimos para producir  $^{131}\text{I}$  por irradiación neutrónica y fundición de  $\text{TeO}_2$  sinterizado. El  $\text{TeO}_2$  de alta pureza fue producido agregando  $\text{HNO}_3$  al telurio metálico (Merck 8100) y calentando varias muestras a diferentes temperaturas hasta sequedad en presencia de una corriente de aire. Fueron obtenidas las óptimas condiciones de temperatura y velocidad de reacción, así como de secado y sinterizado, para obtener cristales de  $\text{TeO}_2$  con alta pureza capaces de retener al  $^{131}\text{I}$  producido por el decaimiento radiactivo.

Después de secado y purificado por el calentamiento, el  $\text{TeO}_2$  fue sinterizado, aplicando una temperatura próxima a su punto de fusión por pocos minutos, suficientes para crear cavidades en medio de su estructura cristalina, donde el  $^{131}\text{I}$  en forma de gas producido por el decaimiento del isótopo  $^{131}\text{Te}$  sea retenido, una vez que el  $\text{TeO}_2$  es bombardeado con neutrones térmicos en el reactor nuclear. Entonces, se inducen las reacciones  $^{130}\text{Te}(n, \gamma)^{131}\text{Te}^m$  ( $t_{1/2} = 30$  h) y  $^{130}\text{T}(n, \gamma)^{131}\text{Te}$  ( $t_{1/2} = 24.8$  m) con un tiempo de irradiación óptimo de 2.5 h.

Después de un tiempo de enfriamiento de 96 h se procede a la destilación del  $^{131}\text{I}$ , colocando la fuente radiactiva dentro de un horno eléctrico, en una celda caliente, donde existe una presión negativa de 0.5 cm de agua.

Entonces, se calienta el horno gradualmente (733- 800 °C). Desde los 400 °C los vapores que contienen el  $^{131}\text{I}$  son bombeados a dos soluciones. La primera es  $\text{NaOH}$  0.1 M, y la segunda es  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  0.02 M más  $\text{NaHCO}_3$   $2.5 \times 10^{-3}$  M(40 %).

Los vapores remanentes pasan por un filtro de carbón activado antes de ser liberados. La primera solución que contiene  $\text{NaOH}$  0.1M recupera el 99.9 % de la actividad total del  $^{131}\text{I}$  bombeado.

El producto obtenido se regula a un pH = 7-9, y es distribuido para su consumo. La actividad remanente se queda en la segunda solución y en el filtro de carbón activado

Los experimentos anteriores, fueron realizados con el fin de establecer las condiciones óptimas de producción de  $^{131}\text{I}$ : rendimiento, pureza química y radioquímica, control de calidad y radiológico, así como costo de producción.

Atentamente



Dr. Manuel Navarréte Tejero

# "STUDY OF RESEARCH TO OPTIMISE THE PRODUCTION PROCESS OF IODINE-131 AT ININ"

## S U M M A R Y

This project was carried on by the National Institute of Nuclear Research, in the Nuclear Center of México (ININ), and it was called " A new method to obtain  $^{131}\text{I}$  by neutron irradiation and dry distillation."

This work describes the optimal parameters to produce  $^{131}\text{I}$  by neutron irradiation and melting of sintered tellurium dioxide. High purity  $\text{TeO}_2$  was produced by adding  $\text{HNO}_3$  to metallic tellurium (Merck No. 8100) and heating at different temperatures till dryness, in presence of an air flow. The optimal conditions of temperature, reaction rate, drying and sintering were established, to obtain high purity  $\text{TeO}_2$  crystals where the retention of  $^{131}\text{I}$  formed by the radioactive decay of  $^{131}\text{Te}$  was the best one.

After drying and purifying by further heating,  $\text{TeO}_2$  is sintered, which means it is taken to nearly its melting point during few minutes in order to create cavities inside the crystalline structure, where gaseous  $^{131}\text{I}$  produced by  $^{131}\text{Te}$  radioactive decay must be adsorbed, once the sintered  $\text{TeO}_2$  has been bombarded with thermal neutrons in a nuclear reactor. The following nuclear reactions are induced:  $^{130}\text{Te}(n, \gamma)^{131}\text{Te}^m$  ( $t_{1/2} = 30$  h) and  $^{130}\text{Te}(n, \gamma)^{131}\text{Te}$  ( $t_{1/2} = 24.8$  m) during an optimal irradiation time of 2.5 h.

After an optimal cooling time of 96 h, the radioactive source is put in a small electric oven enclosed in an airtight box where a negative pressure is kept along the experiment (0.5 cm of water).

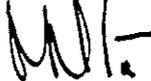
It is heated gradually till melting (733 - 800 °C). From 400 °C on the vapors from the oven are pumped out and bubbled in 2 solutions. First one is 0.1 M NaOH and second one is 0.02 M  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  plus  $2.5 \times 10^{-3}$  M  $\text{NaHCO}_3$  (40 %).

Vapors bubbled in the solutions passed an activated carbon filter before being released. The first solution (0.1 M NaOH) catches 99.9 % of radioactive  $^{131}\text{I}$  pumped out.

This solution is diluted and the pH fixed at a suitable value (7 - 9) before being distributed for its use. The residual activity remains in the second solution and the activated carbon filter.

These experiments were carried on with the aim to establish the optimal conditions of  $^{131}\text{I}$  production: yielding, chemical and radiochemical purity, quality and radiological control, as well as production cost.

Atentamente



Dr. Manuel Navarrete Tejero

**Este trabajo de tesis fue desarrollado en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares (México), en la Dirección de Investigación Tecnológica, Gerencia de Aplicaciones Nucleares en la Salud y Departamento de Materiales Radiactivos en el periodo de septiembre de 1997 a agosto del 2000**

Con todo amor y cariño para mi familia:  
mi esposa Irene, mi hija Mariana y mi hijo José Emmanuel

Con cariño y respeto para mis padres: José y Francisca  
mis hermanos: Gonzalo, Gloria, Raquel, Ana,  
Rubén y Abelino.

Con gratitud y respeto para mi tutor de tesis  
el Dr. Manuel Navarrete Tejero y mis asesores  
la Dra. Guillermina Burillo Amezcua y el  
Dr. José Saniger Blesa.

Con gran estimación para mis amigos de la Gcia.  
de Seguridad Radiológica y el Depto. de Materiales  
Radiactivos del ININ.

## INDICE

	Pàg.
<b>RESUMEN .....</b>	<b>5</b>

### CAPITULO 1

#### INTRODUCCION

<b>1.1. ANTECEDENTES.....</b>	<b>9</b>
<b>1.2. METAS Y OBJETIVOS.....</b>	<b>11</b>
1.2.1. METAS.....	11
1.2.2. OBJETIVOS.....	11
1.2.2.1. Objetivos Particulares.....	11
1.2.2.2. Objetivo General.....	11
<b>1.3. GENERALIDADES.....</b>	<b>12</b>
1.3.1. Elementos del grupo VI : S, Se, Te y Po... ..	12
1.3.2. El telurio.....	13
1.3.3. Propiedades físicas del telurio .. ..	15
1.3.4. Propiedades químicas del telurio.....	16
1.3.5. Isótopos del telurio natural.....	16
1.3.6. Conceptos de sinterizado de TeO <sub>2</sub> .. ..	17
1.3.7. Los radioisótopos en la medicina .. ..	18
1.3.8. Aplicaciones del <sup>131</sup> I en la medicina.....	18
1.3.9. Métodos de obtención de <sup>131</sup> I.....	19

## PARTE EXPERIMENTAL

### CAPITULO 2

#### OPTIMIZACION DE LOS PARAMETROS EN LA OBTENCION DEL $\text{TeO}_2$

<b>2.1. MATERIALES Y EQUIPOS</b>	<b>26</b>
2.1.1. MATERIALES . . . . .	26
2.1.1.1. Obtención de $\text{TeO}_2$ .....	26
2.1.1.2. Sinterizado de muestras de $\text{TeO}_2$ .....	27
2.1.1.3. Preparación de muestras a irradiar . . . . .	27
2.1.1.4. Equipo de obtención de $\text{TeO}_2$ .....	27
2.1.2. EQUIPOS.....	28
2.1.2.1. Obtención de $\text{TeO}_2$ .....	28
2.1.2.2. Sinterizado y análisis de muestras de $\text{TeO}_2$ .....	29
2.1.2.3. Preparación, irradiación y análisis de muestras de $\text{TeO}_2$ .....	29
<b>2.2. DESARROLLO EXPERIMENTAL</b>	<b>30</b>
2.2.1. CALIDAD DEL TELURIO . . . . .	30
2.2.2. REACCION QUIMICA EN LA OBTENCION DE $\text{TeO}_2$ .....	30
2.2.3. DISEÑO Y CONSTRUCCION DEL EQUIPO PARA LA OBTENCION DE $\text{TeO}_2$ .	31
2.2.4. FUNCIONAMIENTO DEL EQUIPO DE PRODUCCION DE $\text{TeO}_2$ .....	34
2.2.5. CINETICA DEL PROCESO DE OBTENCION DE $\text{TeO}_2$ . . . . .	37
2.2.5.1. Introducción.....	37
2.2.5.2. Acondicionamiento del equipo de obtención de $\text{TeO}_2$ .....	38
2.2.5.3. Proceso de obtención de $\text{TeO}_2$ .....	39
2.2.5.4. Análisis volumétrico.....	40
2.2.5.5. Determinación de la temperatura óptima de la reacción.....	40

## CAPITULO 3

### OPTIMIZACION DE LOS PARAMETROS DE SINTERIZADO DEL $\text{TeO}_2$ PARA OBTENER $^{131}\text{I}$

3.1. INTRODUCCION.....	45
3.2. CONDICIONES PARA SINTERIZAR $\text{TeO}_2$ .....	46
3.3. PROCEDIMIENTO DE SINTERIZADO DE MUESTRAS.....	47
3.4. IRRADIACION DE MUESTRAS DE $\text{TeO}_2$ .....	47

## CAPITULO 4

### ESTUDIOS DE LAS REACCIONES NUCLEARES EN LA OBTENCION DE $^{131}\text{I}$ POR DESTILACION SECA

4.1. DETERMINACION DE LAS CONDICIONES OPTIMAS DE IRRADIACION DEL $\text{TeO}_2$ EN EL REACTOR NUCLEAR TRIGA MARK III.....	50
4.2. DETERMINACION DEL TIEMPO DE ENFRIAMIENTO DEL $\text{TeO}_2$ IRRADIADO PARA LA DESTILACION DEL $^{131}\text{I}$ .....	54
4.3. DETERMINACION DE PARAMETROS OPTIMOS PARA LA DESTILACION DE $^{131}\text{I}$ DEL $\text{TeO}_2$ .....	57
4.3.1. Equipo de destilación de $^{131}\text{I}$ por vía seca .....	57

## CAPITULO 5

### DISCUSION Y RESULTADOS

5.1. ESTUDIOS ANALITICOS DEL $\text{TeO}_2$ .....	63
5.2. DETERMINACIÓN DE LAS CONSTANTES DE LA VELOCIDAD DE REACCIÓN.....	65
5.3. DETERMINACION DE LA ENERGIA DE ACTIVACION DE LA REACCION....	66
5.4. DETERMINACION DE LA TEMPERATURA OPTIMA DE LA REACCION.....	68
5.4.1. Irradiación de muestras sinterizadas....	68
5.4.2. Análisis por difracción de rayos X.....	68

5.4.3. Análisis del TeO <sub>2</sub> pulverizado por microscopía electrónica.....	70
5.4.4. Análisis del TeO <sub>2</sub> sinterizado por microscopía electrónica.....	73
5.4.5. Análisis comparativo del TeO <sub>2</sub> pulverizado y sinterizado por microscopía electrónica . . . . .	76
<b>5.5. OPTIMIZACION DE LOS PARAMETROS DE SINTERIZADO DEL TeO<sub>2</sub> PARA OBTENER <sup>131</sup>I.....</b>	<b>81</b>
5.5.1. Sinterizado del TeO <sub>2</sub> . . . . .	81
5.5.2. Irradiación de muestras de TeO <sub>2</sub> sinterizadas... . . . .	83
5.5.3. Determinación de <sup>131</sup> I en las muestras irradiadas . . . . .	84
5.5.4. Determinación de otros radioisótopos en las muestras irradiadas..... . . . .	90
5.5.5. Análisis por microscopía electrónica de las muestras de TeO <sub>2</sub> antes de irradiarse..... . . . .	91
5.5.6. Condiciones óptimas de irradiación del TeO <sub>2</sub> en el reactor nuclear..... . . . .	100
5.5.7. Determinación de las condiciones óptimas del TeO <sub>2</sub> irradiado para la destilación de <sup>131</sup> I..... . . . .	102
5.5.8. Determinación de las condiciones óptimas para la destilación del <sup>131</sup> I a partir del TeO <sub>2</sub> irradiado.. . . . .	106
<b>CAPITULO 6</b>	
<b>CONCLUSIONES.....</b>	<b>108</b>
<b>REFERENCIAS.....</b>	<b>113</b>
<b>APENDICE.....</b>	<b>121</b>

## RESUMEN

Este proyecto fue llevado a cabo en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, Centro Nuclear de México (ININ), con el nombre "Un Nuevo Método para Obtener  $^{131}\text{I}$  por Irradiación Neutrónica de  $\text{TeO}_2$  y su Destilación Seca".

Este trabajo establece los parámetros óptimos para producir  $^{131}\text{I}$  por irradiación neutrónica y fundición de  $\text{TeO}_2$  sinterizado. El  $\text{TeO}_2$  de alta pureza fue producido agregando  $\text{HNO}_3$  al telurio metálico (Merck 8100) y calentando varias muestras a diferentes temperaturas hasta sequedad en presencia de una corriente de aire. Fueron obtenidas las óptimas condiciones de temperatura y velocidad de reacción, así como de secado y sinterizado, para obtener cristales de  $\text{TeO}_2$  con alta pureza capaces de retener al  $^{131}\text{I}$  producido por el decaimiento radiactivo.

Después de secado y purificado por el calentamiento, el  $\text{TeO}_2$  fue sinterizado, aplicando una temperatura próxima a su punto de fusión por pocos minutos, suficientes para crear cavidades en medio de su estructura cristalina, donde el  $^{131}\text{I}$  en forma de gas producido por el decaimiento del isótopo  $^{131}\text{Te}$  sea retenido, una vez que el  $\text{TeO}_2$  es bombardeado con neutrones térmicos en el reactor nuclear. Entonces, se inducen las reacciones  $^{130}\text{Te}(n, \gamma)^{131}\text{Te}^m$  ( $t_{1/2} = 30 \text{ h}$ ) y  $^{130}\text{T}(n, \gamma)^{131}\text{Te}$  ( $t_{1/2} = 24.8 \text{ m}$ ) con un tiempo de irradiación óptimo de 2.5 h.

Después de un tiempo de enfriamiento de 96 h se procede a la destilación del  $^{131}\text{I}$ , colocando la fuente radiactiva dentro de un horno eléctrico, en una celda caliente, donde existe una presión negativa de 0.5 cm de agua. Entonces, se calienta el horno gradualmente (733- 800 °C). Desde los 400 °C los vapores que contienen el  $^{131}\text{I}$  son bombeados a dos soluciones. La primera es  $\text{NaOH}$  0.1 M, y la segunda es  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  0.02 M más  $\text{NaHCO}_3$   $2.5 \times 10^{-3}$  M(40 %).

Los vapores remanentes pasan por un filtro de carbón activado antes de ser liberados. La primera solución que contiene  $\text{NaOH}$  0.1M recupera el 99.9 % de la actividad total del  $^{131}\text{I}$  bombeado

El producto obtenido se regula a un pH = 7-9, y es distribuido para su consumo. La actividad remanente se queda en la segunda solución y en el filtro de carbón activado

Los experimentos anteriores, fueron realizados con el fin de establecer las condiciones óptimas de producción de  $^{131}\text{I}$ : rendimiento, pureza química y radioquímica, control de calidad y radiológico, así como costo de producción.

## S U M M A R Y

This project was carried out the National Institute of Nuclear Research, Nuclear Center of México (ININ), under the name " A new method to obtain  $^{131}\text{I}$  by neutron irradiation and dry distillation."

This work describes the optimal parameters to produce  $^{131}\text{I}$  by neutron irradiation and melting of sintered tellurium dioxide. High purity  $\text{TeO}_2$  was produced by adding  $\text{HNO}_3$  to metallic tellurium (Merck No. 8100) and heated in presence of an air flow at different temperatures till dryness. The optimal conditions of temperature, reaction rate, drying and sintering were established, to obtain high purity  $\text{TeO}_2$  crystals where the retention of  $^{131}\text{I}$  formed by the radioactive decay of  $^{131}\text{Te}$  was the best one.

After drying and purifying by further heating,  $\text{TeO}_2$  is sintered, which means it is heated to nearly its melting point during a few minutes in order to create cavities inside the crystalline structure, where gaseous  $^{131}\text{I}$  produced by  $^{131}\text{Te}$  radioactive decay must be adsorbed, once the sintered  $\text{TeO}_2$  has been bombarded with thermal neutrons in a nuclear reactor. The following nuclear reactions are induced:  $^{130}\text{Te}(n, \gamma)^{131}\text{Te}^m$  ( $t_{1/2} = 30$  h) and  $^{130}\text{Te}(n, \gamma)^{131}\text{Te}$  ( $t_{1/2} = 24.8$  m) during an optimal irradiation time of 2.5 h.

After a cooling time of 96 h, the radioactive source is put in a small electric oven enclosed in an airtight box where a negative pressure is kept during the experiment (0.5 cm of water), and heated gradually till melting (733 - 800 °C). At a temperature of 400 °C on wards vapors from the oven are pumped out and bubbled in 2 solutions. The first one is 0.1 M NaOH and the second one is 0.02 M  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  plus  $2.5 \times 10^{-3}$  M  $\text{NaHCO}_3$  (40 %).

The remaining vapors are bubbled in an activated carbon filter before being released. The first solution (0.1 M NaOH) recovers 99.9 % of radioactive  $^{131}\text{I}$  pumped out

This solution is diluted and the pH fixed at a suitable value (7 - 9) before being distributed for its use. The residual activity remains in the second solution and the activated carbon filter.

These experiments were carried out aiming to establish the optimal conditions of  $^{131}\text{I}$  production: yielding, chemical and radiochemical purity, quality and radiological control, as well as production cost.

# CAPITULO I

## INTRODUCCION

### 1.1. ANTECEDENTES

Debido a la demanda que existe en México de desarrollar técnicas de producción de radiofármacos aplicables en medicina nuclear, Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares decidió desarrollar un proceso de obtención de  $^{131}\text{I}$  por vía seca a partir de  $\text{TeO}_2$ .

El proceso de obtención de  $^{131}\text{I}$ , comienza con la síntesis del  $\text{TeO}_2$  como materia prima, a partir de la oxidación del Te-elemental, con  $\text{HNO}_3$ , en presencia de aire. Posteriormente el  $\text{TeO}_2$  pasa al proceso de sinterizado en forma de lingotes. De esa manera es encapsulado en aluminio, para ser irradiado bajo parámetros óptimos de irradiación en el reactor nuclear. El  $\text{TeO}_2$  irradiado, pasa a la etapa de enfriamiento y luego a la destilación de  $^{131}\text{I}$  por vía seca. El equipo de proceso consta principalmente de tres partes : Sistema de control de destilación, hecho de metal, el sistema de destilación, construido de vidrio pyrex y de cuarzo donde se produce la separación del  $^{131}\text{I}$  de sus padres radiactivos :  $^{131}\text{Te}$  y  $^{131\text{m}}\text{Te}$  y el

sistema electrónico, para el horno de proceso, sistema de ventilación y sistema de vacío.

Los resultados de los experimentos comprueban la efectividad del proceso de producción industrial de  $^{131}\text{I}$  en el ININ, sin embargo, es indispensable optimizar los parámetros físicos, químicos y nucleares, que intervienen en cada etapa del proceso, es decir, estudiar la cinética de la reacción del proceso de obtención de la materia prima, que es el  $\text{TeO}_2$ . Posteriormente, se deben realizar los estudios de sinterizado de  $\text{TeO}_2$ , variando masa, temperatura, y tiempo. Con ello se determina la porosidad óptima de sinterizado que permita capturar con más eficiencia el  $^{131}\text{I}$  que se produce por el decaimiento del  $^{131}\text{Te}$  y  $^{131\text{m}}\text{Te}$  durante un tiempo óptimo de enfriamiento. También se deben optimizar los parámetros de irradiación del  $\text{TeO}_2$  en el reactor nuclear, como es el tiempo de irradiación, flujo de neutrones y masa de  $\text{TeO}_2$ , con el fin de obtener la máxima producción de  $^{131}\text{I}$  al menor costo. Se deben estudiar también las condiciones de temperatura y presión durante el proceso de destilación de  $^{131}\text{I}$ , con el fin de determinar el comportamiento óptimo de este radioisótopo que se forma como producto de decaimiento de  $^{131}\text{Te}$  y  $^{131\text{m}}\text{Te}$ .

Lo anterior, es con el fin de obtener el máximo rendimiento en cuanto al nivel de radiactividad, pureza de  $^{131}\text{I}$ , control de calidad, control radiológico y costos de operación en la producción de  $^{131}\text{I}$ .

## 1.2. METAS Y OBJETIVOS

### 1.2.1. METAS :

- a) Estudio de la cinética de la reacción de oxidación del Te con diferentes concentraciones de  $\text{HNO}_3$ .
- b) Estudio analítico del  $\text{TeO}_2$  producido
- c) Control de calidad del  $\text{TeO}_2$ .
- d) Estudio de sinterizado del  $\text{TeO}_2$ .
- e) Estudio de irradiación en el reactor nuclear de  $\text{TeO}_2$ .

### 1.2.2. OBJETIVOS

#### 1.2.2.1 OBJETIVOS PARTICULARES :

- a) Optimizar los parámetros del proceso de obtención de  $\text{TeO}_2$ .
- b) Optimizar los parámetros de sinterizado de  $\text{TeO}_2$ .
- c) Optimizar los parámetros de irradiación del  $\text{TeO}_2$  sinterizado para la producción de  $^{131}\text{I}$
- d) Optimizar los parámetros del proceso de destilación de  $^{131}\text{I}$ .
- e) En base a la optimización de los parámetros del proceso global de producción de  $^{131}\text{I}$ , lograr que resulte más económico y eficiente que en el extranjero.

#### 1.2.2.2. OBJETIVO GENERAL :

Optimizar los parámetros del proceso de obtención de  $^{131}\text{I}$  por vía seca a partir de  $\text{TeO}_2$ , estudiando la cinética de reacción para la obtención de  $\text{TeO}_2$  como materia prima. Realización de estudios del  $\text{TeO}_2$  pulverizado y sinterizado en base a la aplicación de técnicas analíticas, por microscopía electrónica y difracción de rayos X, así como pruebas de irradiación.

Estos estudios tienen el objetivo general, de que la producción local de  $^{131}\text{I}$  resulte más económica, lo cual servirá al mercado nacional e internacional.

### 1.3. GENERALIDADES

#### 1.3.1. ELEMENTOS DEL GRUPO VI : S, Se, Te Y Po.<sup>(1,2)</sup>

##### a). ESTRUCTURA ELECTRONICA, VALENCIA Y ESTEREOQUIMICA.

En la tabla 1 se han reunido los datos referentes a la configuración electrónica de los elementos y algunas propiedades.

ELEMENTO	ESTRUCTURA ELECTRONICA	PUNTO DE FUSION °C	PUNTO DE EBULLICION °C	RADIO X <sup>2-</sup>	RADIO COVALENTE -X-	ELECTRONEGATIVIDAD
S	(Ne)3s <sup>2</sup> 3p <sup>4</sup>	119 <sup>a</sup>	444.6	1.90	1.04	2.44
Se	(Ar)3d <sup>10</sup> 4s <sup>2</sup> 4p <sup>4</sup>	217	684.8	2.02	1.17	2.48
Te	(Kr)4d <sup>10</sup> 5s <sup>2</sup> 5p <sup>4</sup>	450	1390	2.22	1.37	2.01
Po	(Xe)4f <sup>14</sup> 5d <sup>10</sup> 6s <sup>2</sup> 6p <sup>4</sup>	254	962	2.30		1.76

**Tabla 1. Configuración electrónica del Te y otros elementos del grupo VI.**

Las estructuras electrónicas de los elementos del grupo VI se aproximan a las configuraciones que corresponden al gas inerte que les sigue en la tabla periódica, en consecuencia sus propiedades químicas son puramente no metálicas, a excepción de las del Po y, en menor medida las del telurio. Prácticamente todos los compuestos del Te son covalentes como ocurre en el caso de otros elementos no metálicos. Algunos de los compuestos formados por estos elementos confirman la tendencia a completar la configuración de gas inerte, para lo cual les faltan dos electrones. Se forman así los iones calcónidos, S<sup>2-</sup>, Se<sup>2-</sup> y Te<sup>2-</sup>, pero la existencia de estos iones como tales en los derivados calcogenados de los metales que no sean los más electropositivos es muy poco probable. Estos elementos forman también compuestos que poseen dos enlaces formados por un par de electrones, como por ejemplo (CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>S, H<sub>2</sub>S, SCl<sub>2</sub>, etc. y especies iónicas que tienen un enlace y una carga negativa, por ejemplo, RS<sup>-</sup>, o tres enlaces y una carga positiva, por ejemplo, R<sub>3</sub>S<sup>+</sup>.

## b). PROPIEDADES GENERALES DEL GRUPO.

Existe una gran diferencia entre las propiedades químicas del oxígeno y las de los restantes miembros del grupo VI, y a lo largo de la secuencia S, Se, Te, Po la variación de las propiedades se hace más gradual. Las diferencias entre estos elementos y el oxígeno pueden atribuirse, a las siguientes razones :

1. La menor electronegatividad de los elementos del S al Po debilita el carácter iónico de aquellos de sus compuestos que formalmente son análogos a los del oxígeno ; altera la estabilidad relativa de varias clases de uniones y disminuye drásticamente la importancia de las uniones hidrógeno.
2. El número de coordinación no está limitado a un valor máximo de cuatro, ni la valencia esta limitada a dos, como es el caso del oxígeno, porque en los restantes elementos del grupo hay orbitales disponibles para ser usados en la formación de enlaces. El azufre forma varios compuestos hexacoordinados, como por ejemplo el  $SF_6$ . En el caso del telurio, su número de coordinación característico es precisamente seis.
3. El azufre (pero no el Se ni el Te) tiene una tendencia particular hacia la formación de cadenas, de manera que forma varias clases de compuestos que carecen de análogos en el caso del oxígeno, selenio y telurio. A pesar de que el selenio y el telurio no tienen, en forma alguna, la misma tendencia a formar cadenas como el azufre, el selenio forma sin embargo anillos y largas cadenas cuando se halla en su forma elemental. Estas cadenas no son ramificadas, porque la valencia del elemento es de solo dos.

### 1.3.2. EL TELURIO

En estado natural, el selenio y el telurio son mucho menos abundantes que el azufre, muy frecuentemente se les encuentra como selenuros y telururos que constituyen impurezas en los minerales de sulfuros. A menudo se les obtiene recuperándolos del polvo producido en las cámaras de combustión de los sulfuros, particularmente en el caso de los sulfuros de Ag y Au, así como también de las cámaras de plomo de las fábricas de ácido sulfúrico.

Estructura del telurio elemental se presenta en forma alotrópica de telurio, esta es de color blanco plata, semimetálica, e isomorfa de la forma gris del selenio. Esta, es virtualmente insoluble en todos los líquidos excepto aquellos con los cuales reacciona. El selenio y el telurio grises forman soluciones sólidas en todas proporciones, cuya estructura parece contener cadenas en las cuales los átomos del Se y del Te se alternan más o menos al azar.

La concentración de moléculas paramagnéticas de  $\text{Se}_2$  y  $\text{Te}_2$  y de átomos de Se y Te en los vapores de selenio y de telurio es evidentemente mucho mayor que en el azufre, en condiciones comparables de temperatura y de presión, este hecho confirma su menor tendencia a la formación de cadenas.

El telurio es un elemento moderadamente reactivo, al ser calentado en el aire arde para dar  $\text{TeO}_2$ . Se combina directamente con los halógenos y con compuestos metálicos y no metálicos. El telurio no es atacado por ácidos no oxidantes, pero es atacado en caliente por ácido sulfúrico, y nítrico concentrados. El Te se disuelve en soluciones acuosas de sus aniones, pero en forma muy limitada. Las reacciones con el anión  $\text{Te}^{2-}$  dan lugar a la formación del polianión  $\text{Te}_n^{2-}$ .

Los principales óxidos del Te son:  $\text{TeO}_2$  y  $\text{TeO}_3$ . El dióxido de Te se puede obtener por calentamiento del Te con  $\text{HNO}_3$ , en cuyo caso se forma  $2\text{TeO}_2\text{HNO}_3$ . Por calentamiento se puede eliminar el agua y el  $\text{HNO}_3$ . La estructura de los dióxidos varía mucho. Es un sólido blanco no volátil. Los ángulos de los enlaces indican que estas cadenas no son planares. El  $\text{TeO}_2$  cristaliza en dos formas que aparentemente son iónicas, pero no se conoce su estructura con exactitud.

El trióxido de telurio ( $\text{TeO}_3$ ), se obtiene por deshidratación del ácido ortotelúrico ( $\text{H}_6\text{TeO}_6$ ) de 300 a 360 °C, reacciona solo lentamente con el agua para regenerar el ácido. Con álcalis calientes y concentrados, el trióxido de telurio se descompone en dióxido y oxígeno.

### 1.3.3. PROPIEDADES FISICAS DEL TELURIO.<sup>(3,4)</sup>

El telurio elemental no presenta formas alotrópicas como el azufre y el selenio. solo se ha presentado una forma cristalina, hexagonal, isomorfa, como el selenio hexagonal (gris), y una variedad amorfa, de propiedades inciertas. El color del telurio es argentino y posee un brillo metálico, es frágil y no duro con una densidad es de  $6.25 \text{ g/cm}^3$ . Es mal conductor de la electricidad ; la luz casi no tiene efecto sobre la conductancia. Las películas de Te son opacas a la luz visible, pero útiles para transmitir el infrarrojo.

La entropía del telurio es de 11.888 u. e. a  $25 \text{ }^\circ\text{C}$  y funde a  $449 \text{ }^\circ\text{C}$  dando un líquido oscuro semejante al plomo fundido. El calor de fusión es de 4180 Kcal/mol, la presión de vapor entre 786 y 1110 °K y está dada por la ecuación :

$$\log p_m = 7.5999 - (5960.2/T)$$

Donde la  $T = \text{ }^\circ\text{K}$

El punto de ebullición es de  $990 \text{ }^\circ\text{C}$ . El calor específico es de  $6.14 \text{ cal/g}$  a  $25 \text{ }^\circ\text{C}$ . El vapor de Te absorbe luz en las regiones visible y ultravioleta, y contiene, según estudios de espectrometría de masas, moléculas  $\text{Te}^5$ ,  $\text{Te}^4$ ,  $\text{Te}^2$  y Te. El calor de formación partiendo en estado gaseoso de un átomo de telurio es de 48 Kcal/mol. Los estudios de difracción de electrones y la densidad de vapor indican que el componente predominante en fase de vapor es de  $\text{Te}_2$ , entre  $600$  y  $210 \text{ }^\circ\text{C}$ . La energía de disociación de  $\text{Te}_2$  (gas) para formar átomos es de 53 Kcal/mol.

El radio covalente del Te es de  $1.37 \text{ }^\circ\text{A}$ . La primera afinidad electrónica puede alcanzar  $2.3 \text{ eV}$ , mientras que la segunda (para formar  $\text{Te}^{2-}$ ), es de  $-3 \text{ eV}$  aproximadamente. El primer potencial de ionización es  $9.01 \text{ eV}$  y la electronegatividad es de 2.2 aproximadamente en la escala de Pauling.

### 1.3.4. PROPIEDADES QUIMICAS DEL Te.<sup>(3,4)</sup>

El Te sólido cristalino se empaña poco al exponerse al aire ; fundido es fácilmente oxidado a dióxido. El Te reacciona con los halógenos y se mezcla en todas las proporciones con el azufre y el selenio. El telurio se oxida con ácido nítrico, calentándose el compuesto obtenido ( $2\text{TeO}_2\text{HNO}_3$ ), se obtiene  $\text{TeO}_2$  con alta pureza. El Te reacciona con  $\text{H}_2\text{SO}_4$  para dar  $\text{TeSO}_2$  ; si se añade Te elemental a las soluciones que contengan el ion Telururo, se forman politeluros coloreados. A diferencia del selenio, el Te no es soluble en solución acuosa de sulfito sódico, lo cual es la base para un método de separación de ambos elementos. El Te es soluble en álcalis cáusticos calientes, pero no en hidróxido de amonio. En solución forma iones monoatómicos ( $\text{Te}^{2-}$ ) y cationes también monoatómicos ( $\text{Te}^{4+}$ ), y pueden depositarse películas de Te en electrodos inertes de dos signos. Los compuestos orgánicos que contienen Te no son tan estables como los correspondientes con selenio y azufre ; se conocen sin embargo, telururos alquílicos y arílicos, teluruomercaptantes, compuestos de teluronio y derivados cíclicos con Te.

1.3.5. ISOTOPOS DEL TELURIO. El telurio natural, está compuesto de varios isótopos, siendo el más abundante el isótopo  $^{130}\text{Te}$  con 33.8 %, el cual sirve para la producción del  $^{131}\text{I}$ . En la tabla 2 se muestra la distribución isotópica del telurio natural.<sup>(5,6)</sup>

ISOTOPO ESTABLE	ABUNDANCIA ISOTOPICA %
$^{129}\text{Te}$	0.096
$^{122}\text{Te}$	2.60
$^{123}\text{Te}$	0.908
$^{124}\text{Te}$	4.816
$^{125}\text{Te}$	7.14
$^{126}\text{Te}$	18.95
$^{128}\text{Te}$	31.69
$^{130}\text{Te}$	33.80

Tabla 2. Isótopos del telurio natural.

### 1.3.6. CONCEPTOS DE SINTERIZADO DE $\text{TeO}_2$ .<sup>(7,8)</sup>

El sinterizado, es llegar a la compactación de los granos de  $\text{TeO}_2$  seleccionando temperaturas por arriba de la temperatura media de fusión del material a sinterizar sin llegar a la fusión en un tiempo determinado y en este proceso intervienen la presión y el transporte de masa de grano a grano. Los efectos que se producen en el  $\text{TeO}_2$  en función de la temperatura de sinterizado afectan su densidad, resistividad, conductividad, ductividad y propiedades dinámicas.

El objeto del sinterizado del  $\text{TeO}_2$ , es aumentar en lo más posible el número de contactos entre partículas, es decir de grano a grano. Como producto de este fenómeno se crean poros internos y surge el concepto de "porosidad" y "% de porosidad" que se define como el espacio debido a los huecos internos que se forman durante el proceso de sinterizado. De esta forma el sinterizado de  $\text{TeO}_2$  se divide en tres etapas :

1). Etapa inicial. Se lleva a cabo al inicio del aumento de la temperatura en función del tiempo, de modo que sucedan tres fenómenos :

- Se forman poros gigantes e interconectados.
- Empieza a haber uniones de partículas de  $\text{TeO}_2$ .
- Se aíslan los poros que se forman.

2). Etapa intermedia.

En esta etapa ha aumentado aún más la temperatura en función del tiempo de sinterizado de  $\text{TeO}_2$  y es cuando los poros forman cilindros o agrupaciones tubulares.

3) Etapa final.

En esta etapa, se aplica una temperatura en función del tiempo sin llegar a la fusión de  $\text{TeO}_2$  y los poros que se han formado tienden a formar esferas y se produce un fenómeno que es la migración de poros.

### 1.3.7. LOS RADIOISOTOPOS EN LA MEDICINA. <sup>(9, 47,48,59,78)</sup>

Debido a la necesidad de sintetizar moléculas marcadas con mejores características químicas, biológicas y moleculares, nace la radiofarmacia, que en medicina nuclear tiene por objeto la producción y uso de componentes radiactivos para el diagnóstico y terapia de enfermedades diseminadas en la población mundial.

En medicina nuclear, existe un constante desarrollo de nuevos radiofármacos de tecnecio y yodo, así como la obtención de biomoléculas marcadas.

Los radiofármacos son soluciones radiactivas preparadas con cualidades farmacéuticas para usos biomédicos. Los rayos gamma emitidos por éstos, tienen una energía adecuada que una vez dentro del cuerpo humano sean fácilmente detectados desde el exterior del cuerpo. Por lo tanto, un radiofármaco, es un trazador con ciertas características biológicas que permite el examen de un órgano. Por ejemplo el  $^{131}\text{I}$  sirve para observar su funcionamiento de la glándula tiroides. Los radioisótopos son usados también con propósitos de terapia.

### 1.3.8. APLICACIONES DEL $^{131}\text{I}$ EN LA MEDICINA. <sup>(9,47)</sup>

El  $^{131}\text{I}$  es un elemento versátil, ya que su radiactividad puede usarse, por ejemplo, para visualizar la glándula tiroides.

Dentro de los radiofármacos del yodo se encuentran: proteínas marcadas, biomoléculas de bajo peso molecular marcadas, moléculas marcadas y anticuerpos monoclonales marcados.

Los radioisótopos del yodo más utilizados en la preparación de radiofármacos en medicina nuclear son:  $^{123}\text{I}$ ,  $^{125}\text{I}$  y  $^{131}\text{I}$ . El  $^{131}\text{I}$  es empleado para diagnóstico clínico por las siguientes razones:

a). Su vida media es de 8.05 días, esto le permite permanecer tiempos de residencias adecuados en el cuerpo durante las aplicaciones médica, y también se puede preparar en proporciones comerciales.

b). Su obtención es fácil, a través de la irradiación de  $\text{TeO}_2$ , esto implica un bajo costo de producción.

c). Su energía gamma es de 364 KeV, suficiente para penetrar bien en los tejidos, por lo tanto, es adecuado para obtener imágenes gammagráficas. <sup>(26)</sup>

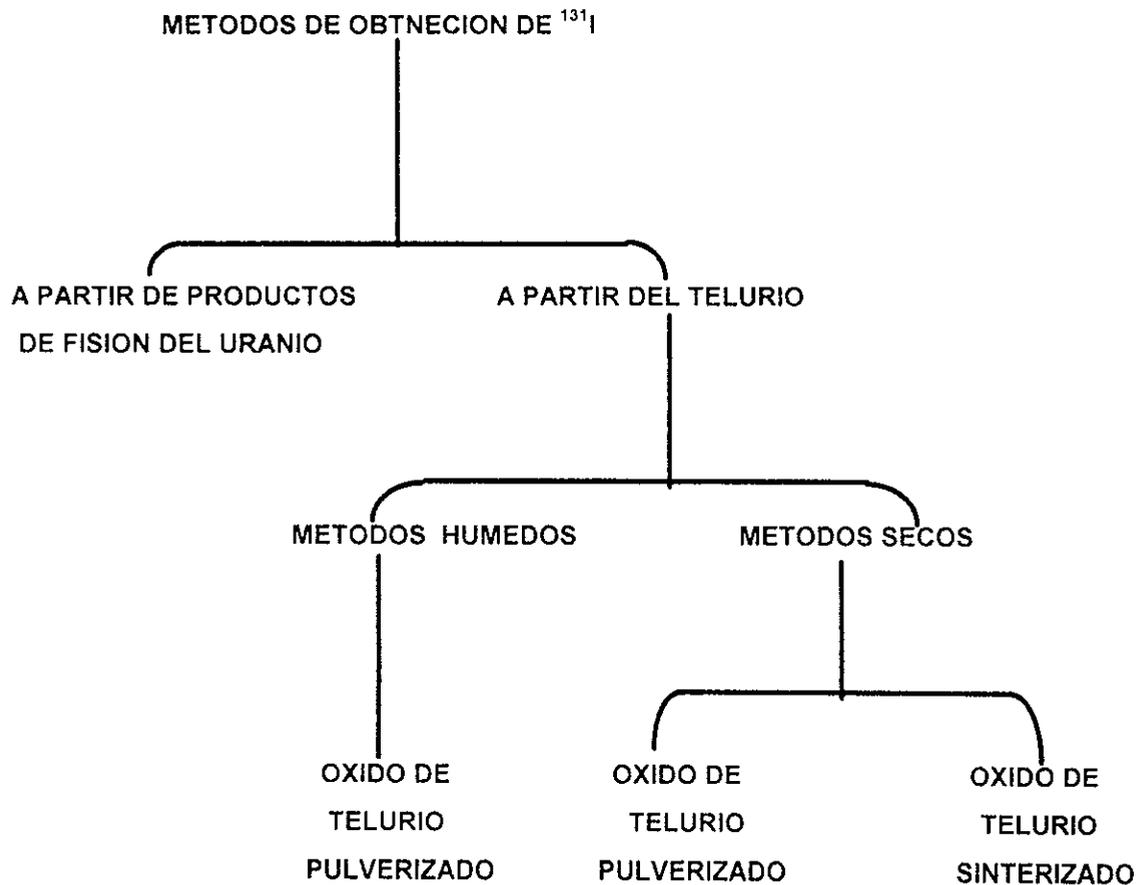
Los radiofármacos son compuestos que poseen en su estructura, uno de los átomos radiactivos y son empleados como trazadores en el cuerpo humano. Generalmente, estos compuestos no tienen efectos farmacológicos, ya que en la mayoría de los casos su función es netamente como trazadores, aunque también se emplean con propósitos terapéuticos. Cuando un radioisótopo es empleado como trazador en el cuerpo humano su actividad debe ser muy pequeña y su vida media es muy corta, por consiguiente en poco tiempo desaparece como tal en el cuerpo humano, por la acción conjunta de su decaimiento y metabolización por el organismo.

### 1.3.9. METODOS DE OBTENCION DE $^{131}\text{I}$ . <sup>(11,12, 42,43,48)</sup>

Los métodos de obtención de  $^{131}\text{I}$  más utilizados en la actualidad, se pueden agrupar en dos, dependiendo del material utilizado como blanco.

El primer grupo, consiste en la obtención de  $^{131}\text{I}$  a partir del uranio irradiado con neutrones (producto de fisión). Dentro del segundo grupo pueden clasificarse los métodos que por irradiación neutrónica del telurio ya sea metálico o en forma de dióxido telúrico, lleven a la obtención de  $^{131}\text{I}$ , aplicando procesos de destilación seca y procesos de destilación húmeda. <sup>(48,74,75)</sup>

Esquemáticamente los métodos de obtención de  $^{131}\text{I}$  los podemos representar de la siguiente manera:



a). DESTILACION SECA:

Se utiliza como blanco dióxido de telurio ( $\text{TeO}_2$ ), o telurio metálico que es irradiado y después calentado en un horno, el vapor de yodo desprendido es absorbido en una solución de hidróxido de sodio y en otra solución de bicarbonato de sodio. En la figura 1, se muestra el método de obtención de  $^{131}\text{I}$  por destilación seca

desarrollado en el Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares de México (ININ).

Este método se aplicó originalmente en Francia, y actualmente se está aplicando en otros países, como Chile y Perú. La diferencia que existe de México con estos países, radica principalmente en el proceso de separación del  $^{131}\text{I}$  del  $\text{TeO}_2$  irradiado al ser destilado y también el tipo de sustancias en las cuales es atrapado el  $^{131}\text{I}$  después de la destilación y el diseño del equipo de proceso de destilación.

# OBTENCION DE I-131 A PARTIR DE OXIDO DE TELURIO CENTRO NUCLEAR DE MEXICO

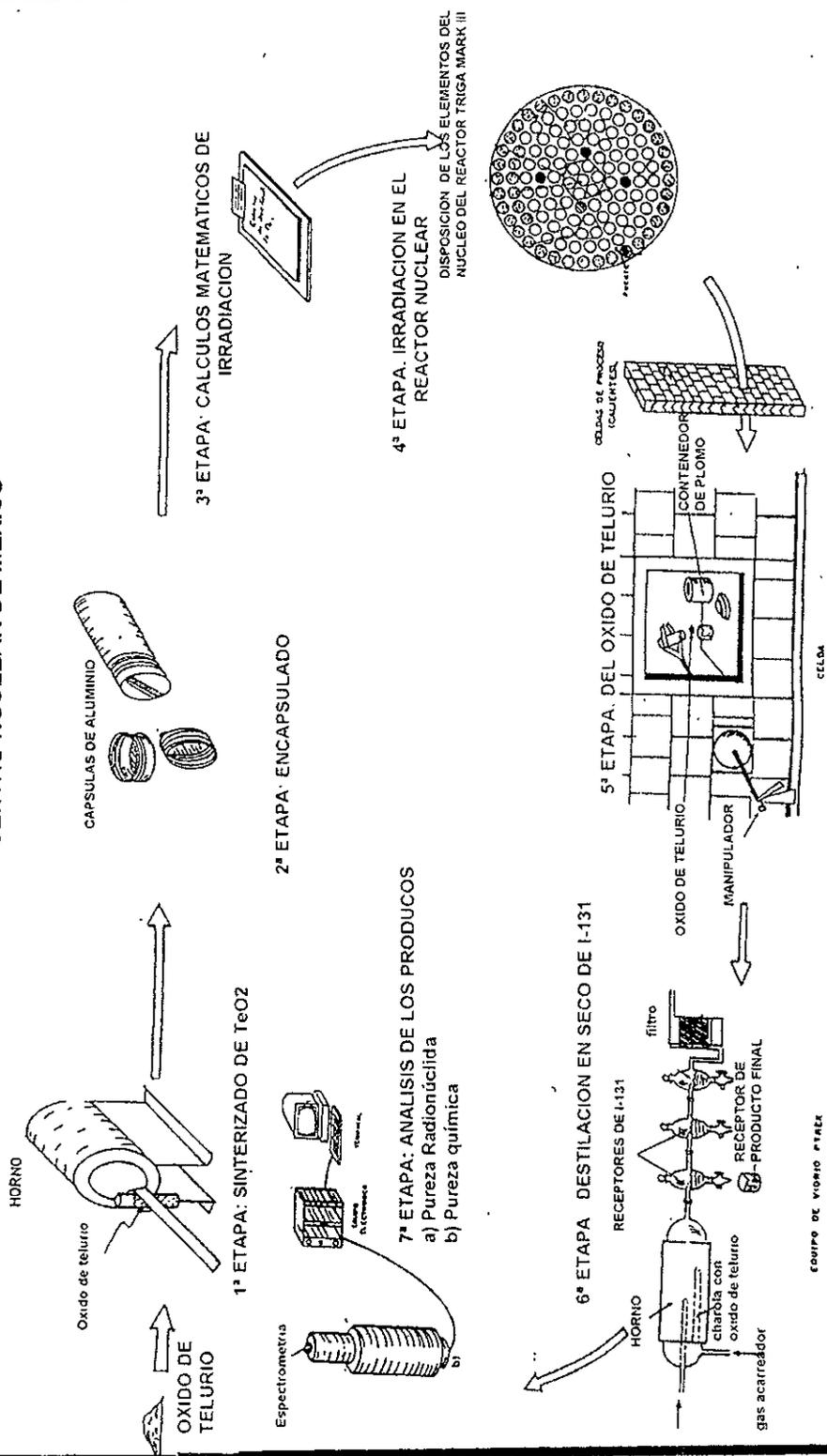


Fig. 1. Método de obtención de <sup>131</sup>I por vía seca a partir de TeO<sub>2</sub>

## b). DESTILACION HUMEDA.<sup>(45,64,74,76)</sup>

Los compuestos empleados como materia prima por este método son muy variados: ácido ortotelúrico ( $H_6TeO_6$ ), ácido metatelúrico ( $H_2TeO_4$ ), telurio y dióxido de Telurio entre otros. Los reactivos químicos que intervienen en el proceso de destilación para obtener el  $^{131}I$  son  $AgNO_3$ ,  $H_2SO_4$ , glucosa,  $Na_2CO_3$ ,  $NaOH$ ,  $Na_2HCO_3$ , entre otros. El telurio es usualmente procesado disolviéndolo en un ácido mineral fuerte, preferentemente  $H_2SO_4$ , después se adiciona un agente oxidante ( $H_2O_2$ ,  $KMnO_4$  etc.), se destila en una solución que contiene sulfito o tiosulfato de sodio. Algunos de estos procesos son.<sup>(42)</sup>

b.1. Irradiación de telurio metálico y posterior disolución en mezcla sulfocrómica, oxidación del telurio y yodo formado, a ácido telúrico e yódico respectivamente, y posterior reducción del ácido iódico a yodo elemental, el que es separado por destilación. El inconveniente de este método está en la dificultad que presenta la disolución del telurio metálico.

b.2. Irradiación del ácido telúrico y solubilización del mismo. El yodo formado es separado en dicha solución por destilación con corriente de nitrógeno.

b.3. Otro método húmedo desarrollado en países como Hungría, Polonia y Rumania, el cual emplea  $TeO_2$  como blanco, el cual es disuelto en un álcali acidificando la mezcla posteriormente. El yodo radiactivo formado se destila y se atrapa.<sup>(45)</sup>

b.4. El ácido Telúrico en sus formas meta y orto, fue usado en países como España, Vietnam, Yugoslavia y Japón. La electrólisis se aplicó en Taiwan.

b.5. Actualmente en Brasil y Argentina, también se aplica este método, usando también el ácido Telúrico.

### 1.3.9.1. VENTAJAS DEL METODO A PARTIR DE PRODUCTOS DE FISION DE URANIO. <sup>(65,80)</sup>

Obtención de grandes cantidades de  $^{131}\text{I}$  y los beneficios que esto implica son posibilidades de exportación de grandes cantidades, es decir mayor de 5 Ci/semana. También se pueden aprovechar los subproductos de fisión para la agricultura, medicina e industria, entre otros.

### 1.3.9.2. DESVENTAJAS DEL METODO A PARTIR DE PRODUCTOS DE FISION DE URANIO

1. Falta de una infraestructura técnica en México para desarrollar este proceso.
2. Falta de capacidad tecnológica, es decir capacitación de recursos humanos.
3. El proceso es complejo, debido a que se generan muchos radionúclidos como subproductos, y su manejo es complicado debido a los procesos radioquímicos.
4. Se requiere un costo de capital elevado comparado con los métodos que tienen como materia prima el Te.

### 1.3.9.3. DESVENTAJAS DEL METODO DE DESTILACION HUMEDA

1. Mayor cantidad de equipo que en los métodos secos.
2. Mayor complejidad en el arreglo del equipo.
3. Control de mayor número de variables del proceso.
4. Proceso de destilación más complejo, debido, a la influencia de un número mayor de sustancias ajenas a las sustancias de interés.
5. Mayor tiempo para descontaminar el equipo.

### 1.3.9.4. VENTAJAS DE LA DESTILACION HUMEDA.

1. Destilación a bajas temperaturas.
2. La pureza del  $^{131}\text{I}$  que se obtiene, depende del cuidado con que se manejen las sustancias que intervienen en el proceso y pueden ocurrir conaminaciones.

### 1.3.9.5. VENTAJAS DEL METODO DE DESTILACION SECA.

1. Control de un número mínimo de variables durante el proceso.

2. Menor cantidad de equipo y menor complejidad en el arreglo del diseño del proceso de destilación.
3. Proceso de destilación simple, porque no interviene ningún otro reactivo en contacto con el  $\text{TeO}_2$  dentro del horno de destilación y además se encuentra en un sistema cerrado y al vacío.
4. Menor tiempo para descontaminar el equipo.

#### 1.3.9.6. DESVENTAJAS DEL METODO DE DESTILACION SECA.

1. La destilación se lleva a cabo por arriba de  $733\text{ }^\circ\text{C}$  dentro de la celda caliente, y esto ocasiona cierto riesgo en su control de temperatura.
2. Existe el riesgo de que se quiebre el equipo de cuarzo, que forma parte del proceso de destilación.

#### 1.3.9.7. SELECCIÓN DEL METODO.

Analizando las ventajas y desventajas de los métodos, podemos concluir que de acuerdo a las posibilidades económicas, cuestiones técnicas del desde un punto de vista de reactivos que intervienen en el proceso y factibilidad económica, hemos seleccionado el método de obtención de  $^{131}\text{I}$  por destilación seca a partir del  $\text{TeO}_2$  sinterizado.

# PARTE EXPERIMENTAL

## CAPITULO 2

### OPTIMIZACION DE LOS PARAMETROS EN LA OBTENCION DE TeO<sub>2</sub>.

#### 2.1. MATERIALES Y EQUIPOS

##### 2.1.1. MATERIALES

###### 2.1.1.1. Obtención de TeO<sub>2</sub>.

- a) Pinzas para tubo de ensaye
- b) Cajas petri
- c) Pipeta Lunge-Rey
- d) Matraces Erlenmeyer de 250 ml y 1000 ml
- e) Buretas de 250 ml
- f) Vasos de precipitados de 80 ml y 500 ml
- g) Pipetas de 10 ml
- h) Matraces aforados de 100 ml y 250 ml.
- i) Morteros
- j) Viales (varios)
- k) Papel filtro

### **2.1.1.2. Sinterizado de muestras de TeO<sub>2</sub>**

- a) Morteros
- b) Pinzas para tubo de cuarzo
- c) Tubo de cuarzo de 2 cm de diam. por 8 cm de largo.
- d) Cajas Petri
- e) Oxido de telurio marca ININ

### **2.1.1.3. Preparación de muestras a irradiar**

- a) Pinzas para tubo de ensaye.
- b) Cápsulas de aluminio 99 % de pureza. Largo = 7 cm y diámetro = 2.5 cm
- c) Ampulas de cuarzo. Largo 5.0 cm y diámetro = 1.5 cm
- d) Vasos de precipitados Pyrex de 100 ml
- e) Acetona
- f) Oxido de Telurio marca ININ
- g) Varios contenedores de plomo para ampulas de cuarzo de 4 cm de espesor.
- h) Pinzas para sujetar cápsulas de aluminio con material radiactivo. Largo = 90 cm

### **2.1.1.4. Equipo de obtención de TeO<sub>2</sub>**

- a) Tornillos Allen. c/cil. No. 10-24 in 6 x 3/4" L , 3/8
- b) Rondana plana No. 10, 3/8, 1/4, 5/16
- c) Rondanas de presión No. 10 Ac Templado
- d) Remache POP 1/8", 1/2"
- e) Tuerca 3/8", 1/4", 5/16"  $\phi$  SAE
- f) Tornillo c/Hex, 1/4"
- g) Rodamento Angular
- h) Tuerca tipo mariposa No. 10 SAE
- i) Birlo No. 10.24

- j) Birlo 5/16"
- k) Resistencia eléctrica
- l) Placa de asbesto
- m) Lámina, cal. 12
- n) Conexión para agua 3/8 CED 80 ASTM A-120
- o) Barra  $\phi$  1/4" Laton
- p) Barra  $\phi$  1" Laton
- q) Barra  $\phi$  5/8" Aluminio
- r) Barra  $\phi$  12" Aluminio
- s) Barra  $\phi$  1 1/2" Laton
- t) Solera de 3/8" x 1" Aluminio
- u) Barra  $\phi$  1/2 " SAE 304
- v) Barra  $\phi$  1:1/4" Laton
- w) Placa de 3/4" ASTM A-36
- x) PTR 38 X 2.8 Acero al carbón
- y) Placa 5/16" ASTM A-36
- z) Conexión para tubo 3/8" ced 80 ASTM-120
- aa) Lámina cal. 18 Acero inox. 304
- bb) Placa 1/4" Aluminio

## 2.1.2. EQUIPOS

### 2.1.2.1. Obtención de $\text{TeO}_2$

- a) Balanza analítica
- b) Equipo de obtención de  $\text{TeO}_2$
- c) Medidor controlador de temperatura
- d) Bomba de vacío
- e) Mufla. Capacidad de 1000 °C

### **2.1.2.2. Sinterizado y análisis de muestras de TeO<sub>2</sub>**

- a) Horno tubular vertical marca TecniLab
- b) Balanza Analítica
- c) Microscopio Electrónico de Barrido
- d) Difractómetro de Rayos X

### **2.1.2.3. Preparación, irradiación y análisis de muestras de TeO<sub>2</sub>**

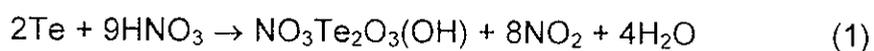
- a) Reactor Nuclear Triga Mark III
- b) Carro blindado para transportar material radiactivo
- c) Detector de radiación Teletector
- d) Detector Geiger Muller
- e) Cámara de ionización CAPINTEC
- f) Balanza analítica
- g) Campana de extracción
- h) Ropa de vestir:
  - guantes de cirujano
  - cubreboca
  - cubrecabeza
  - bata
  - guantes de plástico

## 2.2. DESARROLLO EXPERIMENTAL

### 2.2.1. REACCIÓN QUÍMICA EN LA OBTENCIÓN DE TeO<sub>2</sub>.<sup>(13,14,15)</sup>

En la obtención del TeO<sub>2</sub>, se emplea telurio (Te), marca Merck, con la composición gravimétrica: cloro 0.05 %, azufre 0.01 %, selenio 0.05 % y telurio 99.0 %.

El método de obtención de TeO<sub>2</sub> parte de una reacción de oxidación del Te elemental, con HNO<sub>3</sub>. El procedimiento consiste en depositar el Te en forma de polvo en un reactor, posteriormente se le adiciona lentamente el HNO<sub>3</sub> y en este instante comienza la reacción de oxidación y se observan desprendimiento de vapores color café, debido a que la reacción es altamente exotérmica (moléculas de NO<sub>2</sub>). Después de depositar el HNO<sub>3</sub>, se aumenta lentamente la temperatura del reactor para controlar la reacción, de esta forma, el aire que entra al reactor oxida lentamente al Te y un refrigerante evita escape de vapores de Te. En el transcurso de la reacción se observa un complejo blanco que es TeO<sub>2</sub>HNO<sub>3</sub> y comienzan a aparecer moléculas de TeO<sub>2</sub> color blancas, con pequeños granos amarillos y negros, que son residuos del oxidante y de Te que no reaccionó. Sin embargo, se sigue adicionando un poco más de HNO<sub>3</sub>, hasta que reacciona con todo el Te que queda libre, el calentamiento se continua hasta sequedad con la finalidad de recuperar el producto lo más seco posible. Se separa el producto (TeO<sub>2</sub>), se pesa y se realizan los cálculos de rendimiento de acuerdo a la estequiometría de la reacción, como se observa en las reacciones (1) y (2).



## 2.2.2. DISEÑO Y CONSTRUCCIÓN DEL EQUIPO PARA LA OBTENCIÓN DE $\text{TeO}_2$ <sup>(13,15)</sup>

El  $\text{TeO}_2$ , debe reunir características fisicoquímicas específicas con un alto grado de pureza, debido que el  $^{131}\text{I}$  tiene aplicación en el área de la medicina nuclear. Hasta la fecha México no cuenta con un proceso que nos garantice la calidad requerida de  $\text{TeO}_2$  para producir  $^{131}\text{I}$ .

Con el diseño y construcción de un equipo para la obtención de  $\text{TeO}_2$  se pretende cubrir la demanda nacional de materia prima en la producción de  $^{131}\text{I}$ . Luego se pretende exportar.

Para poder contar con un equipo que garantice eficiencia en la producción de  $\text{TeO}_2$ , fue necesario pasar por tres etapas:

### ETAPA INICIAL A NIVEL LABORATORIO:

El proceso de obtención de  $\text{TeO}_2$  a nivel laboratorio se desarrolló en una campana de extracción de vapores. Se colocó un matraz de tres bocas donde se llevó a cabo la reacción al que previamente se le introdujo un barra magnética, en la boca central del matraz se ensambló un refrigerante de manera vertical, para condensar los vapores emanados y evitar que fueran expulsados al ambiente. Se conectó una entrada de agua por la parte inferior y salida por la parte superior. En las bocas laterales se colocaron lanzas de aire para conseguir la oxidación completa.

El matraz se calentó empleando un termostato con agitación magnética para llevar a sequedad el producto y mantener una agitación constante durante la reacción. El equipo además contó con un baño de hielo para no aumentar la temperatura de la reacción dado que esta es exotérmica.

### ETAPA INTERMEDIA:

Un reactor tubular de vidrio se situó sobre un horno eléctrico compuesto por dos resistencias conectadas en serie que se utilizan para calentar el reactor y así llevar a sequedad el producto. El horno es controlado por un medidor controlador

de temperatura marca ININ. Ensamblado al reactor se encuentra una camisa de vidrio para condensar los vapores de  $\text{NO}_2$ , el resto de los vapores son capturados en un tren de tres dilutores que contienen  $\text{H}_2\text{O}$  que reacciona con vapores de  $\text{NO}_2$ ; a la salida del último receptor se colocó un filtro de carbón activado, para atrapar vapores remanentes, después se colocó una bomba de vacío que es la encargada de activar todo el sistema de la reacción de oxidación.

#### ETAPA FINAL:

**EQUIPO DE OBTENCIÓN DE  $\text{TeO}_2$ .** Cada unidad de proceso lleva asociadas una serie de entradas y salidas de las corrientes de proceso, que consisten en los materiales que entran y salen de la unidad.

El diseño mecánico, comprende las partes estructurales de cada pieza, incluyendo espesores y tipos de material, esfuerzos o soportes de las piezas de construcción, estructura, previsiones para la instalación, mantenimiento de equipo, etc.

Con base en los requerimientos del proceso, e información preliminar se procedió a hacer varias alternativas de diseño. Se consideró para la selección la que presentó las siguientes características:

Funcionalidad de los componentes del equipo, factibilidad de maquinado del equipo en las instalaciones del ININ.

El diagrama de flujo para llevar a cabo la reacción de oxidación para la obtención de  $\text{TeO}_2$  se muestra en la Fig. 2.

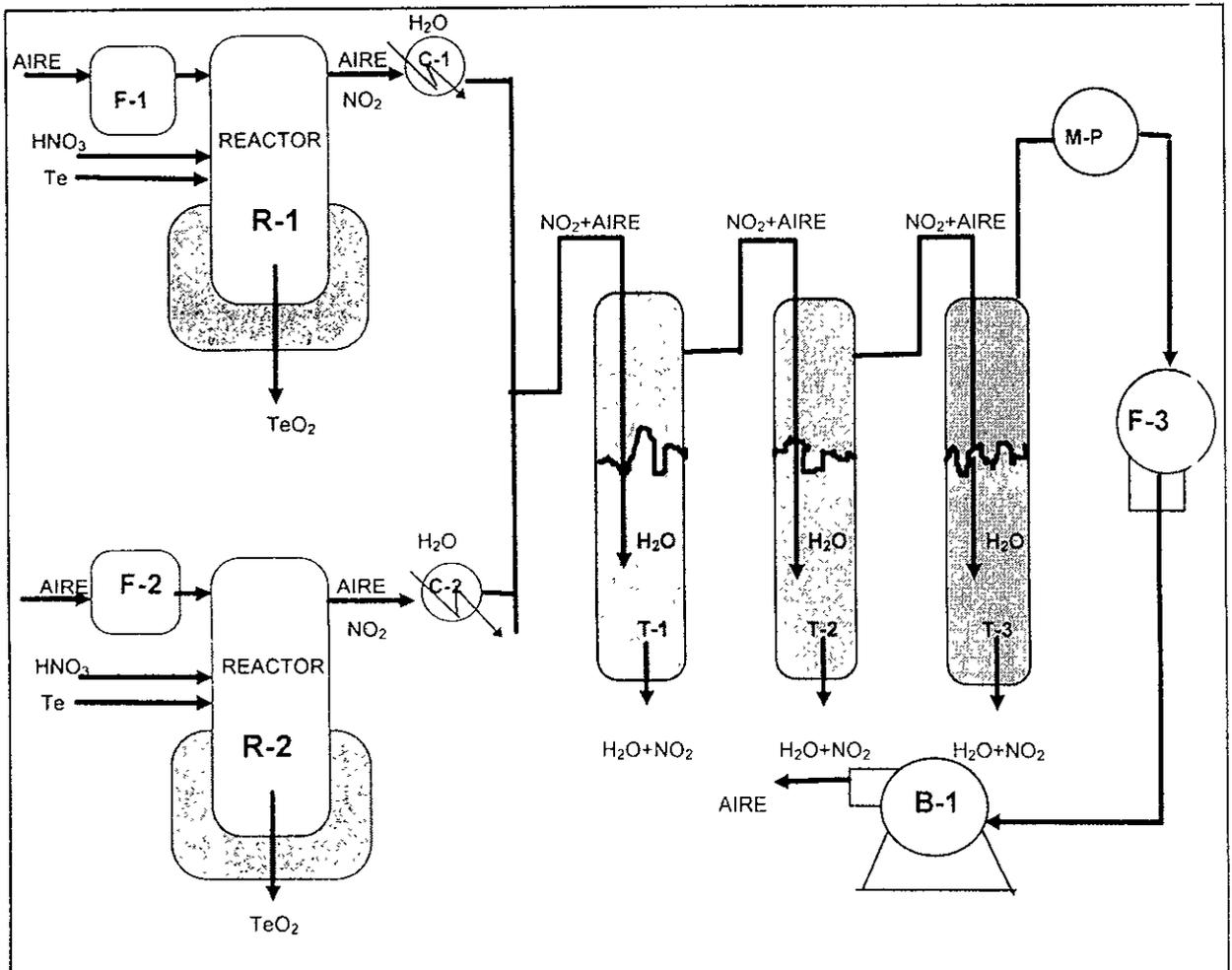


Fig. 2. Diagrama de flujo del proceso de obtención de  $\text{TeO}_2$

### 2.2.3. FUNCIONAMIENTO DEL EQUIPO DE PRODUCCIÓN DE $\text{TeO}_2$

Para abordar el estudio de cinética de la reacción de oxidación del Te con diferentes concentraciones de  $\text{HNO}_3$  en presencia de aire, se empleó el equipo montado (Figs. 3 y 4), el cual funciona de la siguiente manera : Se coloca el  $\text{HNO}_3$  requerido en el reactor de vidrio (1), se coloca la alimentación de agua al encamisado de enfriamiento (2), se introduce el Te por cada uno de los capilares de ebullición, desconectando previamente el alimentador de aire (3) para realizar esta operación, se conecta el alimentador de aire (4) se acciona el sistema de succión de aire (5) y el de enfriamiento en el refrigerante (6) <sup>(10)</sup>.

Cuando la succión de aire acarree los vapores emanados por la reacción éstos son enfriados en el refrigerante y después pasan a ser disueltos en la serie de receptores de  $\text{NO}_2$  (7). Al terminar el desprendimiento de vapores de  $\text{NO}_2$ , con el sistema de desplazamiento vertical (8) del equipo de proceso, se levanta el equipo hasta liberar el borde superior del encamisado de enfriamiento por medio de los rodamientos axiales (9), en este momento se drena el  $\text{HNO}_3$  sobrante (sin reaccionar) por medio de la llave de teflón que se encuentra en el reactor. Se filtra aire del medio ambiente por medio de un filtro de carbón activado y alúmina para la alimentación de aire.

Se deslizan los hornos eléctricos (10) con los rodamientos axiales y se desplaza el equipo hasta la superficie superior de las resistencias eléctricas por medio del sistema de desplazamiento vertical.

Por medio del medidor controlador (11) se eleva la temperatura a  $150\text{ }^\circ\text{C}$  hasta alcanzar la sequedad del producto de la reacción. En este momento se desconecta el sistema de succión de aire, el reflujo en el refrigerante y se deja enfriar el reactor a temperatura ambiente. Cuando el reactor esté frío el refrigerante y el alimentador de aire se deslizan por medio del sistema vertical de desplazamiento para así poder destapar el reactor y recolectar el producto obtenido.

El  $\text{TeO}_2$  es sometido a calentamiento en una estufa a  $100\text{ }^\circ\text{C}$  durante 20 h. Posteriormente se coloca en una mufla por 24 h a  $666\text{ }^\circ\text{C}$  con el fin de eliminar

impurezas. Finalmente se deja enfriar el  $\text{TeO}_2$  y después se pesa para efectuar los cálculos de eficiencia<sup>(13)</sup>.

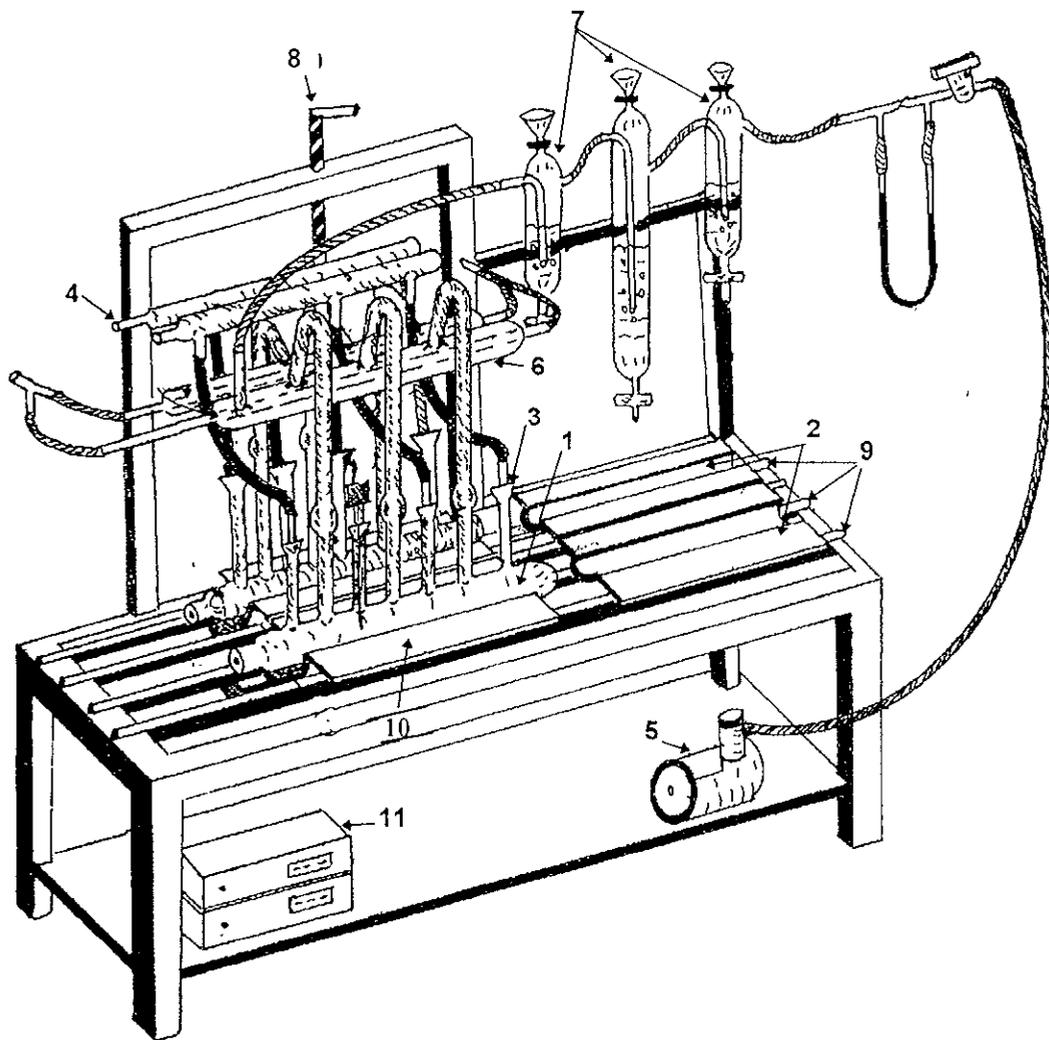


Fig. 3. Equipo de Producción de  $\text{TeO}_2$

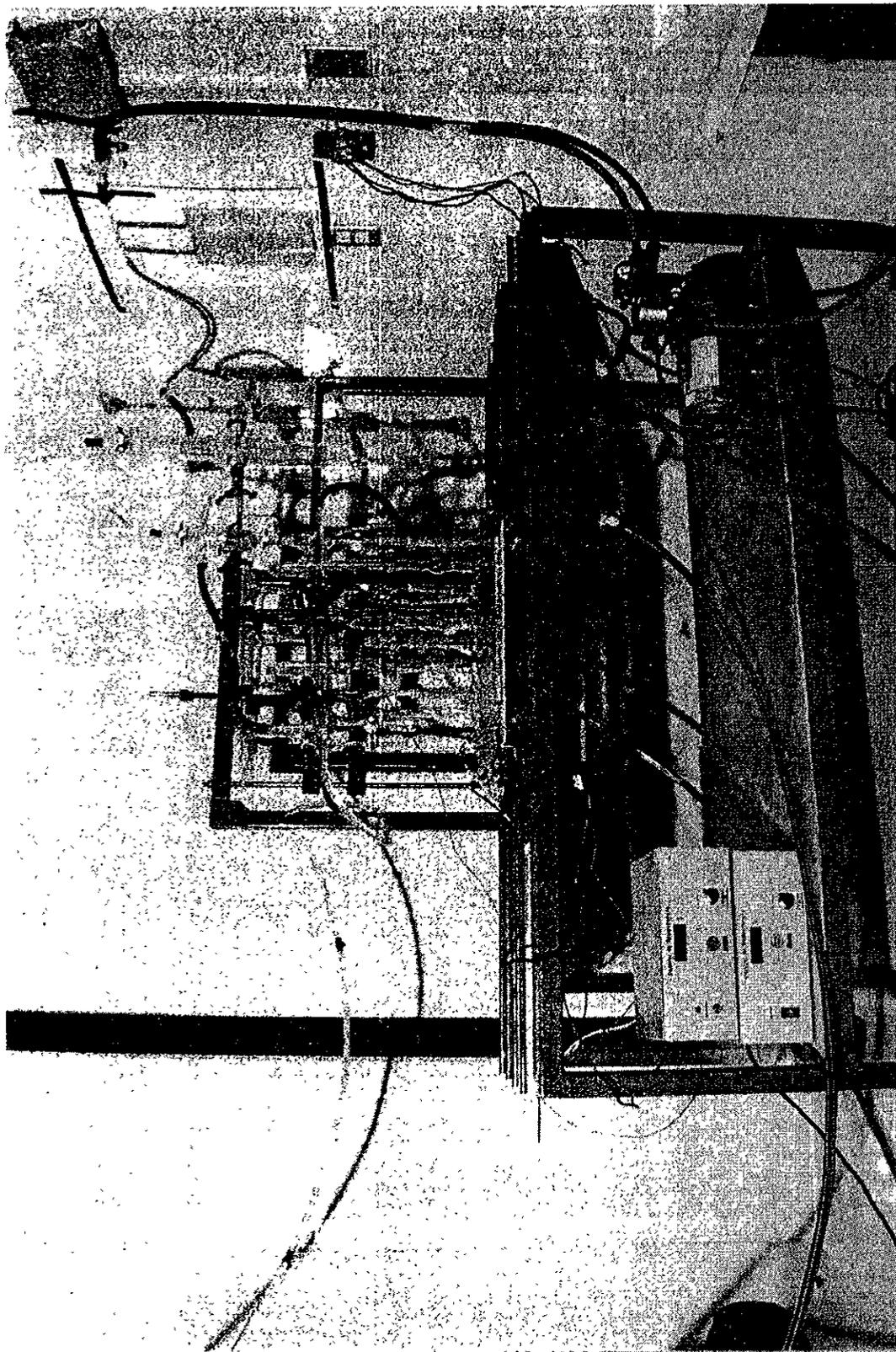


Fig. 4. Equipo de producción de TeO<sub>2</sub>.

## 2.2.4. CINETICA DEL PROCESO DE OBTENCION DE $\text{TeO}_2$ .<sup>(15)2</sup>

Los objetivos de este trabajo, es presentar el funcionamiento del equipo de obtención de  $\text{TeO}_2$  desarrollado en el ININ y el comportamiento cinético de la reacción que se lleva a cabo con el equipo, en base a 7 pruebas experimentales. Para controlar la reacción se mantuvieron constantes los parámetros: presión de reacción, flujo de aire, cantidades estequiométricas de los reactivos, se varió la temperatura para cada experimento, de esta manera se obtienen las velocidades de reacción y se aplicó la ecuación de Arrhenius para obtener la energía de activación. En base a lo anterior, se determina en estudios adicionales cual es la temperatura óptima para obtener el mejor producto ( $\text{TeO}_2$ ) realizando el análisis por microscopía electrónica, de tal forma que el producto final nos garantice bajo estos estudios cinéticos mejorar la producción de  $^{131}\text{I}$  una vez que sea irradiado el  $\text{TeO}_2$  en el reactor Nuclear del ININ.

### 2.2.4.1. Introducción

Después de que se desarrolló recientemente el proceso de obtención de  $^{131}\text{I}$ , ahora es necesario afinar cada una de la etapas del proceso, con el fin de aumentar la producción de  $^{131}\text{I}$ , mejorar las condiciones de operación del equipo, evitar posibles riesgos radiológicos y no radiológicos durante el proceso de obtención de  $^{131}\text{I}$  y mejorar los costos de producción.

El presente trabajo, específicamente trata de optimizar los parámetros del proceso de obtención de  $\text{TeO}_2$ , que sirve como materia prima para la obtención de  $^{131}\text{I}$ .

En las pruebas experimentales que se presentan, se mantuvieron constantes las cantidades estequiométricas de 10 g de Te que reaccionaron con 56 ml de  $\text{HNO}_3$  12N, y el flujo de aire de oxidación (presión de la reacción), pero se varió la temperatura en cada experimento en un rango de 25 °C, con el fin de determinar las constantes de la velocidad de reacción y energía de activación, de esta forma además de caracterizar la reacción, nos permite seleccionar la temperatura más

adecuada y obtener el  $\text{TeO}_2$  óptimo para la siguiente etapa del proceso de obtención de  $^{131}\text{I}$ , que es el sinterizado<sup>(4)</sup>.

#### 2.2.4.2. Acondicionamiento del equipo de obtención de $\text{TeO}_2$ .<sup>(14)</sup>

Con el fin de llevar a cabo el proceso de producción de  $\text{TeO}_2$ , fue necesario para cada prueba experimental, acondicionar todos los componentes del equipo de producción de siguiente manera ( ver Fig.3):

- LIMPIEZA DEL SISTEMA DE VIDRIO: Con el fin de evitar contaminación de impurezas durante la reacción, a todos los componentes de vidrio se le aplica una limpieza extrema con  $\text{H}_2\text{O}$ , detergente, acetona y finalmente se secaron en estufa a  $60\text{ }^\circ\text{C}$  por 4 horas.
- Se prueba el funcionamiento de la bomba de vacío (5) y los medidores controladores de temperatura (11) a través de dos termopares los cuales, se coloca uno en el centro del horno eléctrico (10) y otro dentro del reactor, (1) a fin de medir la temperatura de la reacción.
- Se calibra el manómetro de mercurio a diferentes presiones que corresponden a flujos de aire Fig. 5, de esta forma se selecciona 1.15 cm de presión (35 lt/min flujo de aire de oxidación de la reacción). Este flujo de aire se mantiene constante en los 7 experimentos.

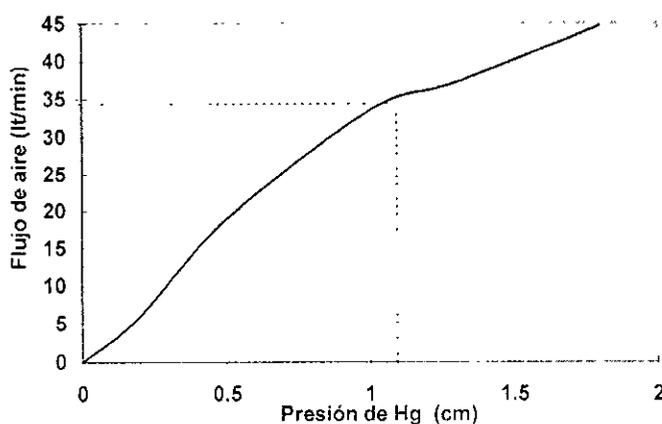


Fig. 5. Comportamiento del flujo de aire de oxidación para obtener  $\text{TeO}_2$

- d) Para evitar fugas en los ductos, aumento o disminución de temperatura en el sistema, se revisan los intercambiadores de calor de los sistemas mecánico y de vidrio, la temperatura de enfriamiento es de 5 °C.
- e) Para evitar problemas de desplazamiento de los hornos e intercambiadores de calor, se revisan los sistemas de desplazamiento vertical y horizontal.

#### **2.2.4.3. Proceso de obtención de TeO<sub>2</sub>, (ver Fig. 3)<sup>(13,14)</sup>.**

1. Con el sistema de desplazamiento vertical (10), se posiciona el reactor en los intercambiadores de calor.
2. Se accionan los intercambiadores de calor (de vidrio y mecánicos) (2 y 6), para dejar circular el agua de enfriamiento a 5 °C.
3. Se agrega H<sub>2</sub>O, a los tres dilutores ( 7 ) 80 ml al 1º, 300 ml al 2º y 200 ml al 3º con el fin de reaccionar con los gases de NO<sub>2</sub> y HNO<sub>3</sub> que provienen durante la reacción de obtención de TeO<sub>2</sub>
4. Se acciona la bomba de vacío (5), con el fin de hacer fluir aire de oxidación para completar la reacción de obtención de TeO<sub>2</sub>. El flujo de aire se mantiene constante en los 7 experimentos (punto 2.5.2 inciso c). En este momento el aire comienza a burbujear en los reactores y dilutores y una vez que comienza la reacción los gases de NO<sub>2</sub> y HNO<sub>3</sub> como productos de la reacción pasan a diluirse.
5. Se colocan 56 ml de HNO<sub>3</sub> en el reactor donde se lleva a cabo la reacción.
6. Se colocan en el reactor 10 g de Te y en este momento comienza la reacción, que es altamente exotérmica y se desprenden en forma violenta vapores de color café (NO<sub>2</sub> + HNO<sub>3</sub>).
7. Una vez que la reacción se lleva a cabo en forma estable, se coloca el reactor a través del sistema de desplazamiento vertical de los hornos eléctricos (10) , para llevar a cabo 7 experimentos a diferentes temperaturas.

No. de experimento.	1	2	3	4	5	6	7
Temperatura (°C)	100	125	150	175	200	225	250

**Tabla 3. Temperaturas empleadas para obtener TeO<sub>2</sub>.**

8. En los 7 experimentos, la reacción se llevó a cabo en un tiempo de 220 min y se tomaron alícuotas de 10 ml del dilutor No. 3 a diferentes intervalos de tiempo, con el fin de determinar por medio de un análisis las concentraciones de HNO<sub>3</sub> + NO<sub>2</sub> debido al punto 2.5.3-3.
9. Una vez terminada la reacción, se desactiva el sistema de vacío, el sistema de calentamiento, el flujo de aire y se procede a sacar el producto obtenido (TeO<sub>2</sub>) en el reactor (1).
10. El TeO<sub>2</sub> pasa a la etapa de secado en un horno tipo mufla a 660 °C, con el fin de eliminar impurezas de selenio y azufre.

#### **2.2.4.4. Análisis volumétrico**

Las alícuotas de cada experimento pasan a la etapa de análisis volumétrico, aplicando la técnica analítica de titulación ácido-base, para determinar el % de HNO<sub>3</sub> + NO<sub>2</sub> en función del tiempo de reacción (ver reacciones 1 y 2), esto, nos conduce a determinar las constantes de velocidad de reacción (k) y en base a la ecuación de Arrhenius se determina la energía de activación (E<sub>a</sub>)<sup>(16,17)</sup>.

#### **2.2.4.5. Determinación de la temperatura óptima de la reacción**

Dando continuidad a la primera etapa del proceso que consiste en la optimización de los parámetros de obtención de TeO<sub>2</sub> (materia prima para la obtención de <sup>131</sup>I), se realizaron los estudios de la cinética de la reacción

química de  $\text{HNO}_3$  (conc.) con telurio (Te) en presencia de aire para la obtención de  $\text{TeO}_2$ , los que se basaron en los 7 experimentos, en los cuales durante la reacción se mantuvieron constantes : la presión de reacción de 1.2 cm de Hg con un flujo de aire de oxidación de 35 l/min, 56 ml de  $\text{HNO}_3$ , 10 g de Te. Para determinar la temperatura óptima, ésta se varió en cada experimento desde 100 °C hasta 250 °C en intervalos de 25 °C. Bajo estos parámetros se estudió la reacción en el equipo ya mencionado (Fig. 3), construido especialmente para este caso y de este se desprende que la reacción es altamente exotérmica motivo que originó a dividir la reacción para su estudio en dos etapas para obtener las constantes de la velocidad de reacción (k), y las energías de activación.

También se muestra la determinación de la temperatura óptima para la obtención de  $\text{TeO}_2$ . Este producto se somete a las técnicas analíticas de microscopía electrónica y difracción de rayos X. Comparando los resultados podemos medir la porosidad óptima del sinterizado que nos permita capturar mejor al  $^{131}\text{I}$  durante el proceso de decaimiento de los isótopos del Te después de ser irradiado.<sup>(15)</sup>

Un objetivo de este trabajo es presentar un estudio de la reacción de obtención de  $\text{TeO}_2$  cuya finalidad es obtener la temperatura óptima de la reacción que nos permita producir  $\text{TeO}_2$  con características fisicoquímicas desde un punto de vista de concentración de los reactivos que intervienen en la reacción, así como las condiciones de temperatura y presión para obtener la mejor porosidad una vez que es sinterizado.<sup>(14)</sup>

Otro objetivo, es presentar y relacionar los parámetros óptimos que intervienen en la reacción del  $\text{TeO}_2$  : temperatura de reacción, presión, velocidad de reacción y la energía de activación, con estos parámetros podemos obtener la cantidad óptima de  $^{131}\text{I}$  una vez que el  $\text{TeO}_2$  es irradiado.

Las muestras fueron divididas en tres partes, una parte fue irradiada en el reactor nuclear, la otra fue sinterizada a 733 °C y la última fue pulverizada. Los resultados analíticos de cada muestra se sometieron a estudios comparativos y de esta

forma se llegó a determinar la temperatura óptima en la obtención de  $\text{TeO}_2$  para la producción de  $^{131}\text{I}$ .<sup>(9,10)</sup>

**a). Procedimiento de sinterización:**

- Se toman 7 muestras de 10 g cada una de  $\text{TeO}_2$  obtenido a temperaturas de 100, 125, 150, 175, 200, 225 y 250 °C.
- Con el fin de eliminar impurezas de azufre, selenio y otros contaminantes, las 7 muestras se someten a 666 °C durante 24 horas en un horno tipo mufla.
- Con el fin de llevar a cabo un estudio comparativo de los análisis de la muestra, se toman de cada muestra 8.5 g del  $\text{TeO}_2$  y se sinterizan a temperatura de 733 °C por un tiempo de 3 min en un horno tubular (Fig. 6). Una parte del sinterizado se analiza por microscopía electrónica , otra parte se irradia. El resto de la muestra (1.5 g ) pulverizada se analiza por microscopía electrónica y difracción de rayos X :

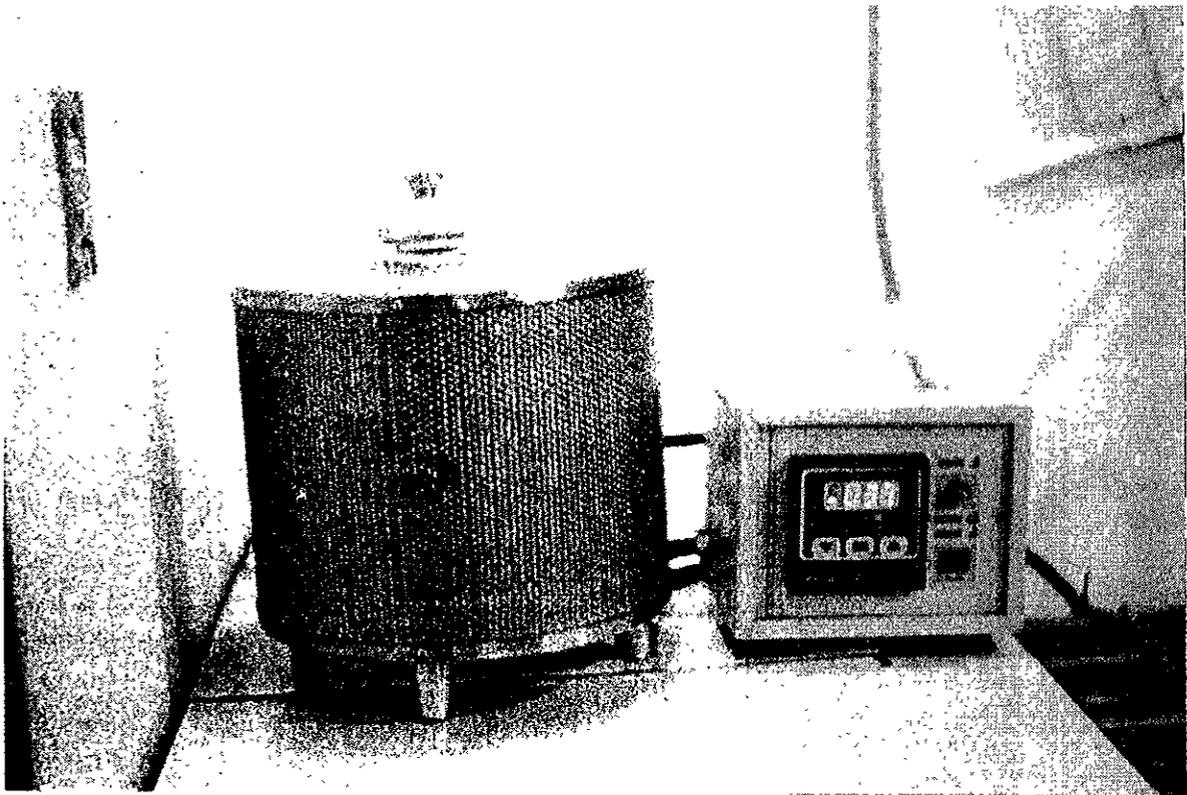


Fig. 6. Horno tubular para sinterizar muestras de  $\text{TeO}_2$

## **b). Estudios analíticos del TeO<sub>2</sub>.**

Una vez obtenido el TeO<sub>2</sub>, se llevarán a cabo técnicas analíticas, con el fin de elevar al máximo la calidad del producto, estas son:

- a). Difracción de rayos X, para determinar la pureza y características cristalinas de grano.
- b). Microscopía electrónica, para determinar forma y tamaño de grano, composición cuantitativa y cualitativa del TeO<sub>2</sub>.
- c). Se realizarán estudios analíticos, determinando las características fisicoquímicas como son : densidad, color, dureza, punto de fusión y punto de ebullición.

## **c). Estudios de sinterizado del TeO<sub>2</sub>.<sup>(14,18)</sup>**

Una vez obtenido el TeO<sub>2</sub> aplicando los mejores parámetros fisicoquímicos (ver punto 2.5.3 ), pasa al proceso de sinterizado, donde se aplicará el siguiente estudio :

El proceso de sinterizado del TeO<sub>2</sub>, consiste en pesar la cantidad deseada de TeO<sub>2</sub>, que es destinada para obtener el <sup>131</sup>I y se introduce en un tubo de cuarzo, de tal forma que este tubo tenga la geometría deseada del lingote del sinterizado que va a irradiarse

El tubo se introduce a un horno eléctrico, diseñado especialmente para sinterizar TeO<sub>2</sub> (Fig. 6) a una temperatura por arriba de la temperatura media de fusión del TeO<sub>2</sub>, es decir, mayor que  $732/2 = 366$  °C.

El objetivo del sinterizado, es crear un lingote de TeO<sub>2</sub>, en el que se generen poros internos que tengan un área en función de la temperatura, tiempo y masa del TeO<sub>2</sub> durante el proceso de sinterizado, a fin de cumplir los siguientes fines:

1. El objetivo de los poros, es crear áreas internas adecuadas que nos permitan atrapar al  $^{131}\text{I}$  durante el proceso de decaimiento de  $^{131}\text{Te}$  y  $^{131}\text{Te}^m$  a  $^{131}\text{I}$  en forma de gas.
2. La geometría del lingote de sinterizado, nos permite introducirlo en cápsulas de aluminio que cuentan con una geometría adecuada para ser colocadas en una posición de irradiación en el reactor nuclear, de tal forma que se aproveche la incidencia del máximo flujo de neutrones en la masa del  $\text{TeO}_2$  a irradiar.

La calidad del sinterizado, se logra de acuerdo al tamaño de grano del  $\text{TeO}_2$  y al tamaño de poros internos, (Fig. 7), aquí, se puede apreciar que la unión de granos, se logra con el aumento de temperatura y esto ocasiona una transferencia mínima de materia de grano a grano, permitiendo más que una compactación de granos, una transferencia de masa, que ocasiona enlaces bien definidos entre las moléculas de  $\text{TeO}_2$ , dando como resultado un lingote muy compacto de  $\text{TeO}_2$ .

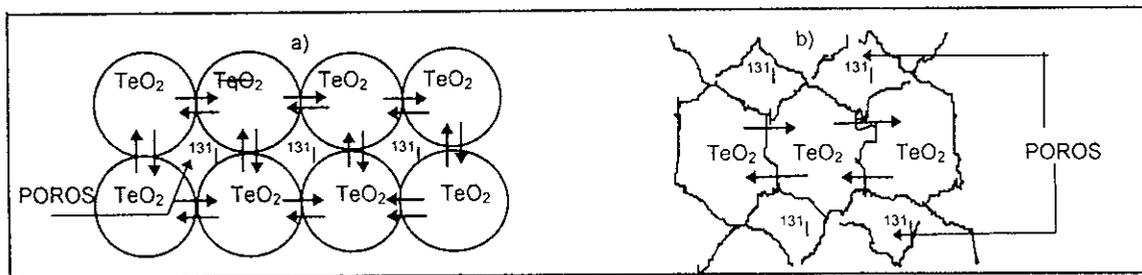


Fig. 7. Sinterizado de  $\text{TeO}_2$ : a) Etapa inicial, b) Etapa final

Por lo anterior, se realizarán pruebas necesarias al  $\text{TeO}_2$  sinterizado, variando tiempo, temperatura y masa con el fin de obtener una porosidad y tamaño de grano adecuados que nos permitan la transferencia óptima de  $^{131}\text{I}$  a través de la frontera grano hacia poros con superficie máxima, para que sea atrapado el  $^{131}\text{I}$  con más eficiencia.

A cada muestra sinterizada, se le aplicarán pruebas de irradiación en el reactor nuclear, variando masa de  $\text{TeO}_2$ , tiempo de irradiación y flujo de neutrones, con el fin de optimizar estos parámetros para obtener la máxima cantidad de  $^{131}\text{I}$ .

## CAPITULO 3

### OPTIMIZACION DE LOS PARAMETROS DE SINTERIZACION DEL TeO<sub>2</sub> PARA OBTENER <sup>131</sup>I

#### 3.1. INTRODUCCION

Una vez que se seleccionó la calidad del grano de TeO<sub>2</sub> en base a la optimización de los parámetros que intervienen en la reacción de oxidación del HNO<sub>3</sub> con el Te (Capítulo 2), el TeO<sub>2</sub> pasa a la etapa de sinterización con el fin de obtener un producto que nos permita capturar y almacenar en su porosidad al <sup>131</sup>I producido durante el proceso de irradiación y decaimiento de los isótopos del <sup>130m</sup>Te y <sup>130</sup>Te, en las mejores condiciones

Por esto, es necesario optimizar también los parámetros de sinterizado bajo las condiciones de tiempo y temperatura más adecuados y después pasar al proceso de producción de <sup>131</sup>I. A fin de lograr el mejor rendimiento posible y las mejores condiciones de proceso, se han establecido las siguientes condiciones:

- a) La forma geométrica del sinterizado (lingote en forma cilíndrica), que nos facilita la manipulación y su encapsulado en aluminio para ser irradiado en las posiciones adecuadas en el reactor nuclear.

- b) El  $\text{TeO}_2$  sinterizado atrapa con mucha facilidad en sus poros al  $^{131}\text{I}$  como producto del decaimiento del  $\text{TeO}_2$  previamente irradiado.
- c) Una vez irradiado, el  $\text{TeO}_2$  pasa a la etapa de desencapsulado y su constitución como sinterizado nos facilita la manipulación en general, evitando la contaminación de las áreas donde se encuentre, sobre todo durante el proceso de destilación del  $^{131}\text{I}$ . Por lo tanto, se evita la contaminación de las celdas calientes donde se encuentra el proceso de separación radioquímica.
- d) Durante el proceso de destilación, el  $\text{TeO}_2$  irradiado se deposita en una cápsula de cuarzo y ésta dentro de un horno, produciéndose un sistema cerrado por donde circula una corriente de aire que sirve como acarreador. Bajo estas condiciones de trabajo, si no estuviera sinterizado el  $\text{TeO}_2$  sino sólo pulverizado, ocasionaría grandes problemas de dispersión en todo el sistema y por consiguiente el proceso de obtención de  $^{131}\text{I}$  sería imposible.

### 3.2. CONDICIONES PARA SINTERIZAR EL $\text{TeO}_2$

Para llevar a cabo la optimización del tiempo y temperatura de sinterizado se utiliza el  $\text{TeO}_2$  obtenido mediante la reacción (ver cap. 2.2), utilizando el horno (ver cap. 2.5.5) de tal forma que en cada proceso se mantuvo la temperatura  $\pm 4^\circ\text{C}$  en atmósfera natural. De esta forma se llevaron a cabo los experimentos (Tabla 4), tomando cada vez 10 g de  $\text{TeO}_2$  pulverizado para sinterizar variando los tiempos y temperaturas.

TEMPERATURA °C	TIEMPO DE SINTERIZADO			
	min			
450	3.5	5.0	7.5	10.0
500	3.5	5.0	7.5	10.0
550	3.5	5.0	7.5	10.0
600	3.5	5.0	7.5	10.0
650	3.5	5.0	7.5	10.0
700	3.5	5.0	7.5	10.0
732	3.5	5.0	7.5	10.0

Tabla 4. Sinterizado de  $\text{TeO}_2$  en función del tiempo y temperatura

### 3.3. PROCEDIMIENTO DE SINTERIZADO DE MUESTRAS DE TeO<sub>2</sub>.

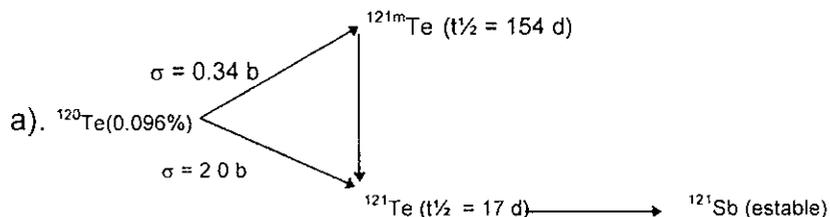
- Se toman 10 g de TeO<sub>2</sub> pulverizado, previamente seco a 660 °C por 24 h en un horno tipo mufla, para eliminar impurezas.
- El TeO<sub>2</sub> se deposita en un tubo de cuarzo previamente esterilizado para no contaminarlo. Se toma con unas pinzas y se introduce en el horno (ver cap. 2.5.5) bajo los parámetros seleccionados (tabla 4).
- Una vez sinterizado se del horno con las pinzas y se coloca boca abajo y el lingote tiende a desprenderse de las paredes del tubo de cuarzo tomando la forma geométrica del tubo y de esta forma se deposita en el lugar limpio deseado.

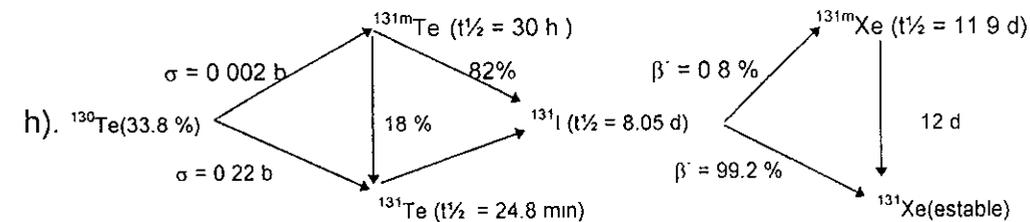
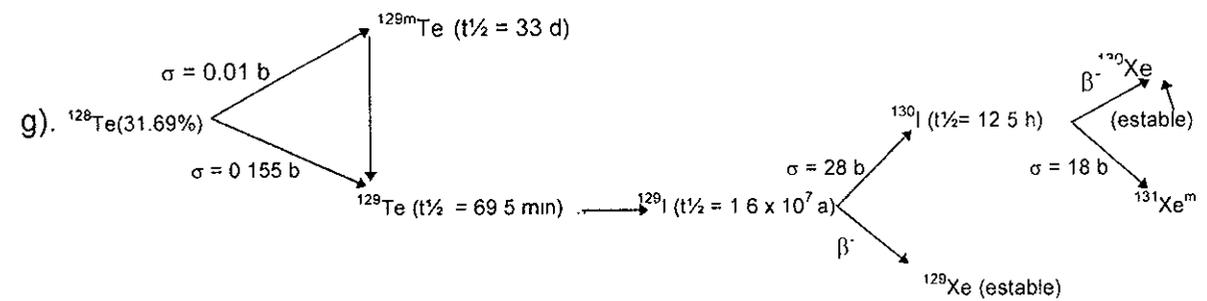
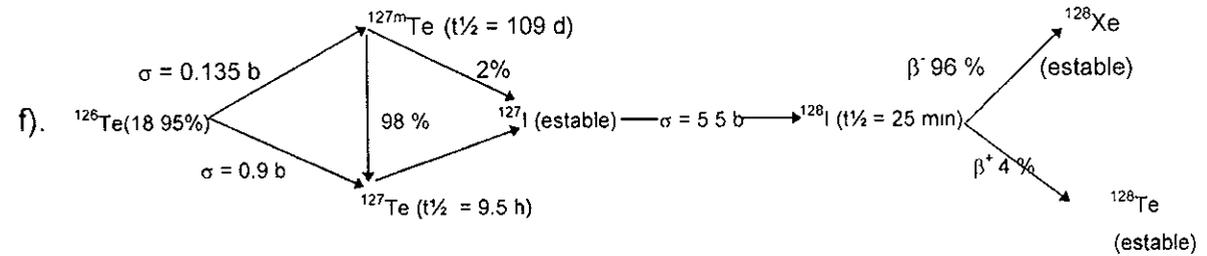
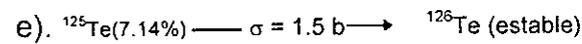
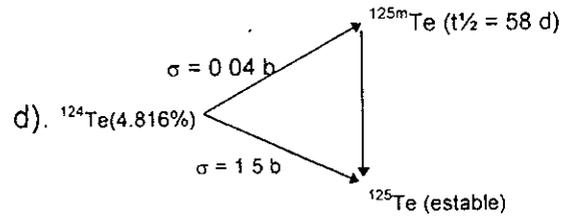
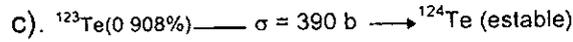
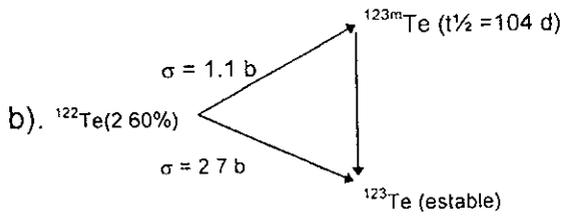
El lingote se divide en dos partes, una para realizar el estudio por microscopía electrónica para realizar los análisis cuantitativo y cualitativo y determinar la porosidad y la otra parte es irradiada para determinar la cantidad de <sup>131</sup>I atrapado en los poros.

### 3.4. IRRADIACIÓN DE MUESTRAS DE TeO<sub>2</sub>.

Los isótopos formados como productos de reacciones nucleares del tipo (n, γ) no pueden ser separados químicamente. Sin embargo, una separación es posible, por métodos químicos o físicos, cuando un radioisótopo formado decae por emisión de neutrones o positrones a un radioisótopo de otro elemento. Tal es el caso del <sup>131</sup>Te y <sup>131m</sup>Te para la formación del <sup>131</sup>I.

La irradiación del telurio natural, con neutrones térmicos, conduce a los siguientes isótopos.<sup>(20)</sup>





Con la irradiación del telurio natural se forman por lo tanto 3 isótopos del yodo:  $^{127}\text{I}$  que es estable,  $^{129}\text{I}$  con vida media muy larga ( $1.6 \times 10^7$  años), se transforma fácilmente en  $^{130}\text{I}$  por la reacción  $(n, \gamma)$  y el  $^{131}\text{I}$  con vida media de 8.05 días que es el radioisótopo más comúnmente utilizado en varios tipos de trabajo (ver cap. I, punto 1.2.7).<sup>(50.51)</sup>

Las muestras sinterizadas de cada experimento pasan al proceso de irradiación en el reactor nuclear Triga Mark III, todas ellas bajo los mismos parámetros de irradiación (Tabla 5)

CONDICIONES DE IRRADIACION DEL $\text{TeO}_2$ SINTERIZADO	
Masa	1 g de $\text{TeO}_2$
Posición de irradiación	Tubo seco
Tiempo de irradiación	2.5 h
Flujo de neutrones	$6.53 \times 10^{12}$ n/cm <sup>2</sup> -seg

Tabla 5

La finalidad de irradiar bajo las mismas condiciones todas las muestras, es de realizar estudios comparativos de la actividad obtenida, ya que su porosidad es diferente como consecuencia del proceso de sinterizado. Con estos estudios se selecciona la muestra de actividad más alta, es decir la que tiene la mejor capacidad de retención del  $^{131}\text{I}$  en función de los parámetros de tiempo y temperatura en los cuales fue sinterizada, y por consiguiente estos serán los parámetros óptimos de sinterización.

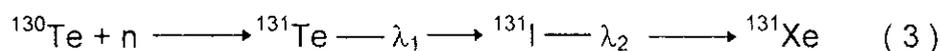
## CAPITULO 4

### ESTUDIOS DE REACCIONES NUCLEARES EN LA OBTENCION DE $^{131}\text{I}$ POR DESTILACION SECA.

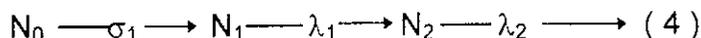
#### 4.1. DETERMINACION DE LAS CONDICIONES OPTIMAS DE IRRADIACION DEL $\text{TeO}_2$ EN EL REACTOR NUCLEAR TRIGA MARK III.

Entre los radioisótopos existen muchos ejemplos de cadenas de decaimiento, uno de ellos se da en la obtención de  $^{131}\text{I}$ , considerado como hijo radiactivo que es producto del decaimiento de padres también radiactivos, que son el  $^{131}\text{Te}$  y  $^{131m}\text{Te}$ . Tomando en cuenta la reacción de obtención de  $^{131}\text{I}$  (1, 2), donde la sección eficaz para la formación de  $^{131}\text{Te}^m$  con vida media de 30 h es de 0.04 barns y es muy pequeña comparada con la sección eficaz del  $^{131}\text{Te}$  con vida media de 24.8 m que es 0.22 barns.<sup>(21)</sup>

Por lo tanto, para el cálculo de la actividad producida de  $^{131}\text{I}$ , debemos considerar el  $^{131}\text{I}$  formado por el decaimiento del  $^{131}\text{Te}$  y  $^{131m}\text{Te}$ . Para el caso de la producción de  $^{131}\text{I}$  por el decaimiento del  $^{131}\text{Te}$  se tiene:



Para poder desarrollar el balance de energía, esquemáticamente la reacción anterior adquiere la forma:



Para el cálculo de la actividad producida de  $^{131}\text{I}$  por la irradiación del  $\text{TeO}_2$ , desarrollamos la ecuación que nos da la actividad producida en un hijo radiactivo, formado por el decaimiento de un padre radiactivo, de la siguiente manera:

Tomando como base esquemáticamente la reacción (4), calculamos  $N_1$

$$\frac{dN_1}{dt} = N_0\sigma\phi - N_1\lambda_1 \quad (1)$$

Esta expresión nos indica la variación del número de núcleos radiactivos que se producen con respecto al tiempo. Esto es, el número de núcleos iniciales estables ( $N_0$ ) con determinada sección eficaz ( $\sigma$ ), que son bombardeados con un flujo de neutrones ( $\phi$ ), durante el proceso de irradiación en el reactor nuclear, menos el número de núcleos radiactivos ( $N_1$ ) que fueron formados, pero que han decaído de acuerdo a su constante de decaimiento  $\lambda_1$ .

La ecuación (1), se puede también representar de la siguiente manera:

$$\frac{dN_1}{dt} + N_1\lambda_1 = N_0\sigma\phi \quad (2)$$

Multiplicando ambos miembros de la ecuación por  $e^{\lambda_1 t}$

$$\frac{dN_1}{dt} e^{\lambda_1 t} + N_1\lambda_1 e^{\lambda_1 t} = N_0\sigma\phi e^{\lambda_1 t}$$

$$\frac{d}{dt}(N_1 e^{\lambda_1 t}) = N_0\sigma\phi e^{\lambda_1 t}$$

Integrando y aplicando límites desde  $N = 0$  hasta  $N = N_1$  y  $t = 0$  hasta  $t = t$

$$\int_0^{N_1} d(N_1 e^{\lambda_1 t}) = \int_0^t N_0 \sigma \phi e^{\lambda_1 t} dt$$

$$N_1 e^{\lambda_1 t} = N_0 \sigma \phi \int_0^t e^{\lambda_1 t} dt$$

multiplicando la integral por  $\lambda_1$  y dividiendo por  $\lambda_1$

$$N_1 e^{\lambda_1 t} = N_0 \sigma \phi \int_0^t e^{\lambda_1 t} \frac{\lambda_1}{\lambda_1} dt$$

$$N_1 e^{\lambda_1 t} = \frac{N_0 \sigma \phi}{\lambda_1} \int_0^t e^{\lambda_1 t} \lambda_1 dt$$

$$N_1 e^{\lambda_1 t} = \frac{N_0 \sigma \phi}{\lambda_1} [e^{\lambda_1 t}]_0^t = \frac{N_0 \sigma \phi}{\lambda_1} [e^{\lambda_1 t} - 1]$$

despejando  $N_1$

$$N_1 = \frac{N_0 \sigma \phi}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t})$$

$$N_1 \lambda_1 = N_0 \sigma \phi (1 - e^{-\lambda_1 t})$$

donde  $N_1 \lambda_1 = A =$  Actividad de la muestra

por lo tanto:

$$A = N_1 \lambda_1 = N_0 \sigma \phi (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad (3)$$

Otra forma de interpretar la ecuación (3), es de la siguiente manera:

$$A = N_1 \lambda_1 = N_0 \sigma \phi - N_0 \sigma \phi e^{-\lambda_1 t}$$

Donde:  $A$  = La actividad alcanzada

$N_0 \sigma \phi$  = Número de núcleos radiactivos que se crean durante la irradiación

$N_0 \sigma \phi e^{-\lambda_1 t}$  = Número de núcleos radiactivos que permanecen en la muestra durante la irradiación

$N_0 \sigma \phi - N_0 \sigma \phi e^{-\lambda_1 t}$  = Número de núcleos radiactivos que decaen durante la irradiación en un tiempo  $t$

De tal forma que:

$(1 - e^{-\lambda_1 t}) = f(t)$ , que resulta como producto de la factorización (3), se le llama: "factor de saturación", y este varía desde:  $0 < f(t) < 1$

Entonces, cuando  $f(t) \rightarrow 0$ ,  $t \rightarrow 0$

y cuando  $f(t) \rightarrow 1$ ,  $t \rightarrow \infty$

De tal forma que, cuando  $t = 6t_{1/2}$  (6 vidas medias) tenemos:

$$e^{-\lambda_1 t} = e^{\frac{-0.693}{t_{1/2}}(6t_{1/2})} = e^{-0.693(6)} = e^{-4.158} = 0.0156$$

por lo tanto:

$$f(t) = (1 - e^{-\lambda_1 t}) = 0.984$$

Este valor (0.984), nos indica, el porcentaje de actividad máximo de saturación que se obtiene al irradiar una muestra en un tiempo equivalente a 6 vidas medias de radioisótopo que se desea obtener.

Podemos calcular la actividad en mCi/g de  $\text{TeO}_2$  a irradiar en el reactor nuclear, haciendo un análisis dimensional de los parámetros que intervienen en la ecuación (3), de tal forma que podemos realizar las operaciones con las constantes para obtener la siguiente ecuación:<sup>(37)</sup>

$$A = \frac{1.63 \times 10^8 \sigma \phi a}{M} (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad (4)$$

donde:

a = Fracción del isótopo del  $^{131}\text{Te}$  en una muestra de Te normal.

M = Masa atómica del Te normal = 127.6 g/mol.

$\phi$  = Flujo de neutrones durante la irradiación en el reactor nuclear = n/ cm<sup>2</sup>seg.

$\lambda_1$  = Constante de decaimiento del  $^{131}\text{Te}$  = 1.6764 h<sup>-1</sup>.

t = Tiempo de irradiación en el reactor nuclear en h.

$\sigma$  = Sección eficaz de  $^{130}\text{Te}$ ( $^{131}\text{Te}$ ) = 0.22 barns.

A = Actividad del  $^{131}\text{Te}$  mCi.

$$1.63 \times 10^{-8} = \frac{(1 \times 10^{-24})(6.023 \times 10^{23})}{(3.7 \times 10^7)}$$

$$1 \text{ barns} = 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

No. de Abogado =  $6.023 \times 10^{23}$  moléculas/mol.

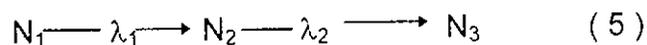
1 mCi (milicurie) =  $3.7 \times 10^7$  dps (desintegraciones por segundo)

Para el cálculo de la actividad del  $^{131\text{m}}\text{Te}$ , se emplea la misma ecuación (4), lógicamente sustituyendo su respectiva constante de decaimiento ( $\lambda = 0.0231 \text{ h}^{-1}$ ) y sección eficaz = 0.04 barns.

## 4.2. DETERMINACION DEL TIEMPO DE ENFRIAMIENTO DEL $\text{TeO}_2$ IRRADIADO PARA LA DESTILACIÓN DEL $^{131}\text{I}$ .<sup>(22,61,62)</sup>

Una vez que el  $\text{TeO}_2$  es irradiado dentro de las cápsulas de aluminio en el reactor nuclear, debe dejarse enfriar 48 horas. A este lapso se le llama **tiempo de enfriamiento**, el cual sirve para dejar decaer los demás radioisótopos del telurio que tienen la vida media más corta que el  $^{131}\text{I}$ . También para dejar decaer la cápsula de aluminio, y un lastre ya sea de plomo o de aluminio que contiene la cápsula de aluminio en el fondo con el fin de sumergirla en la piscina de reactor. Después de este tiempo de enfriamiento, el  $\text{TeO}_2$  irradiado pasa a la siguiente etapa, que es el proceso de separación del isótopo de  $^{131}\text{I}$ , a través del proceso de destilación por vía seca.

Para determinar el tiempo de enfriamiento, consideremos la formación de un radioisótopo secundario por el decaimiento de un radioisótopo primario.



a) Cálculo de  $N_1$  ( $^{131}\text{Te}$ ): Si a un tiempo dado  $t_0$  existen  $N_1$  átomos radiactivos, y  $dN_1$  de estos átomos decaen en un tiempo  $dt$ , tenemos que :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (5)$$

resolviendo ( 5 ), nos da la expresión matemática de la ley del decaimiento radiactivo:

$$N_1 = N_0 e^{-\lambda_1 t} \quad (6)$$

b). Cálculo de  $N_2$ : Se toma en cuenta la cantidad de átomos que se formaron, a partir de  $\lambda_1 N_1$  menos los átomos que decayeron  $\lambda_2 N_2$ , entonces:

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (7)$$

Resolviendo ( 7 ) para  $t = 0$ ,  $N_2 = 0$

$$N_2 = \frac{\lambda_1 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (8)$$

Cuando:  $\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2$

$$N_1 = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} N_2 \quad (9)$$

sustituyendo ( 6 ) y ( 8 ) en ( 9 )

$$N_0 e^{-\lambda_1 t} = \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \frac{\lambda_1 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (10)$$

Despejando el tiempo t

$$t = \frac{\ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (11)$$

Para comprobar que el tiempo t, es el tiempo máximo (tiempo óptimo), en que se alcanza la máxima actividad de  $^{131}\text{I}$  al estar decayendo del isótopo de  $^{131}\text{Te}$  y formando y decayendo el isótopo de  $^{131}\text{I}$ , se aplica el método matemático de máximos y mínimos a la expresión ( 8 )

Se deriva la expresión ( 8 ) con respecto al tiempo t.

$$A_2 = \frac{dN_2}{dt} = \frac{d\left[\frac{\lambda_2 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})\right]}{dt} \quad (12)$$

$$A_2 = \frac{dN_2}{dt} = \frac{\lambda_2 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} (-\lambda_1 e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 e^{-\lambda_2 t}) \quad (13)$$

igualando (13) a 0 y despejando t se obtiene:<sup>(24)</sup>

$$t = \frac{\ln\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)}{\lambda_2 - \lambda_1} \quad (14)$$

Sacando la segunda derivada de la expresión ( 13 ) se obtiene:

$$\frac{d^2 N_2}{dt^2} = \frac{\lambda_2 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} (\lambda_1^2 e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2^2 e^{-\lambda_2 t}) \quad (15)$$

Sustituyendo ( 14 ) en la expresión ( 15 ), y para cuando  $t_{1/2} \gg t_{2/2}$  y  $\lambda_1 \ll \lambda_2$  se tiene

$$\frac{d^2 N_2}{dt^2} < 0 \quad (16)$$

Por lo tanto se cumplen los conceptos matemáticos, y el tiempo es el óptimo para alcanzar la máxima actividad de  $^{131}\text{I}$  por decaimiento de  $^{131}\text{Te}$ .

### 4.3. DETERMINACION DE PARAMETROS OPTIMOS PARA LA DESTILACION DEL $^{131}\text{I}$ DEL $\text{TeO}_2$

#### 4.3.1. Equipo de destilación de $^{131}\text{I}$ por vía seca.<sup>(8, 11, 18)</sup>

Este equipo, se compone básicamente de una celda caliente (para manejo de material radiactivo), que cuenta con un diseño especial y dentro de ella, tres sistemas interconectados: el sistema de control de destilación, el sistema de destilación y el sistema eléctrico.

##### FUNCIONAMIENTO DEL EQUIPO (figuras 8 y 10):

Antes de comenzar el proceso de destilación, se verifica el buen funcionamiento del sistema de extracción de aire, el sistema de control de destilación y sistema de vacío. El  $\text{TeO}_2$  irradiado, (Figura 10), se coloca dentro de la cápsula de cuarzo (36), que se encuentra a su vez dentro del horno (12) de proceso siguiendo el procedimiento: colocar el  $\text{TeO}_2$  sinterizado en una charola de cuarzo de 10 cm. de larga (22), la cual a su vez, se coloca en el elevador de aluminio (15) y es elevada al nivel de la tapa esmerilada de cuarzo (16) por medio del manipulador (25-A). Bajar el brazo manipulador (21) hasta tocar el elevador de aluminio y recorrer la charola hasta introducirla en el platillo (17). Bajar el elevador de aluminio (24) con el manipulador (25-A) para permitir el deslizamiento de la tapa esmerilada de cuarzo que se encuentra dentro del horno. La muestra de  $\text{TeO}_2$  se encuentra dentro del horno. Se proveen los receptores (26) con las soluciones: receptor A con  $\text{NaOH}$  con cierta concentración que determinará el resultado de este trabajo y al receptor B con una solución reguladora de  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  y  $\text{Na}_2\text{HCO}_3$  donde se seleccionarán las concentraciones y la relación en volumen. Se activa el horno (12), aumentando la temperatura en incrementos de 100 °C, y así sucesivamente hasta mantenerla en la temperatura óptima de destilación. La bomba de vacío (42) es activada (Figura 10), a la temperatura del horno de 400 °C, ya que a esta temperatura comienza la separación del  $^{131}\text{I}$  de la matriz del blanco (14). Se activa el sistema de extracción de la celda de proceso (donde se encuentra todo el

equipo de destilación, manteniendo una presión negativa en el interior de la celda de 0.5 cm de agua, con el fin de evitar fugas de material radiactivo al medio ambiente. El tiempo de destilación depende de la actividad que se desee obtener, tomando en cuenta la actividad original del blanco. Terminada la destilación se baja a 0 °C al interruptor de temperatura (se desactiva el horno) y se desactiva la bomba de vacío, pero el sistema de aire continúa encendido durante 0.5 h. Se procede a abrir la válvula inferior del receptor (26-A) con el fin de recuperar el  $^{131}\text{I}$  en forma de  $\text{Na}^{131}\text{I}$  en solución recolectándolo en frascos color ámbar de 15 ml. Cada frasco que contiene el  $\text{Na}^{131}\text{I}$ , sale de la celda de producción en un contenedor de plomo y es conducido a una cámara de ionización, para medir la actividad obtenida.

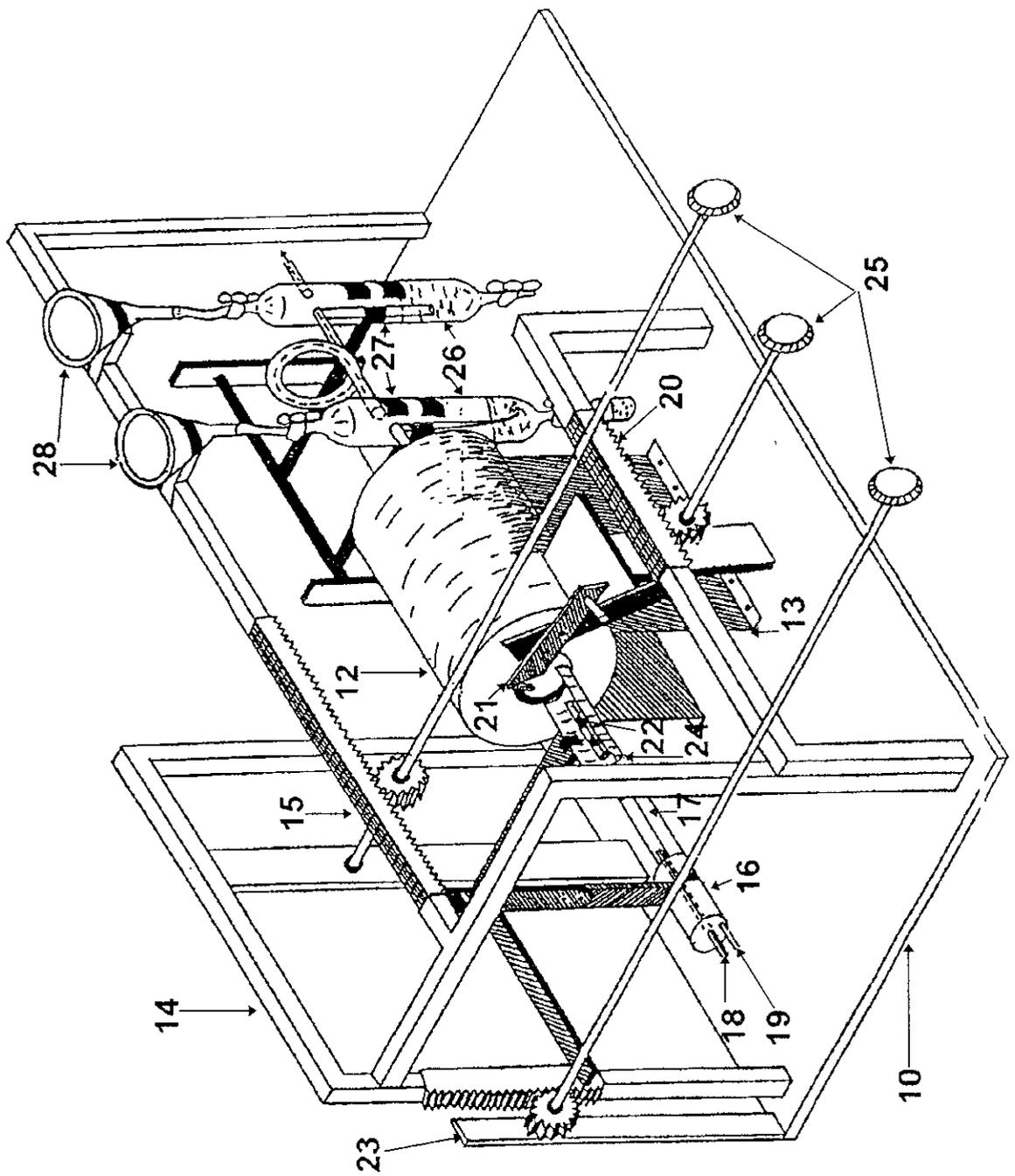


Fig. 8. Sistema de control de destilación.

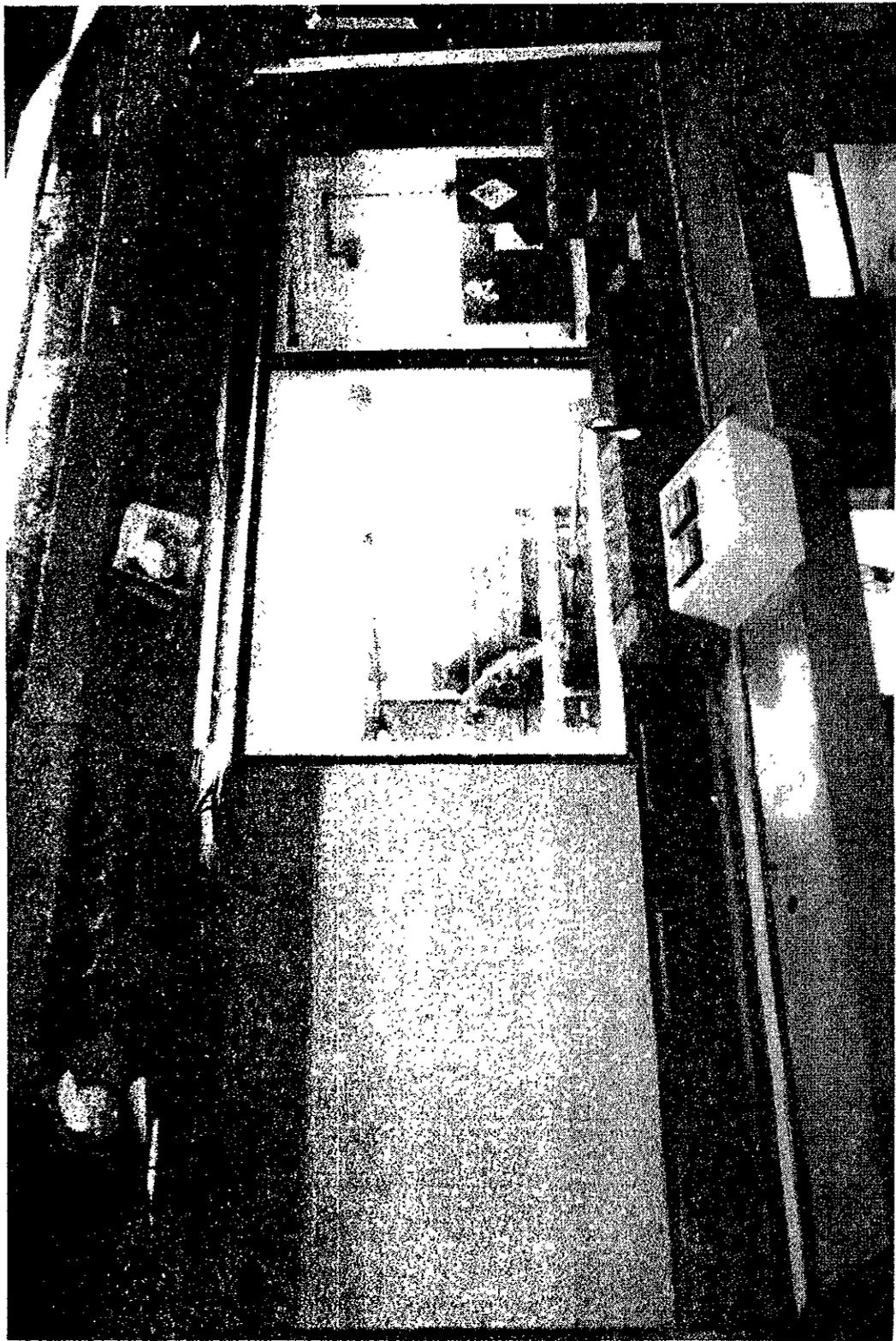


Fig. 9. Celdas calientes para el proceso de destilación de  $^{131}\text{I}$ .

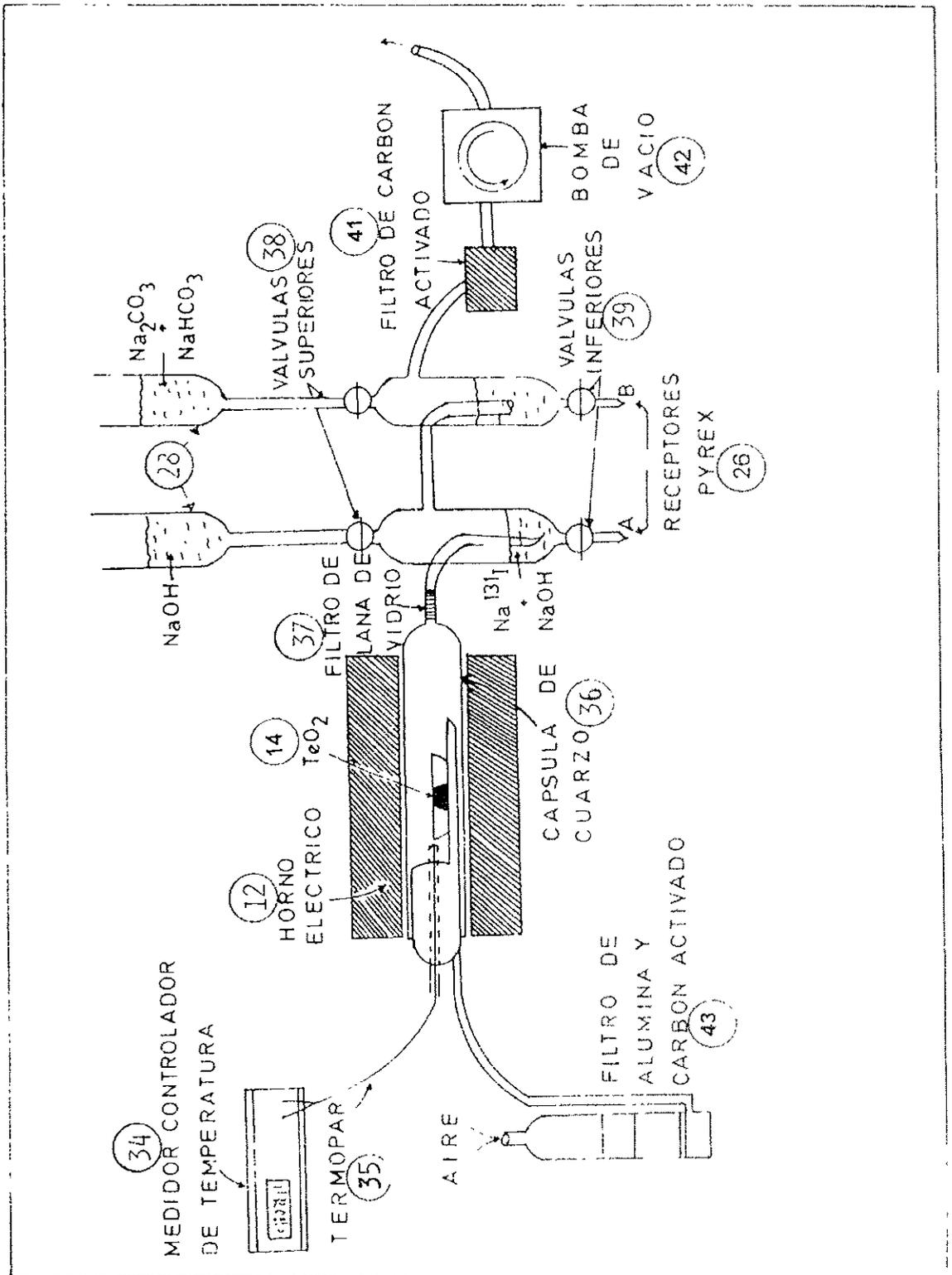


Fig. 10. Sistema de destilación de <sup>131</sup>I.

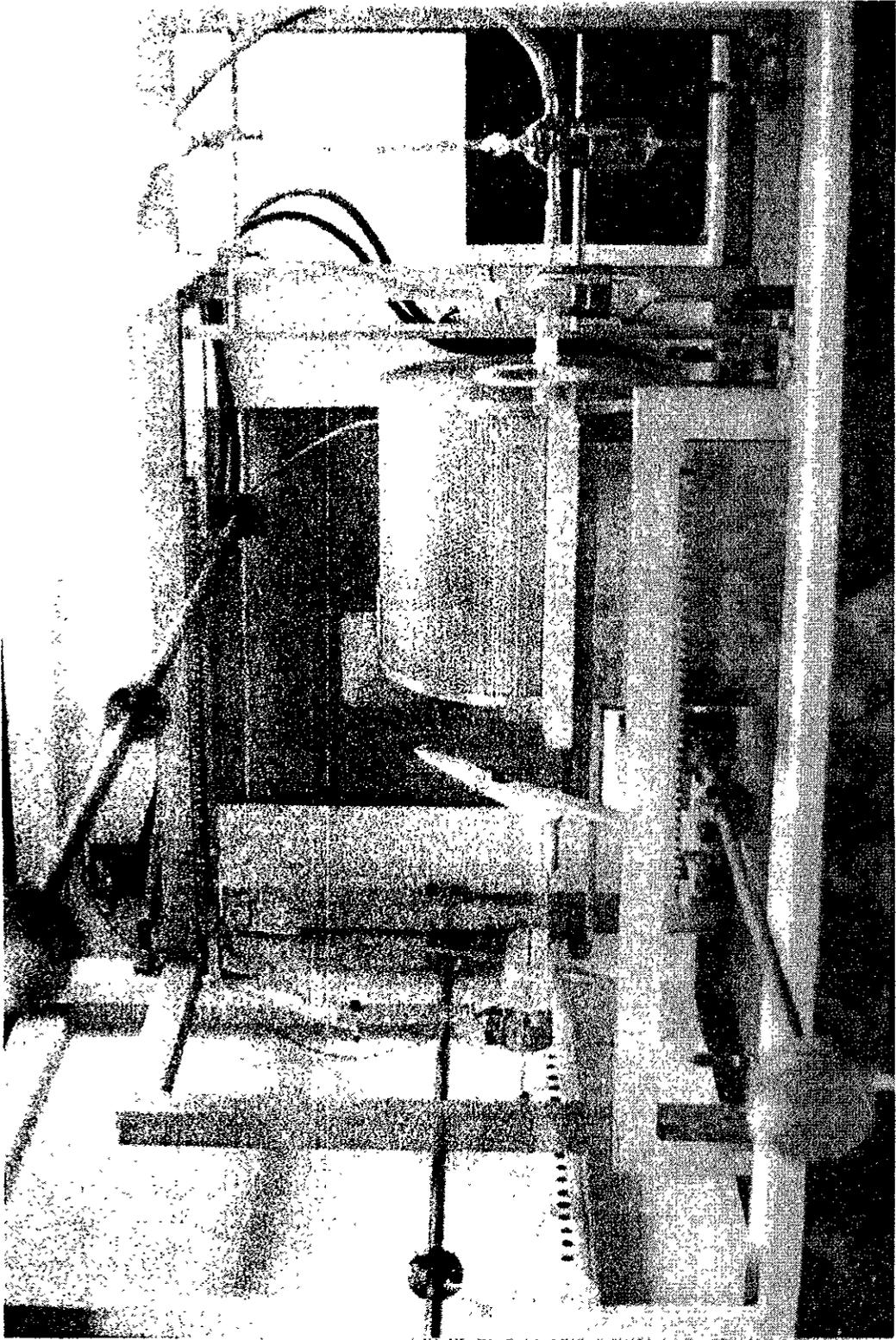


Fig. 11. Sistema de destilación de  $^{131}\text{I}$

## CAPITULO 5

### DISCUSION Y RESULTADOS

#### 5.1. ESTUDIOS ANALITICOS DEL $\text{TeO}_2$ .<sup>(15, 16,17)</sup>

El equipo de producción de  $\text{TeO}_2$  ( Figs. 3, 4), nos permite una producción rutinaria hasta 50 g/proceso en cada reactor. De acuerdo a los experimentos realizados el tiempo de cada proceso es de 220 min, y el tiempo de secado del producto es de 24 horas, de esta forma para la producción de  $\text{TeO}_2$  se tienen las siguientes etapas:

- a ) Acondicionamiento del equipo.
- b.) Proceso de producción de  $\text{TeO}_2$ .
- c.) Secado de  $\text{TeO}_2$ .
- d.) Análisis de producto.

Durante el transcurso de cada experimento, el sistema de reacción se mantuvo suficientemente agitado con la finalidad de que la oxidación fuera completa en

todos los granos del Te. Así también, la temperatura de experimentación se mantuvo en cada experimento  $\pm 3$  °C del valor especificado. En los 7 experimentos se obtuvo un rendimiento del 99 % debido a que se trata de un sistema cerrado. Después al producto se le aplicó un análisis volumétrico (ver punto 2.5.4). El NO<sub>2</sub> reacciona con el H<sub>2</sub>O y se produce HNO<sub>3</sub>, por esta razón, para determinar el % de HNO<sub>3</sub> se titularon alícuotas de cada experimento con NaOH .001 N y se aplicó la expresión:

$$\frac{\text{m.e.q.} \times \text{ml.} \times \text{N} \times 100}{P} = \% \text{HNO}_3 \quad (17)$$

donde: m.e.q. miliequivalentes de HNO<sub>3</sub>.

ml ml de NaOH gastados en la titulación

N Normalidad del NaOH.

P Peso de la muestra de HNO<sub>3</sub>.

De esta forma se graficó el % de HNO<sub>3</sub> vs Tiempo de reacción para los 7 experimentos con el fin de comparar resultados (Fig. 12).

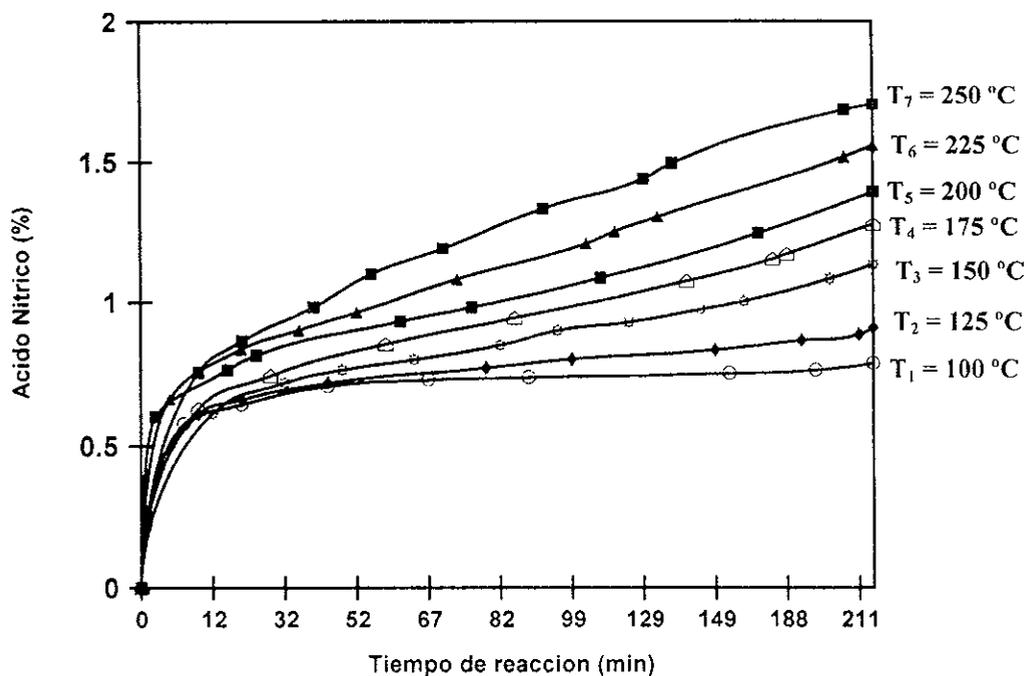


Fig. 12. Comportamiento de la reacción de formación de TeO<sub>2</sub>

## 5.2. DETERMINACION DE LAS CONSTANTES DE LA VELOCIDAD DE REACCION.<sup>(15,16)</sup>

Se puede observar (Fig. 12), que en los primeros 12 minutos, la reacción sigue un comportamiento similar en los 7 experimentos. Esto es debido a que la reacción es altamente exotérmica, por lo que al principio se libera mucho calor y el transcurso de la reacción no depende de la temperatura que se le aplica artificialmente con el sistema de calentamiento, por lo que en este intervalo de tiempo la velocidad de reacción (k), adquiere valores similares en todos los casos. Por consiguiente la producción de TeO<sub>2</sub> bajo estas condiciones es aproximadamente igual en los primeros 12 min. En este periodo de tiempo, en el que la velocidad de reacción (k), es independiente de la temperatura que se le aplica, alcanza un valor máximo para cualquier experimento donde el valor de las constantes adquiere también valores similares (Tabla 6).

T °C	100	125	150	175	200	225	250
k min <sup>-1</sup>	.063	.061	.051	.063	.059	.076	.075

Tabla 6. Constantes de la velocidad de reacción en la 1ª etapa de reacción.

Después de los primeros 12 minutos de iniciada la reacción, ésta se desarrolla más lentamente, pero ahora sí depende de la temperatura que se le aplique, podemos decir que la velocidad de reacción (k), a partir de este momento aumenta conforme aumenta la temperatura (Tabla 7).

T °C	100	125	150	175	200	225	250
kx10 <sup>-4</sup> min <sup>-1</sup>	7.38	12.7	25.0	30.8	34.1	37.4	45.0

Tabla 7. Constantes de la velocidad de reacción en la 2ª etapa de reacción.

### 5.3. DETERMINACION DE LA ENERGIA DE ACTIVACION DE LA REACCION.

Por otro lado, las características cristalinas con las que debe contar el  $\text{TeO}_2$  para la producción de  $^{131}\text{I}$  de forma más eficiente dependen del tamaño y calidad de grano, por lo que es necesario tener en cuenta el exceso de energía, que deben poseer las moléculas de Te, en comparación con su energía media a una temperatura dada para que puedan participar en la reacción química para la obtención de  $\text{TeO}_2$ , a esto se le llama "Energía de Activación". Por lo anterior, en la Fig. 13, se grafican las constantes de velocidad de reacción (k) con respecto al inverso de la temperatura de reacción de cada experimento ( $1/T$ ), aquí podemos observar una pendiente negativa con la cual podemos obtener las Energías de Activación para las dos etapas de reacción<sup>(17)</sup>.

1ª Etapa : Primeros 12 minutos  $E_{a1}$ .

2ª Etapa : Después de los 12 minutos  $E_{a2}$ .

Aplicando al Ecuación de Arrhenius :

$$\log k = \log c - \frac{E_a}{2.303R} \frac{1}{T} \quad (18)$$

donde :

k, Constante de la velocidad de reacción.

C, Intersección en la ordenada.

$E_a$ , Energía de activación.

T, Temperatura de la reacción.

R, Constante de los gases.

La pendiente de esta recta es :

$$-\frac{E_a}{2.303R} = m \quad (19)$$

Graficando los valores de las tablas 6 y 7 obtenemos las gráficas (Fig. 13), para obtener la energía de activación en las dos etapas.

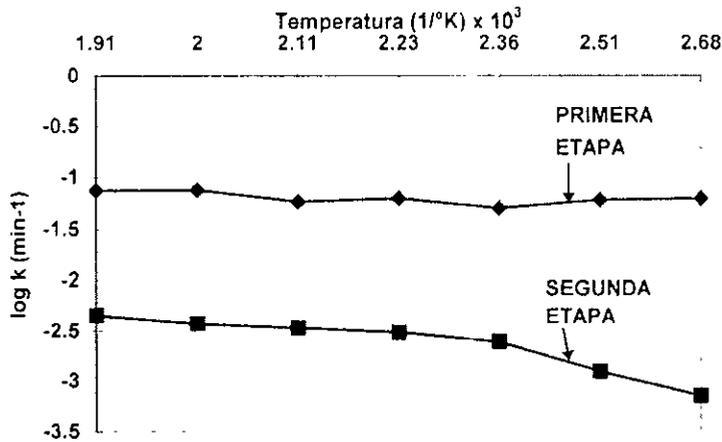


Fig. 13. Gráficas comparativas de las dos etapas de reacción de oxidación del Te.

En la Fig. 13, se muestra la dependencia del logaritmo de la constante de la velocidad de reacción con respecto al recíproco de la temperatura absoluta para la reacción de obtención de TeO<sub>2</sub>. En la tabla 8, se muestran para las dos etapas de reacción los valores del log c y sus energía de activación.

ETAPA	log c (min <sup>-1</sup> )	Energía de activación (Ea) (Cal/g mol)
1	-1.0	457.81
2	-0.316	4700.85

Tabla 8. Datos comparativos de la oxidación del Te con HNO<sub>3</sub> + Aire.

Las dependencias de las constantes de las velocidades de reacción respecto de las temperaturas, entonces pueden ser expresadas por las siguientes ecuaciones<sup>(4)</sup>:

$$1^{\text{a}} \text{ Etapa de reacción } k = 1.0e^{-457.81/RT} \quad (20)$$

$$2^{\text{a}} \text{ Etapa de reacción } k = 0.316e^{-4700.8/RT} \quad (21)$$

## 5.4. DETERMINACION DE LA TEMPERATURA OPTIMA DE LA REACCION

### 5.4.1. Irradiación de las muestras sinterizadas

Con el fin de determinar la cantidad de  $^{131}\text{I}$  obtenido por el decaimiento del Te, se irradian 7 muestras de 1 g de  $\text{TeO}_2$  cada una en el reactor nuclear, con un flujo de neutrones de  $1.65 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>seg, tiempo de 3.5 h, los resultados se muestran en la tabla 9.

No. de muestra	1	2	3	4	5	6	7
Temperatura de obtención del $\text{TeO}_2$ (°C)	100	125	150	175	200	225	250
Actividad ( $\mu\text{Ci}$ ) $^{131}\text{Te}$ , $^{131\text{m}}\text{Te}$	84	85	72	79	69	74	43

Tabla No. 9. Comportamiento de la temperatura de obtención del  $\text{TeO}_2$  y su actividad obtenida.

### 5.4.2. Análisis por difracción de rayos X.

Este análisis se realiza con el fin de identificar el compuesto, su pureza y sus características cristalinas, para esto, se empleó un equipo de difracción de rayos X. En la Fig. 14, se muestran las imágenes de las 7 muestras de  $\text{TeO}_2$  y se puede apreciar que tiene alta pureza y además alto grado de cristalinidad, los resultados analíticos muestran el cristal en forma tetragonal caracterizado como paratelerita.

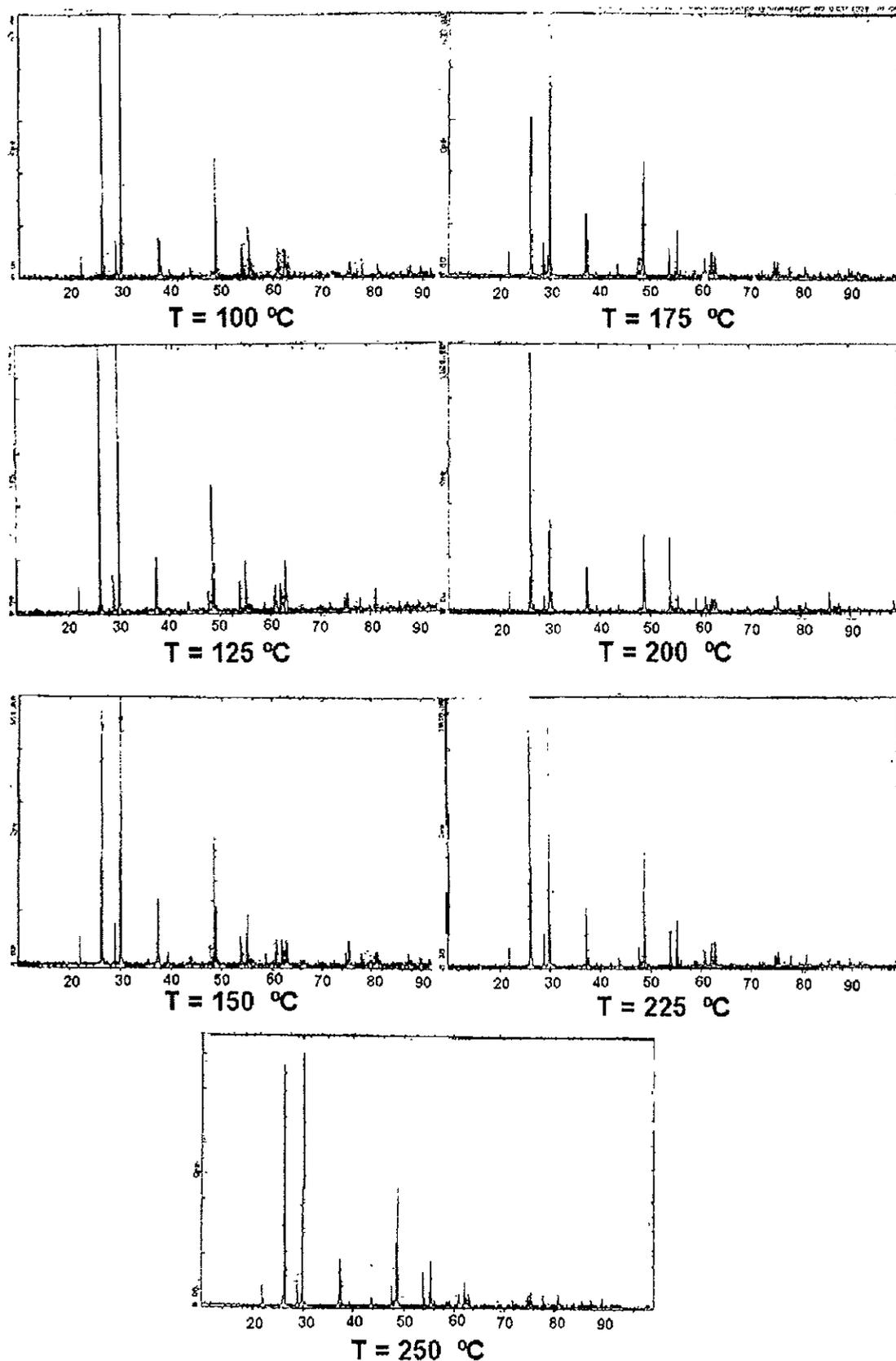


Fig. 14. Difracción de Rayos X del TeO<sub>2</sub> pulverizado obtenido a diferentes temperaturas

### 5.4.3. Análisis del $\text{TeO}_2$ pulverizado por microscopía electrónica.

Una vez que se extrae el  $\text{TeO}_2$  del sistema de reacción del Te con el  $\text{HNO}_3$ , éste, contiene impurezas de  $\text{HNO}_3$  y Te que no reaccionaron, además partículas de S, Se y otras impurezas, por lo que se extrae en forma de agrupamientos de granos en forma de tubérculos de 10  $\mu\text{m}$  aprox. (Fig. 15).

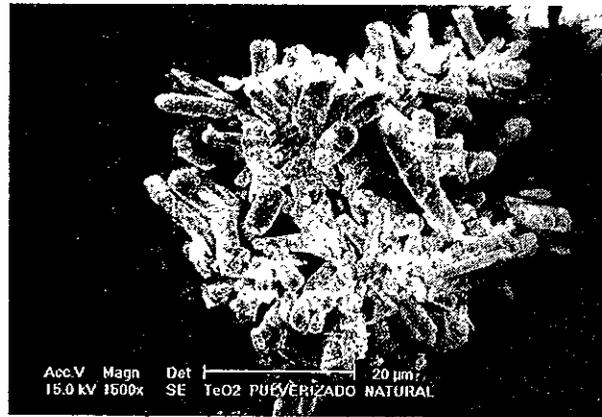


Fig. 15.  $\text{TeO}_2$  antes del proceso de secado y eliminación de impurezas

Una vez que el  $\text{TeO}_2$  se somete al proceso de secado y eliminación de impurezas a 660  $^{\circ}\text{C}$  se pulveriza en un mortero, de esta forma se analizan las 7 muestras, en todas ellas existen evidencias de predominar granos que muestran forma tetraédrica, en la Fig 16 se muestra la forma y dimensiones del grano, las cuales fueron tomadas de la primera imagen de la Fig.17

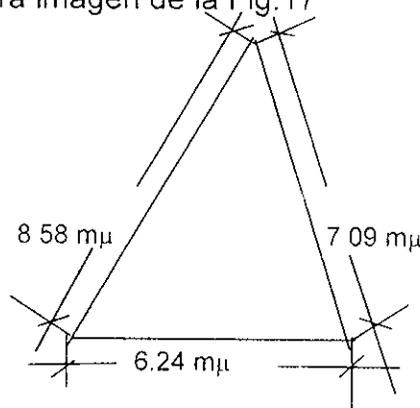
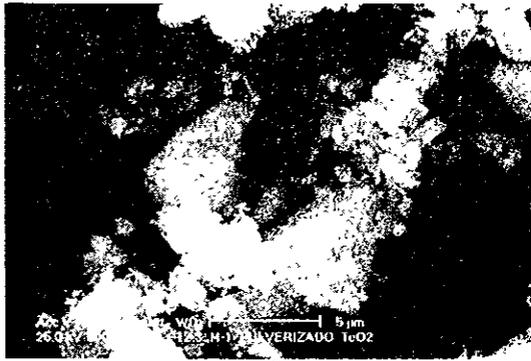


Fig.16. Forma de grano de  $\text{TeO}_2$  pulverizado

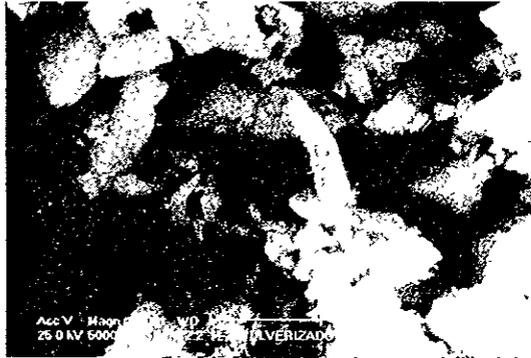
En la Fig. 17, se muestra el  $\text{TeO}_2$  pulverizado y se aprecia la forma de grano que se obtiene del proceso de obtención del  $\text{TeO}_2$  a diferentes temperaturas. En las primeras 4 imágenes ( Temperaturas de 100, 125, 150, y 175  $^{\circ}\text{C}$ ) se observan más claramente estas geometrías que en las 3 últimas.



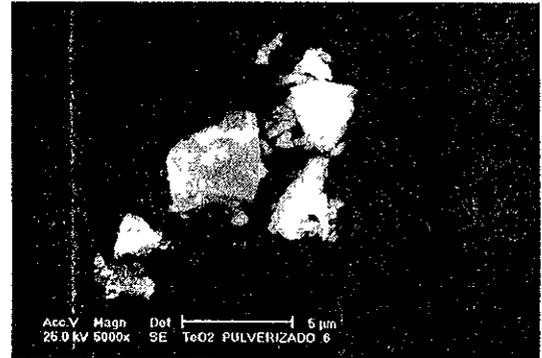
$T = 100\text{ }^{\circ}\text{C}$



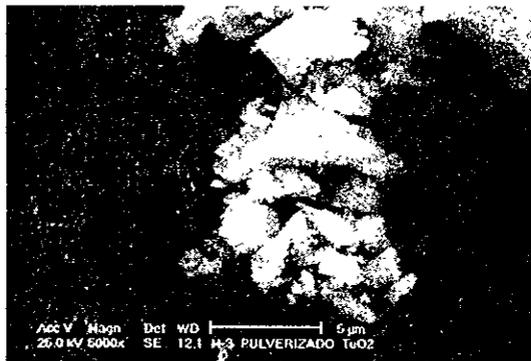
$T = 200\text{ }^{\circ}\text{C}$



$T = 125\text{ }^{\circ}\text{C}$



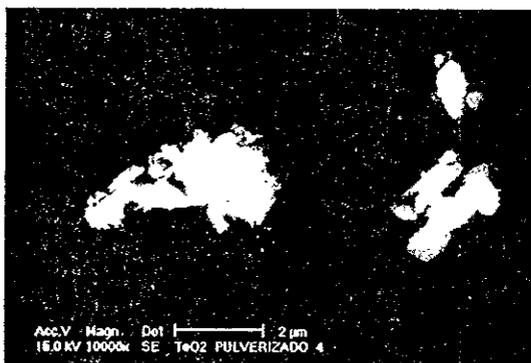
$T = 225\text{ }^{\circ}\text{C}$



$T = 150\text{ }^{\circ}\text{C}$



$T = 250\text{ }^{\circ}\text{C}$



$T = 175\text{ }^{\circ}\text{C}$

Fig. 17.  $\text{TeO}_2$  pulverizado obtenido a diferentes temperaturas

Analizando los espectros obtenidos por microscopía electrónica del  $\text{TeO}_2$  pulverizado (Fig. 18), se observan las señales de oxígeno y telurio con energías características de las capas o niveles electrónicos de sus átomos y las energías de las subcapas del Te. Podemos observar que el oxígeno se encuentra en 0.6 keV y el telurio en 3.7 keV con sus subniveles en 3.3, 4.1, 4.4, 4.6 y 4.8 keV. También se observa que las señales del oxígeno son inferiores a las del telurio.

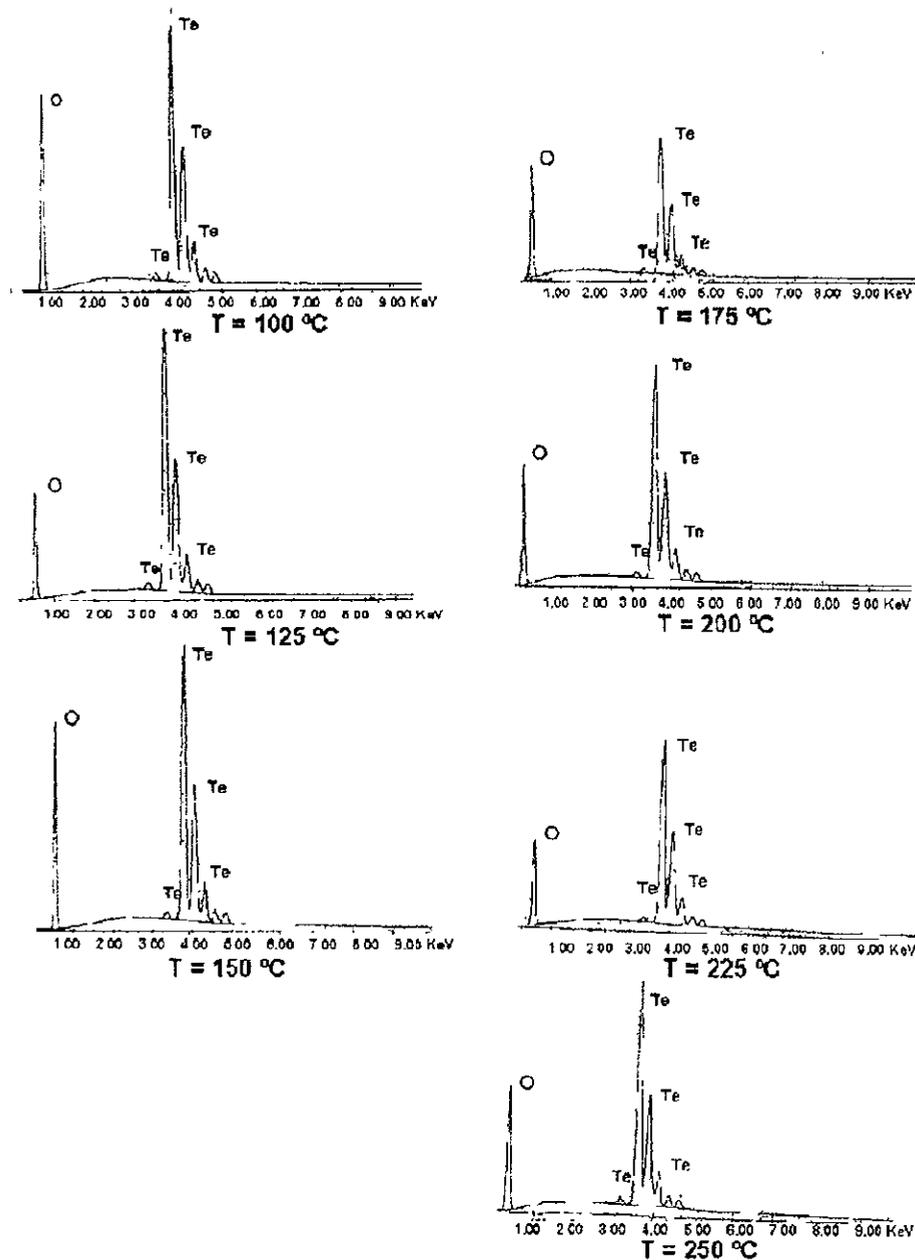


Fig. 18. Microscopía Electrónica del  $\text{TeO}_2$  pulverizado a diferentes temperaturas

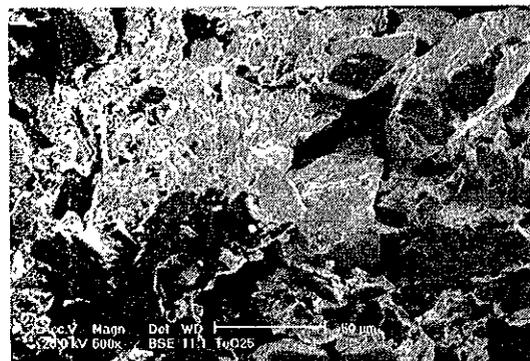
#### **5.4.4. Análisis del TeO<sub>2</sub> sinterizado por microscopía electrónica**

Con el fin de observar la variación de la porosidad del TeO<sub>2</sub> sinterizado, que anteriormente fue obtenido a diferentes temperaturas las 7 muestras se analizaron por la técnica analítica de microscopía electrónica.

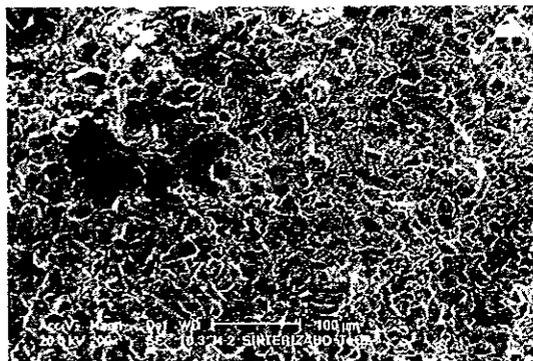
En la Fig. 19, se muestran las 7 imágenes, en las que se observan los poros y cavidades en forma de cavernas. Las primeras 3 imágenes fueron tomadas con 200 aumentos y en la primera de ellas se observa la mayor porosidad. Las otras 4 imágenes fueron tomadas con 500 aumentos.



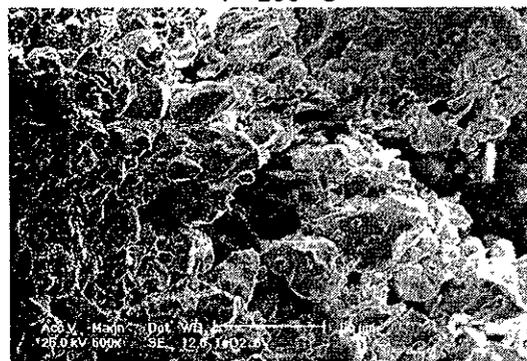
$T=100\text{ }^{\circ}\text{C}$



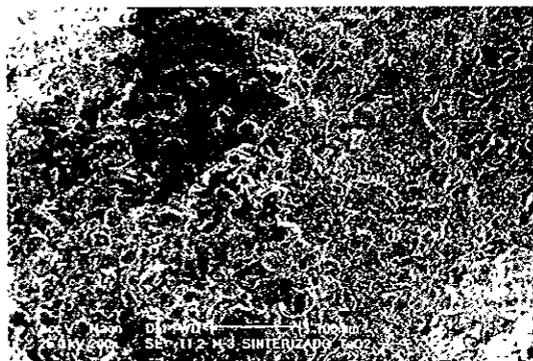
$T=200\text{ }^{\circ}\text{C}$



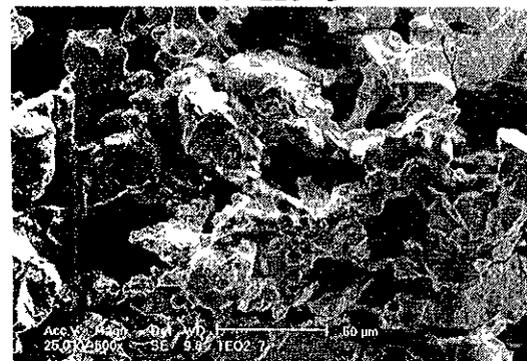
$T=125\text{ }^{\circ}\text{C}$



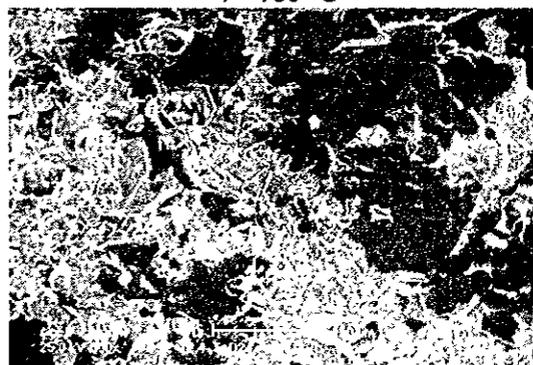
$T=225\text{ }^{\circ}\text{C}$



$T=150\text{ }^{\circ}\text{C}$



$T=250\text{ }^{\circ}\text{C}$



$T=175\text{ }^{\circ}\text{C}$

Fig. 19.  $\text{TeO}_2$  sinterizado obtenido a diferentes temperaturas

Sin embargo analizando los espectros obtenidos por microscopía electrónica a las muestras sinterizadas (Fig. 20), se aprecian las mismas señales de oxígeno y de telurio que en el  $\text{TeO}_2$  pulverizado, pero con la gran diferencia de que las señales del oxígeno aparecen mucho más grandes que las señales del telurio, este fenómeno se lleva a cabo en los primeros 3 experimentos, es decir cuando la temperatura de obtención del  $\text{TeO}_2$  fue de 100, 125 y 150 °C. Después a las temperaturas de 175, 200, 225, y 250 °C las señales van disminuyendo aproximándose a la señal del Te.

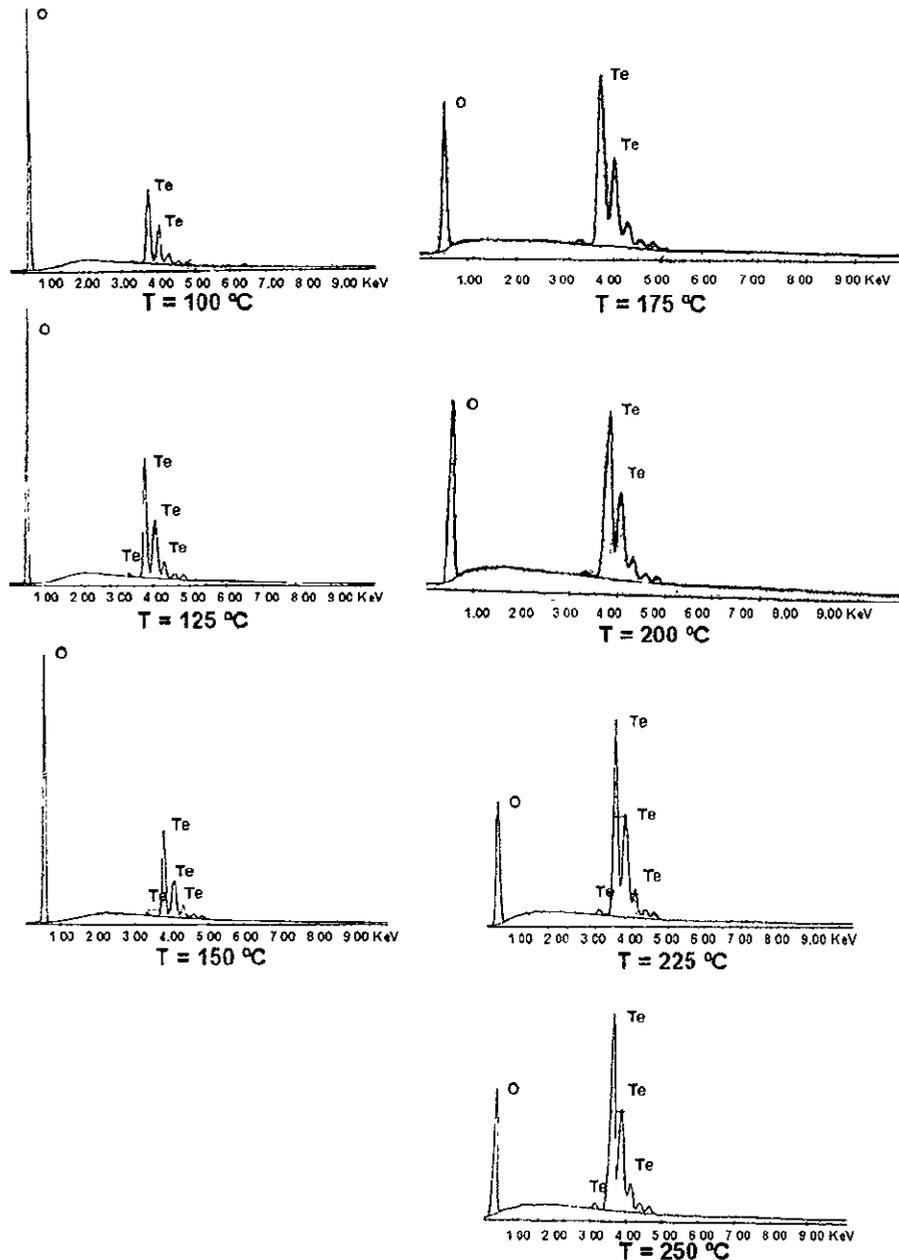


Fig. 20. Microscopía Electrónica del  $\text{TeO}_2$  sinterizado a diferentes temperaturas

#### 5.4.5. Análisis comparativo del TeO<sub>2</sub> pulverizado y sinterizado por microscopía electrónica

Por otro lado, analizando los datos experimentales del análisis cuantitativo obtenido por microscopía electrónica del TeO<sub>2</sub> pulverizado, se observan en la tabla 9 y Fig. 21, que el % atómico de O en el TeO<sub>2</sub> pulverizado alcanza valores de 58.7 % atómico hasta 74.65 % atómico. Es obvio que los valores de % de telurio pulverizado es el % restante. Para el TeO<sub>2</sub> sinterizado se observa que el % atómico de oxígeno alcanza un valor máximo en la muestra No. 1 con 90.24 % y el valor mínimo en la muestra No. 7 con 72.24 %, es decir la diferencia es de 18 %

No. MUESTRA	TEMPERATURA °C	% ATOMICO DE O		% ATOMICO DE Te	
		PULVERIZADO	SINTERIZADO	PULVERIZADO	SINTERIZADO
1	100	71.5	90.24	28.85	9.25
2	125	58.70	82.45	41.30	17.55
3	150	71.84	89.94	28.16	10.06
4	175	74.65	77.34	25.35	22.66
5	200	67.42	80.71	32.58	19.29
6	225	63.06	72.01	36.94	27.99
7	250	67.08	72.24	32.92	27.76

Tabla 9. Porcentajes atómicos de oxígeno y telurio en el TeO<sub>2</sub> pulverizado y sinterizado obtenido a diferentes temperaturas para la producción de <sup>131</sup>I

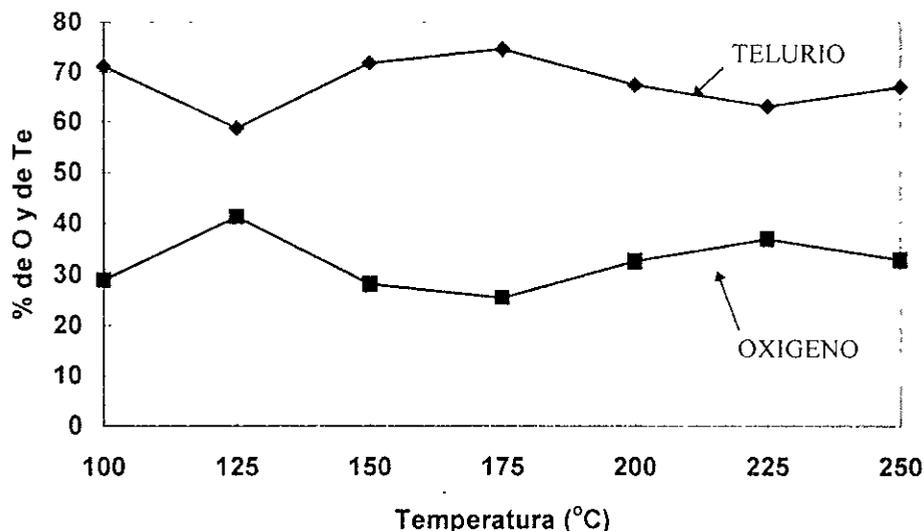


Fig. 21. Porcentajes atómicos de Oxígeno y de Telurio en el TeO<sub>2</sub> pulverizado obtenido a diferentes temperaturas

La Fig. 22, nos muestra el comportamiento de los porcentajes de TeO<sub>2</sub> sinterizado y se observa como de 100 °C a 150 °C el porcentaje atómico de O alcanza el 90 % y va disminuyendo hasta 72 % que corresponde a una temperatura de 250 °C.

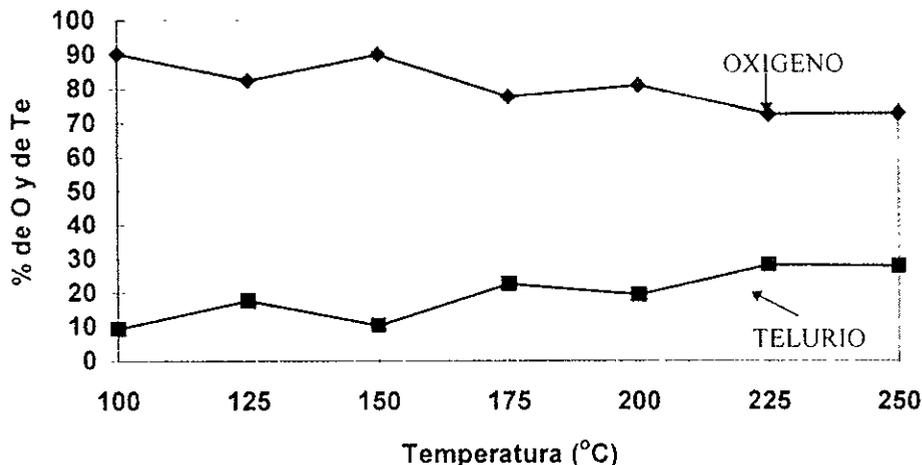


Fig. 22. Porcentaje atómico de Oxígeno y de Telurio en el TeO<sub>2</sub> sinterizado obtenido a diferentes temperaturas

En la tabla 10 vemos el porcentaje en peso del oxígeno que alcanza valores de 17.63 hasta 26.97 con una diferencia de 9.34 % en peso de oxígeno correspondiente al TeO<sub>2</sub> pulverizado.

No. MUESTRA	TEMPERATURA °C	% EN PESO DE O		% EN PESO DE Te	
		PULVERIZADO	SINTERIZADO	PULVERIZADO	SINTERIZADO
1	100	23.62	54.42	76.38	44.51
2	125	15.13	37.07	84.87	62.93
3	150	24.23	52.84	75.77	47.16
4	175	26.97	29.97	73.03	70.03
5	200	20.60	34.41	79.40	65.59
6	225	17.63	24.39	82.37	75.61
7	250	20.35	24.60	79.65	75.40

Tabla 10. Porcentajes en peso de oxígeno y telurio en el TeO<sub>2</sub> pulverizado y sinterizado obtenido a diferentes temperaturas para la producción de <sup>131</sup>I

En la Fig. 23, se observa que de 100 a 150 °C en el TeO<sub>2</sub> pulverizado, los porcentajes en peso de oxígeno alcanzan valores similar, este comportamiento es similar para el telurio en el TeO<sub>2</sub> pulverizado.

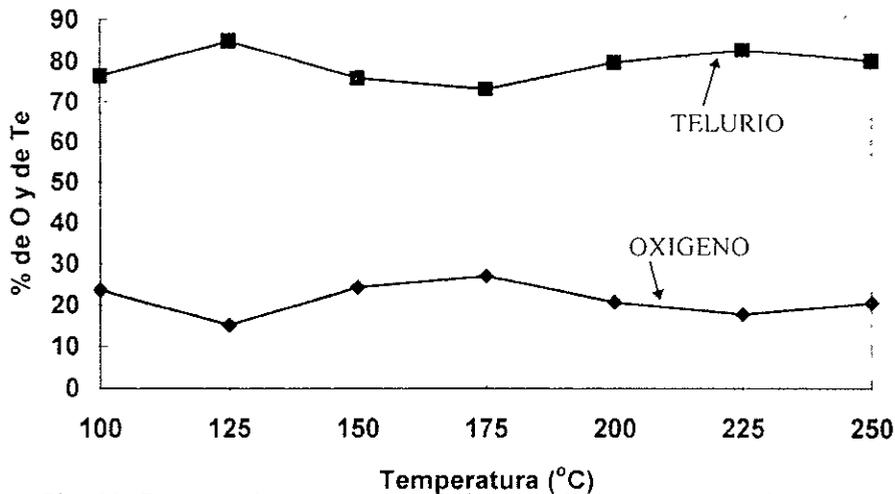


Fig. 23. Porcentaje en peso de Oxígeno y Telurio en el  $\text{TeO}_2$  pulverizado obtenido a diferentes temperaturas

Sin embargo en el  $\text{TeO}_2$  sinterizado la muestra No. 1 contiene 54.42 % en peso y la muestra No. 7 con 24.39 % en peso, es decir con una diferencia de 30.39 % en peso de oxígeno (Fig. 24).

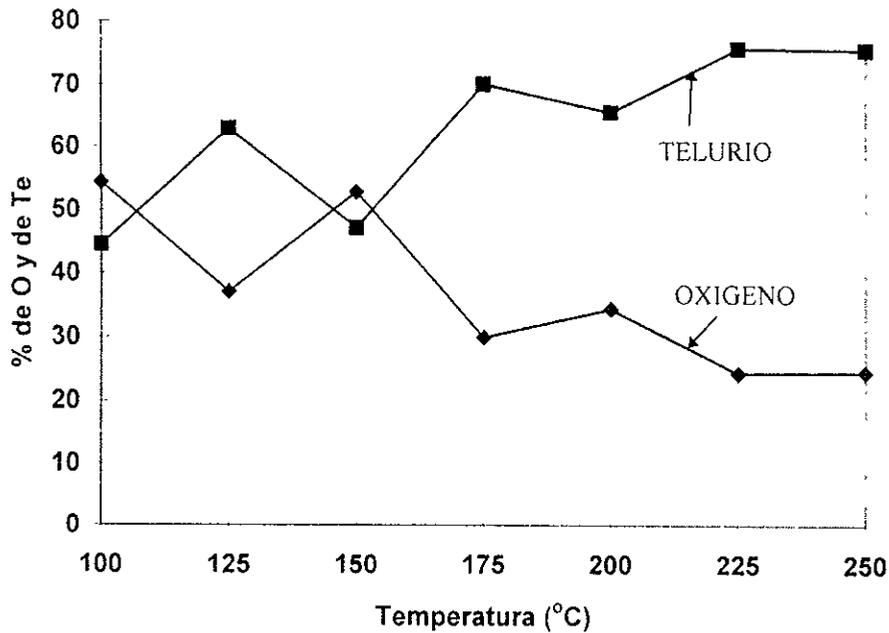


Fig. 24. Porcentaje en peso de Oxígeno y Telurio en el  $\text{TeO}_2$  sinterizado obtenido a diferentes temperaturas

Analizando y correlacionando los datos obtenidos del sinterizado y pulverizado mediante las Figs. 21 y 22, observamos que el oxígeno en el sinterizado se encuentra en mayor porcentaje a temperaturas entre 100 y 150 °C con 90 % atómico y a temperatura de 250 °C con 72 %, en el pulverizado los porcentajes conservan un comportamiento numéricamente similar en las 7 temperaturas (Fig. 25).

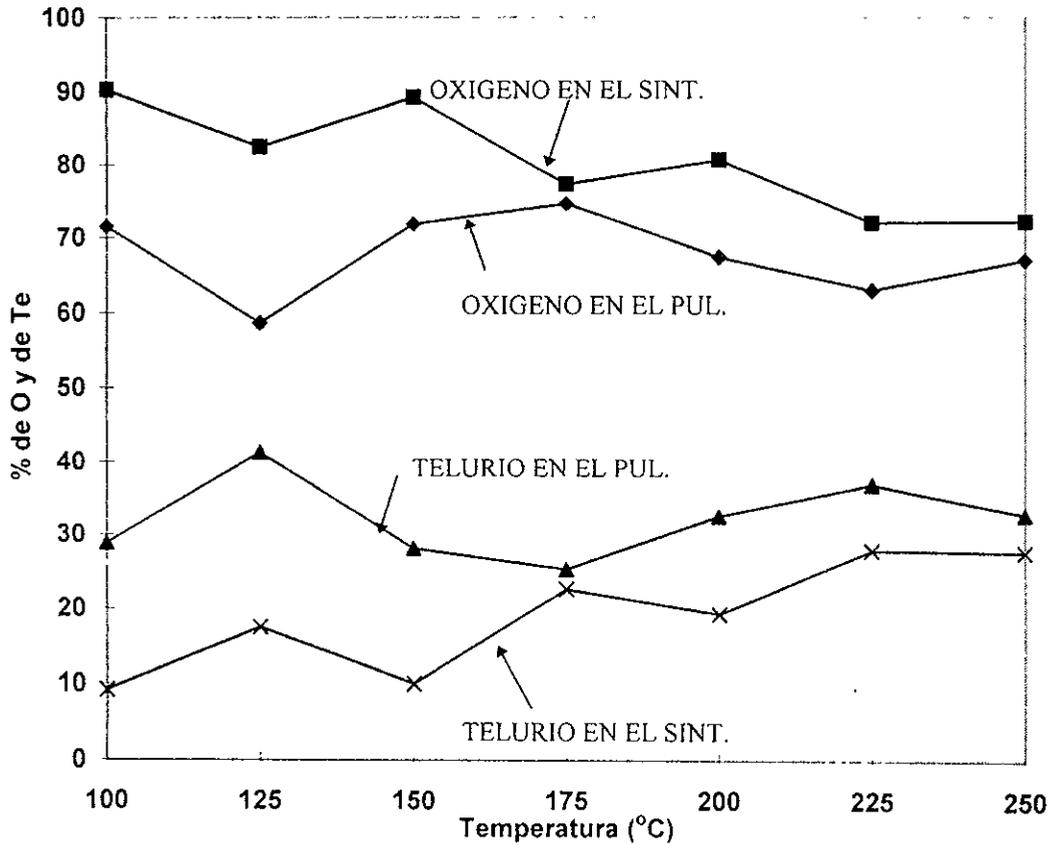


Fig. 25. Porcentaje atómico de Oxígeno y Telurio en el TeO<sub>2</sub> pulverizado y sinterizado obtenido a diferentes temperaturas

En la Fig. 26, se observa con más porcentaje en peso el del telurio pulverizado que el sinterizado y mayor % en peso de oxígeno sinterizado que el pulverizado

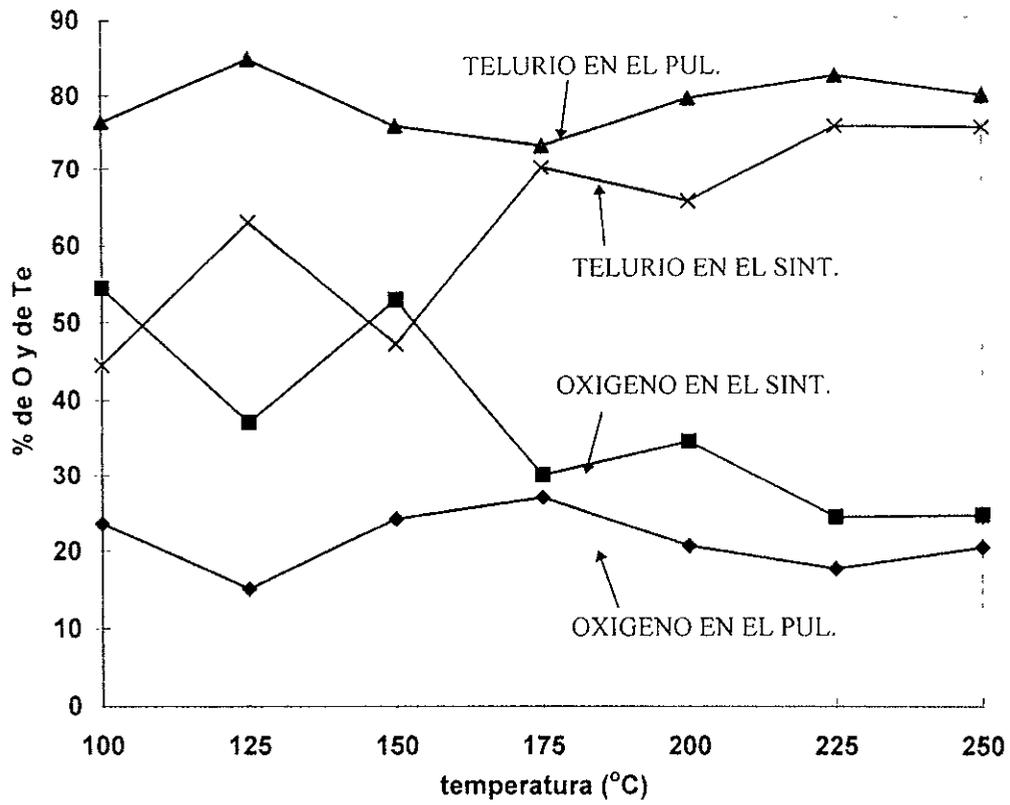


Fig. 26. Porcentaje en peso de Oxígeno y de Telurio en el  $\text{TeO}_2$  pulverizado y sinterizado obtenido a diferentes temperaturas

## 5.5. OPTIMIZACION DE LOS PARAMETROS DE SINTERIZADO DE $\text{TeO}_2$ PARA OBTENER $^{131}\text{I}$

### 5.5.1. Sinterización de $\text{TeO}_2$

Como se puede ver en la tabla 11 los estudios se basaron en seleccionar una temperatura de sinterizado ( $T = 367\text{ }^\circ\text{C}$ ) y con esta temperatura se llevaron a cabo 4 experimentos con tiempos diferentes ( $t = 3.5, 5.0, 7.5$  y  $10\text{ min}$ ); después se varió las temperaturas hasta  $732\text{ }^\circ\text{C}$  empleando los mismos tiempos. Esta forma de llevar a cabo estos experimentos fue para estudiar el comportamiento de sinterizado del  $\text{TeO}_2$ , ya que de acuerdo a la definición de sinterizado el cual comienza a  $367\text{ }^\circ\text{C}$ , es decir, por arriba de la temperatura media de fusión del  $\text{TeO}_2$  y termina a los  $732\text{ }^\circ\text{C}$  que es  $1\text{ }^\circ\text{C}$  por abajo de la temperatura de fusión. Sin embargo, realizando pruebas de sinterizado desde  $367\text{ }^\circ\text{C}$  hasta  $500\text{ }^\circ\text{C}$  con tiempos de  $3.5, 5.0, 7.5$  y  $10.0\text{ min}$  no se logró, es decir el contacto de los granos del  $\text{TeO}_2$  sí se lleva a cabo en base a calentamiento y tiempo de permanencia de contacto de grano con grano, pero no existe una compactación en base a una transferencia de materia recíproca de grano con grano, en la tabla 11 se muestra cuando no existe el sinterizado y cuando comienza el sinterizado.

De esta forma, la tabla 11 nos muestra como se comporta el  $\text{TeO}_2$  durante los experimentos de sinterizado empleando los parámetros propuestos. Como se puede observar el primer sinterizado se logra a  $550\text{ }^\circ\text{C}$  con un tiempo de  $10\text{ min}$ , sin embargo desde  $375$  hasta  $450\text{ }^\circ\text{C}$  empleando los tiempos seleccionados no se logra, es decir, bajo estas condiciones los granos de  $\text{TeO}_2$  no logran compactarse ni tienden a tener consistencia como para formar un lingote de  $\text{TeO}_2$ , lo mismo sucede a  $500\text{ }^\circ\text{C}$  con tiempos de  $3.5$  y  $5.0\text{ min}$ , sin embargo a  $500\text{ }^\circ\text{C}$  con tiempos de  $7.5$  y  $10.0\text{ min}$  se observa que ya el  $\text{TeO}_2$  forma un sinterizado engañoso ya que al sujetarlo se deshace y por consiguiente no ocurre el sinterizado, este mismo fenómeno ocurre a  $550\text{ }^\circ\text{C}$  con tiempos de  $3.5, 5$  y  $7.5\text{ min}$  y a  $600\text{ }^\circ\text{C}$  con  $3.5\text{ min}$ . Entonces el primer sinterizado se logra a  $550\text{ }^\circ\text{C}$  con un tiempo de  $10\text{ min}$ , pero al tratar de extraerlo del tubo de cuarzo se verifica que se encuentra pegado a sus paredes y no es posible manipularlo. Este mismo

fenómeno ocurre a 600 °C con tiempos de 5.0, 7.5 y 10 min. Sin embargo, a estos sinterizados si fue posible llevar a cabo los estudios correspondientes de microscopía y de irradiación. A partir de 650 °C hasta 732 °C con los tiempos seleccionados ya se llevó a cabo el sinterizado normal.

TEMPERATURA DE SINTERIZADO (°C)	TIEMPO DE SINTERIZADO (min)			
	3.5	5.0	7.5	10.0
367	No se logra	No se logra	No se logra	No se logra
400	No se logra	No se logra	No se logra	No se logra
450	No se logra	No se logra	No se logra	No se logra
500	No se logra	No se logra	No se logra	No se logra
550	No se logra	No se logra	Se forma pero no se logra	SE LOGRA
600	Se forma pero no se logra	SE LOGRA	SE LOGRA	SE LOGRA
650	SE LOGRA	SE LOGRA	SE LOGRA	SE LOGRA
700	SE LOGRA	SE LOGRA	SE LOGRA	SE LOGRA
732	SE LOGRA	SE LOGRA	SE LOGRA	SE LOGRA

Tabla 11. Comportamiento del TeO<sub>2</sub> al sinterizarse

## 5.5.2. Irradiación de muestras de TeO<sub>2</sub> sinterizadas

Con el fin de predecir la actividad esperada de TeO<sub>2</sub>, se realizan los cálculos matemáticos, tomando en cuenta los parámetros de irradiación seleccionados (ver cap. 3.4), aplicando la ecuación de irradiación (4), para la irradiación de 1 g de TeO<sub>2</sub> para obtener  $\mu\text{Ci/g}$  de <sup>131</sup>I. Las muestras arrojaron los siguientes resultados (Tabla 12).<sup>(61,62,64)</sup>

No. de Muestra	Masa de TeO <sub>2</sub> (g)	Temp. de Sint. (°C)	Tiempo de Sint. (min)	ACTIVIDAD TOTAL DE <sup>131</sup> I E ISOTOPOS RADIATIVOS DEL Te DESPUES DE LA IRRADIACION ( $\mu\text{Ci}$ )											
				1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
				DIA	DIAS										
1	1.0	550	10	701	516	409	384	304	276	243	220	202	186	171	154
2	1.0	600	5	881	589	527	418	307	293	249	228	219	214	184	165
3	1.0	600	7.5	811	580	449	376	310	277	248	224	205	189	164	157
4	1.0	600	10	786	523	424	361	308	284	247	224	204	192	173	161
5	1.0	650	3.5	748	529	438	367	298	265	240	219	195	177	166	153
6	1.0	650	5.0	794	556	498	402	312	286	249	234	206	192	174	159
7	1.0	650	7.5	989	679	507	414	330	315	284	253	232	209	192	177
8	1.0	650	10	1038	696	520	426	351	319	293	261	237	216	198	163
9	1.0	700	3.5	1118	540	460	368	309	276	245	222	205	188	167	151
10	1.0	700	5.0	1118	687	519	421	350	313	288	258	235	215	196	181
11	1.0	700	7.5	926	681	518	423	357	317	278	255	235	217	192	181
12	1.0	700	10	956	685	519	423	358	319	282	254	234	213	191	175
13	1.0	732	3.5	938	684	517	407	437	309	273	247	227	208	187	176
14	1.0	732	5.0	942	691	515	436	370	337	294	265	243	223	202	187
15	1.0	732	7.5	936	685	504	426	363	332	289	261	238	217	199	183
16	1.0	732	10	938	687	518	439	364	331	288	259	239	220	200	184

Tabla 12. Decaimiento de las muestras de TeO<sub>2</sub> irradiadas

Es muy necesario conocer los fenómenos nucleares que se producen durante la irradiación con neutrones rápidos o térmicos en todos los isótopos de Te que existen en el TeO<sub>2</sub>, ya que durante la irradiación ocurren diferentes reacciones nucleares, de tal forma se activan los demás isótopos de Te, no nada más los

isótopos que dan lugar a la formación del  $^{131}\text{I}$ , sino otros productos de las otras reacciones, por lo tanto la actividad que se obtiene en todos los experimentos, es la suma de los isótopos, principalmente los que tienen energías próximas o iguales a las del  $^{131}\text{I}$ , ya que el equipo con que se tomaron las mediciones fue una cámara de ionización (CAPINTEC), la cual se calibró para las energías de  $^{131}\text{I}$  y por lo tanto se detectaron todas estas energías.

En la tabla 12, se observa que a partir del 5º día de decaimiento de las muestras, los valores teóricos se aproximan al decaimiento real que sigue el  $^{131}\text{I}$ , de tal forma, que esto nos indica que del 1º al 4º día, las muestras de  $\text{TeO}_2$  contienen otros isótopos del Te que interfieren en la medición del  $^{131}\text{I}$  y a partir del 5º día las muestras contienen básicamente casi el 100 % de  $^{131}\text{I}$ .

### 5.5.3. Determinación de $^{131}\text{I}$ en las muestras irradiadas

Para obtener la actividad del  $^{131}\text{I}$ , producido inmediatamente después de la irradiación, hagamos lo siguiente:

De acuerdo a los resultados mostrados en la tabla 12, podíamos pensar que estos valores corresponden al  $^{131}\text{I}$ , sin embargo, si aplicamos la ecuación de decaimiento (22), que es:

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (22)$$

donde:  $A_0$  = Actividad inicial .

$A$  = Actividad después de un tiempo dado.

$\lambda$  = Constante de decaimiento del  $^{131}\text{I}$ .

$t$  = Tiempo de decaimiento del  $^{131}\text{I}$ .

Para el primer valor de actividad que corresponde a la columna de día No. 1 (tabla 12), después de la irradiación de la muestra No. 16 se le aplica la ecuación (22).

$$A = 938 \mu\text{Ci} e^{-\frac{0.693}{8}(1)} = 860 \mu\text{Ci}$$

Este resultado teórico es el que nos debe dar después de la irradiación en forma experimental, sin embargo la lectura es de 687  $\mu\text{Ci}$ , este mismo fenómeno ocurre

con las demás muestras, pero a medida que pasa el tiempo los valores teóricos y prácticos se aproximan, de tal forma que los valores a partir del 5º día siguen un comportamiento que se ajustan a la curva que rige el decaimiento del  $^{131}\text{I}$ , entonces se puede pensar que a partir del 5º día ya se tiene una muestra con alta pureza de  $^{131}\text{I}$ .

Por lo tanto a partir de esta conclusión se puede aplicar la ecuación de decaimiento para saber cuanto  $^{131}\text{I}$  se tiene el 1º día después de la irradiación.

Ahora se grafican dos curvas de decaimiento para cada muestra, con los datos de la tabla 22:

1. Para la primera curva, se toman en cuenta los datos desde un día después de la irradiación , hasta el día 12 , esta curva, nos indica el  $^{131}\text{I}$  más impurezas (presencia de otros isótopos de las otras reacciones del Te).
2. Para la segunda curva, se toman en cuenta los datos del día 5 después de la irradiación hasta el día 12 y con cualquiera de estos datos y aplicando la ecuación (22), pero despejando  $A_0$ , se calculan los valores correspondientes a los días del 1º al 4º.
3. Ambas gráficas las comparamos en un eje de coordenadas,

En la Fig. 27 se muestran las curvas de decaimiento de las 16 muestras y se puede apreciar la curva que corresponde al  $^{131}\text{I}$  (curva inferior) y la curva que corresponde a la actividad total de la muestra, que contiene  $^{131}\text{I}$  mas otros isótopos del telurio.

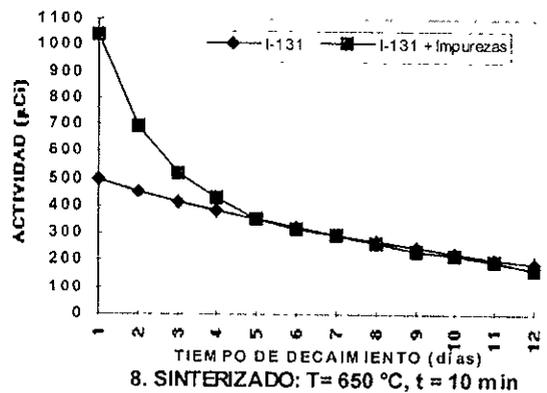
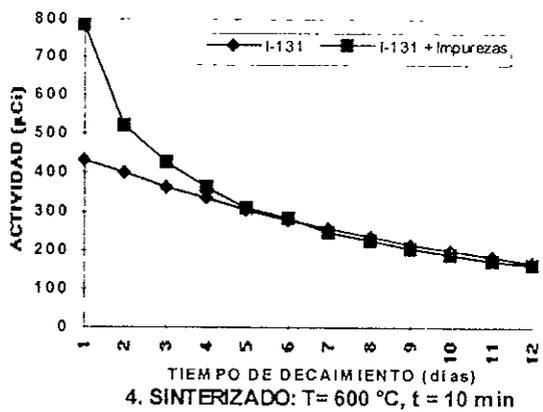
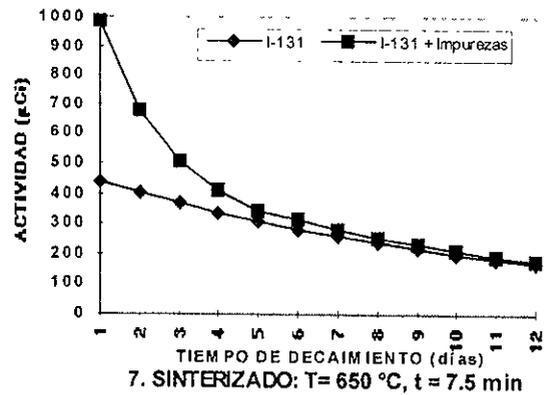
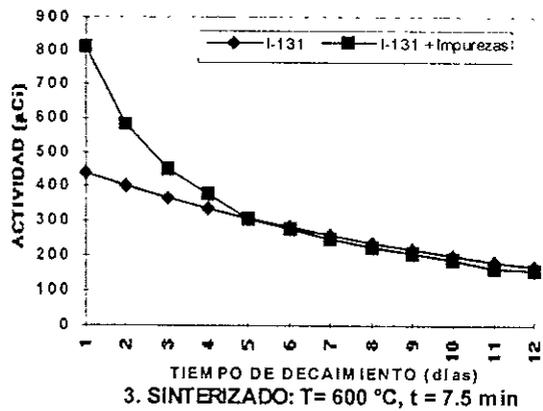
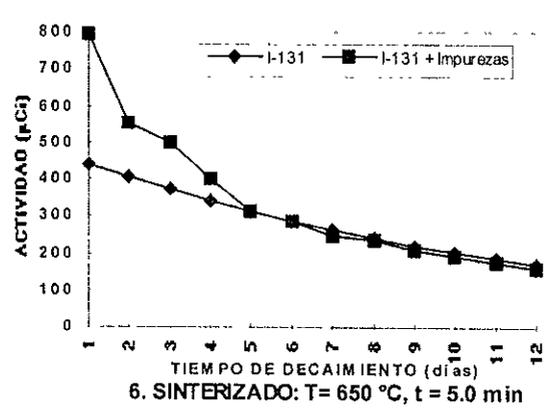
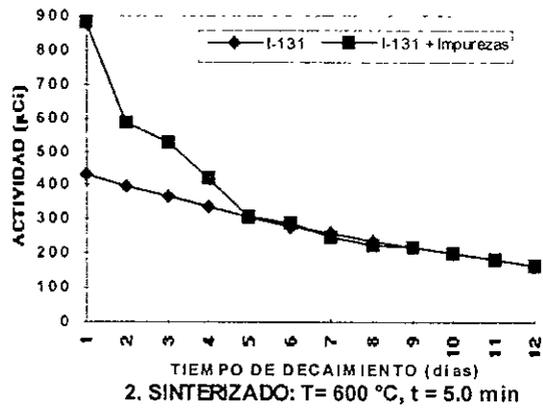
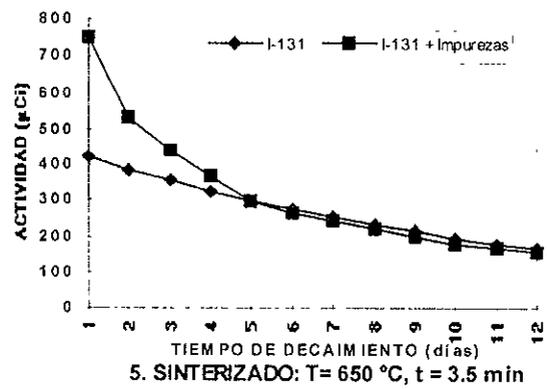
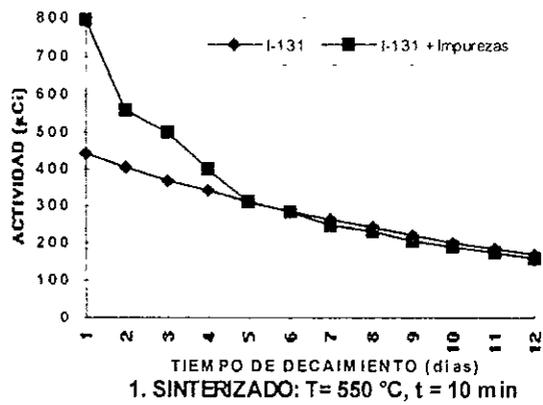


Fig. 27. Curvas de los productos de decaimiento de las muestras TeO<sub>2</sub> irradiadas.

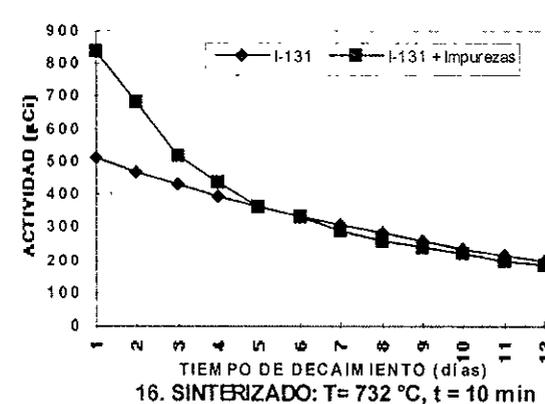
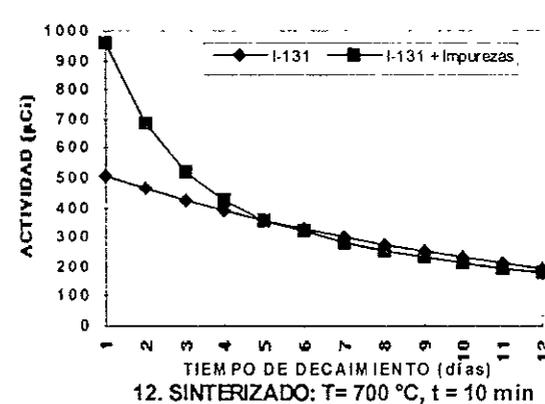
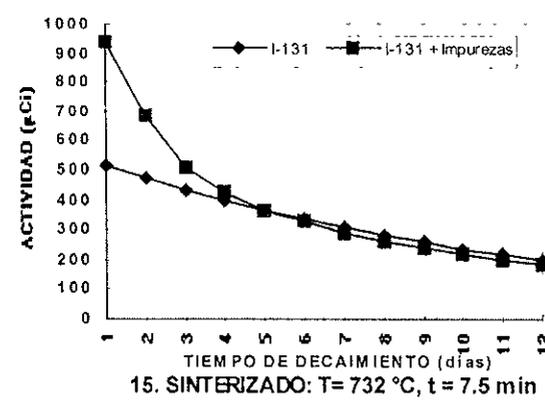
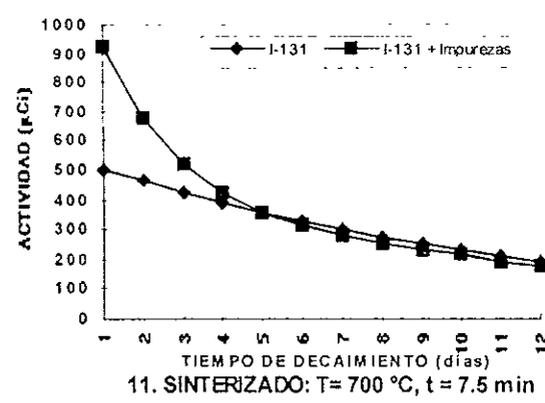
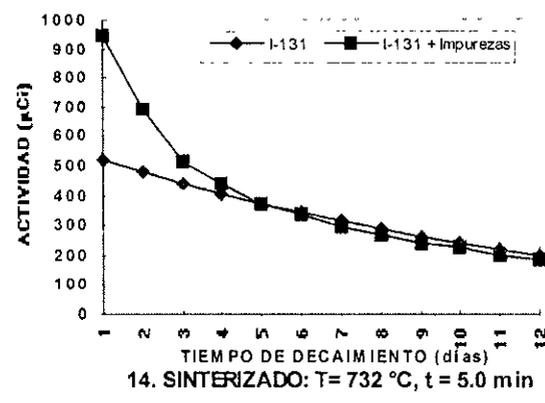
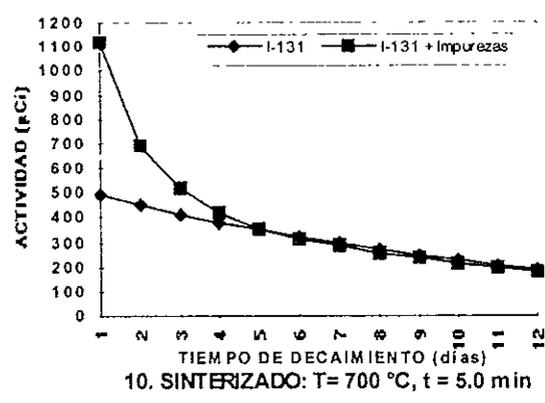
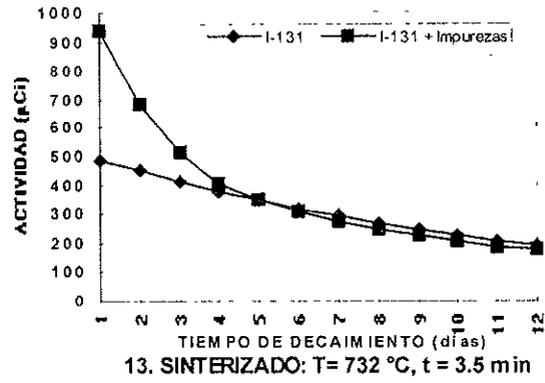
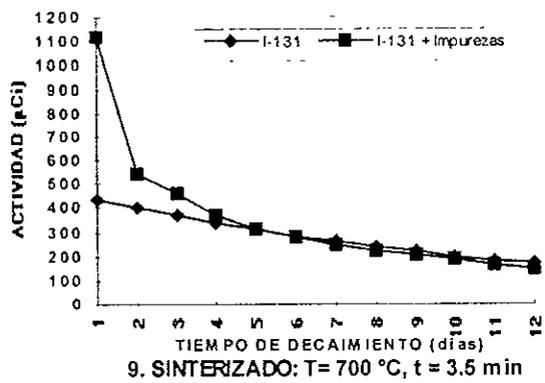


Fig. 27. Curvas de los productos de decaimiento de las muestras de TeO<sub>2</sub> irradiadas (Continuación)

En la Fig. 27, podemos observar la diferencia que existe en las dos curvas durante los primeros 4 días después de la irradiación y a partir del 5º día se aproximan a unirse, esto, nos indica que en los primeros 4 días, existe la presencia de otros isótopos que tienen energías similares a los del  $^{131}\text{I}$  pero con vida media mucho menor, y debido a esto decaen más rápidamente, Este fenómeno también puede explicarse si observamos el decaimiento de una muestra de  $\text{TeO}_2$  irradiado, en la cual se tomaron lecturas por espectrometría gamma durante el decaimiento por varios días de todos los isótopos formados como productos de las reacciones nucleares ( Fig. 28). Esta gráfica nos muestra el comportamiento de todos los isótopos producidos durante la irradiación del  $\text{TeO}_2$  y con ellos podemos corroborar que los isótopos que perjudican la pureza del  $^{131}\text{I}$  en los primeros 4 días son principalmente:  $^{129}\text{Te}$ ,  $^{127}\text{Te}$ , y  $^{131}\text{Te}^m$  (con  $T_{1/2} \ll ^{131}\text{I}$ ) y en menor proporción  $^{123}\text{Te}^m$ ,  $^{127}\text{Te}^m$ ,  $^{129}\text{Te}^m$  y  $^{123}\text{Te}$  (con  $T_{1/2} \gg ^{131}\text{I}$ ) pero con actividades muy pequeñas que no afectan.

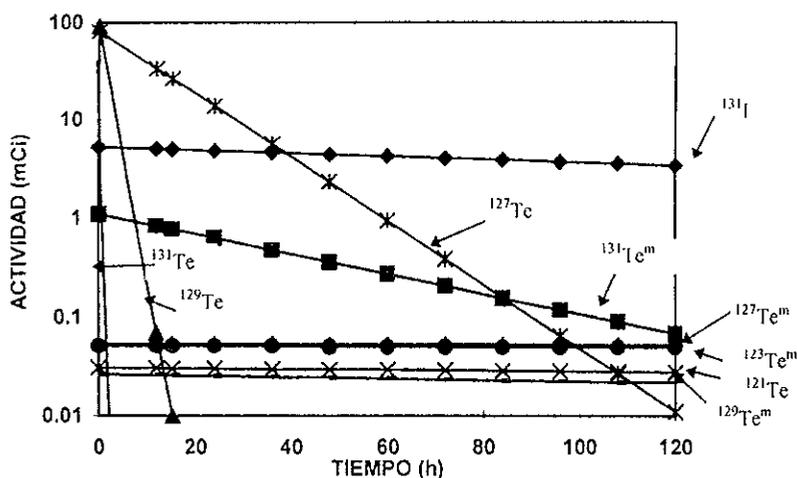


Fig. 28. Esquema de decaimiento de una muestra 1 g de  $\text{TeO}_2$  irradiada por 5 h con un flujo de neutrones de  $1.19 \times 10^{13}$  n/cm<sup>2</sup> seg

Por lo anterior, podemos concluir, que la cantidad de  $^{131}\text{I}$  obtenido en cada muestra después de 1 día de la irradiación en función de los parámetros de sinterizado es diferente. La (tabla 13), muestra los resultados de la actividad de  $^{131}\text{I}$  obtenido, 8 horas después de terminarse la irradiación de las 16 muestras de 1 g de  $\text{TeO}_2$  en función de los parámetros de sinterización.

No. de muestra	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
Temp. de Sint. °C	550	600	600	600	650	650	650	650	700	700	700	700	732	732	732	732
Tiempo de Sint. min	10	5.0	7.5	10	3.5	5.0	7.5	10	3.5	5.0	7.5	10	3.5	5.0	7.5	10
Act. de $^{131}\text{I}$ ( $\mu\text{Ci}$ )	468	473	477	475	457	480	476	540	533	538	549	550	534	569	558	560

Tabla 13. Obtención de  $^{131}\text{I}$ , en función del tiempo y temperatura de sinterizado del  $\text{TeO}_2$  con tiempo de enfriamiento de 8 horas.

En la Fig. 29, se grafican los resultados de la tabla 13 (No. de muestra vs actividad obtenida en  $\mu\text{Ci}$ ), se puede apreciar que al aumentar el número de muestra, aumenta la actividad, esto es, al aumentar la temperatura de sinterización, también aumenta la actividad, desde 550 °C hasta 732 °C. Sin embargo, el punto máximo se obtiene en la muestra No. 14 ( $T = 732$  °C,  $t = 5$  min).

Podemos verificar que en los puntos más bajos de la curva se encuentran los tiempos más bajos a los cuales fue sinterizada la muestra y los puntos más altos de la curva corresponden a los tiempos más altos de sinterización.

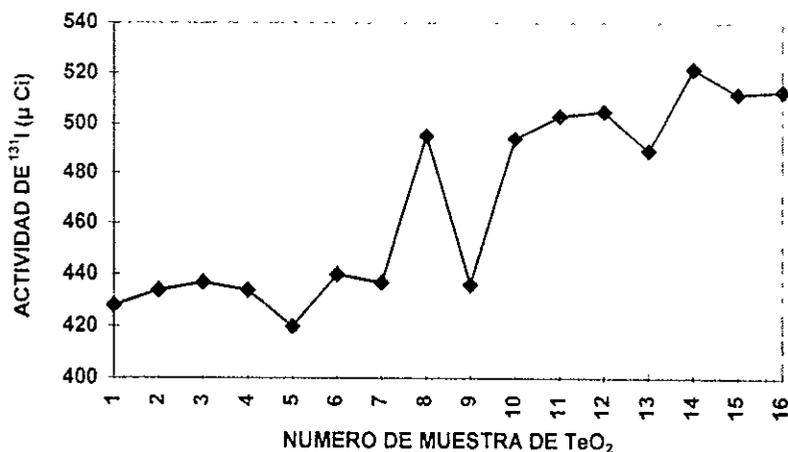


Fig. 29. Obtención de  $^{131}\text{I}$  en función del tratamiento de sinterizado del  $\text{TeO}_2$  con tiempo de enfriamiento de 8 horas

#### 5.5.4. Determinación de otros radioisótopos en las muestras irradiadas.<sup>(66,67)</sup>

Para darnos cuenta que otros radioisótopos se encuentran presentes en las muestra irradiadas de TeO<sub>2</sub>, tomemos en cuenta la muestra No. 14 de la Fig. 27 que se refiere a la muestra que obtuvo mayor cantidad de <sup>131</sup>I (569.2 μCi después de la irradiación), en donde la curva superior se refiere a la actividad total de la muestra (<sup>131</sup>I + Impurezas, para este caso, que consiste en la formación de otros isótopos del Te, ver cap. 5.5.3) y la curva inferior, es el <sup>131</sup>I presente en la muestra, tomando en cuenta estas dos curvas, tenemos:

$$(^{131}\text{I} + \text{Radioisótopos del Te}) - ^{131}\text{I} = X = \text{Cantidad de otros radioisótopos del Te presente en la muestra de TeO}_2$$

Si determinamos X, tomando en cuenta el tiempo de decaimiento hasta el día No. 5 después de la irradiación ( después del día 5 en adelante no es posible porque las curvas tiene los mismos valores) tenemos (tabla 14):

Tiempo después de la irradiación (Días)	1	2	3	4	5
( <sup>131</sup> I + Radioisótopos del Te) (μCi)	942	692	515	436	370
<sup>131</sup> I (μCi)	522	479	439	403	370
X (μCi)	420	213	76	33	0

Tabla 14. Datos comparativos de los isótopos presentes en el TeO<sub>2</sub> irradiado.

Graficando, los valores de la tabla 14, actividad contra el tiempo tenemos (Fig. 30):

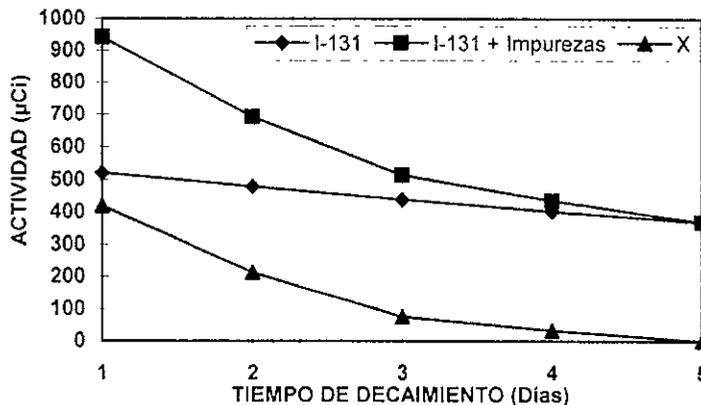


Fig. 30. Decaimiento de una mezcla de 2 radioisotopos

### 5.5.5. Análisis por microscopía electrónica de las muestras de TeO<sub>2</sub> antes de irradiarse

Para nuestro caso en especial, la técnica analítica por microscopía electrónica de barrido, aplicada a las muestras de TeO<sub>2</sub> sinterizadas, tienen como finalidad:

- a) Observar el comportamiento de la estructura granular que se observa a través de sus imágenes que muestran la forma y tamaño de granos y poros.
- b) Correlacionar los espectros y análisis cualitativos y cuantitativos con el fin de encontrar los parámetros óptimos de sinterizado que nos conduzcan a obtener con más eficiencia al <sup>131</sup>I.

Por lo tanto, la conformación de estos sinterizados, varían de acuerdo a los parámetros que se fijan. Los estudios del proceso de sinterizado de cada muestra mostrados (ver cap 5.5.2 y tabla 12), ahora los podemos corroborar comparándolos con las imágenes de la Fig. 31:

- a) A T = 550 °C con t = 10 min, los granos del TeO<sub>2</sub> muestran una compactación pero no existe una transferencia de materia de grano con grano (imagen 1). Podemos observar que existe apilamiento de materia en forma desordenada y no existe una porosidad bien definida, la actividad obtenida fue de 468 μCi y la más baja en todas las muestras.
- b) A T = 600 °C con t = 5.0, 5.5 min sucede lo mismo que en el punto anterior con actividades de 527 μCi y 477 μCi respectivamente, sin embargo existe una ligera compactación con t = 10 min, y existe porosidad que no está bien definida, y la actividad es de 475 μCi, o sea la actividad casi no varió a estas temperaturas.
- c) A T = 650 °C, con t = 3.5, 5 y 7.5 min, existe compactación de materia y transferencia de materia de grano con grano y comienza a existir la porosidad bien definida, aunque con poros aproximadamente de 20 μ que es una porosidad no muy satisfactoria para atrapar al <sup>131</sup>I ya que la actividad obtenida es de 457 μCi y 480 μCi respectivamente, y es baja comparada con la obtenida a temperaturas de sinterizado más altas.
- d) A T = 650 °C, con t = 10 min y T = 700 °C con t = 3.5, 5.0, 7.5 y 10 min, con estos tiempos y estas temperaturas de sinterizado se logra una porosidad bien

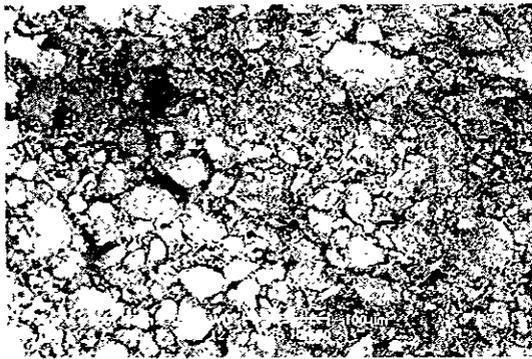
definida que oscila entre 40-60  $\mu$  y bajo estas condiciones se logra atrapar en sus poros adecuadamente al  $^{131}\text{I}$ . En las imágenes de la No. 8 a la 12 se observan claramente los poros intercalados en material que tiende a la fundición, por lo que la actividad casi permanece constante (540, 533, 538, 549 y 550  $\mu\text{Ci}$  respectivamente), sin embargo es más alta que la de los incisos "a" "b" y "c".

- e) A  $T = 732\text{ }^\circ\text{C}$  con  $t = 3.5$  min se observa que la actividad de 534  $\mu\text{Ci}$ , es similar a la obtenida a  $T = 700\text{ }^\circ\text{C}$ . Sin embargo en estas condiciones la imagen muestra al  $\text{TeO}_2$  casi fundido pero con la porosidad mejor definida por lo que el lingote es muy compacto y de esta forma se puede manipular mejor en el proceso de destilación del  $^{131}\text{I}$ .
- f) A  $T = 732\text{ }^\circ\text{C}$  con  $t = 5, 7.5$  y  $10$  min, se observa la desaparición granular completamente, es decir, existe la formación de cuellos extremadamente grandes causados por el aumento de la temperatura que tiende a fundir el  $\text{TeO}_2$ , bajo estas condiciones se obtuvieron las actividades más altas (569, 558 y 560  $\mu\text{Ci}$  respectivamente), quizás con  $t = 7.5$  y  $10$  min de sinterizado ya no se alcanza la actividad de  $^{131}\text{I}$ , porque este tiempo es demasiado grande para lograr una porosidad adecuada, sin embargo, con el  $t = 5$  min de sinterizado, se lograron poros de 50 a 70  $\mu$  adecuados para obtener la mejor cantidad de  $^{131}\text{I}$ .

La tabla 15, muestra en forma esquemática los efectos causados en el  $\text{TeO}_2$  según los parámetros aplicados en el proceso de sinterizado:

Existe compactación de granos y la porosidad no definida		Existe transferencia de materia y comienza a definirse la porosidad		porosidad bien definida y desaparece la estructura granular.	
TEMPERATURA DE SINTERIZADO ( $^\circ\text{C}$ )	TIEMPO DE SINTERIZADO (min)	TEMPERATURA DE SINTERIZADO ( $^\circ\text{C}$ )	TIEMPO DE SINTERIZADO (min)	TEMPERATURA DE SINTERIZADO ( $^\circ\text{C}$ )	TIEMPO DE SINTERIZADO (min)
550	10	650	3.5	650	10
600	5	650	5	700	3.5
600	7.5	650	7.5	700	5
600	10			700	7.5
				700	10
				732	3.5
				732	5
				732	7.5
				732	10

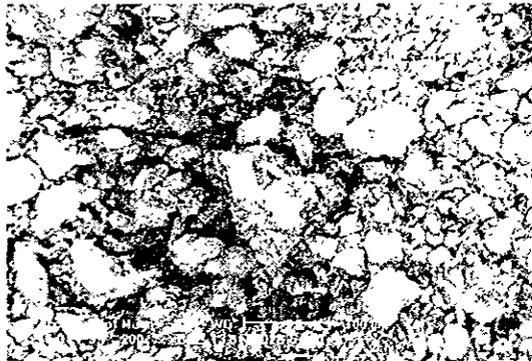
Tabla 15. Efectos causados en la conformación interna del  $\text{TeO}_2$  al sinterizarse



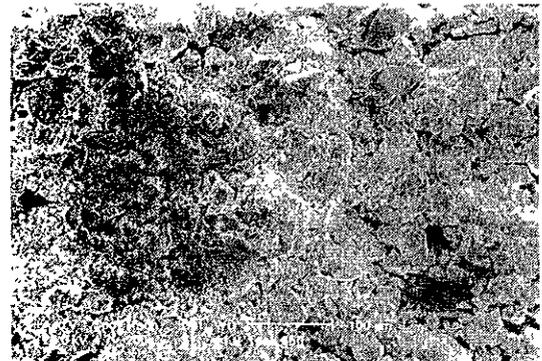
I.  $T = 550\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 10\text{ min}$



$T = 650\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 3.5\text{ min}$



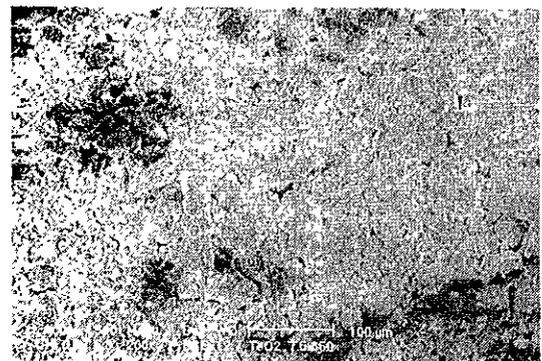
$T = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 5.0\text{ min}$



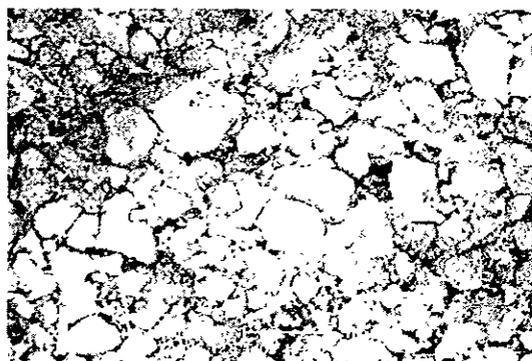
$T = 650\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 5.0\text{ min}$



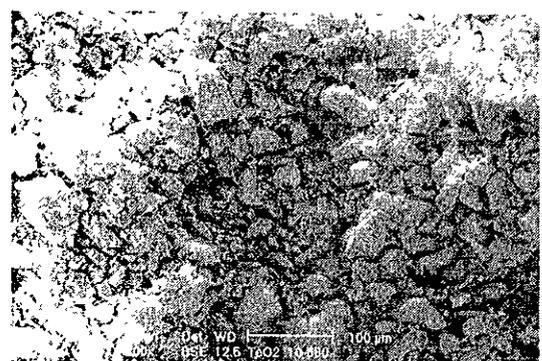
$T = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 7.5\text{ min}$



$T = 650\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 7.5\text{ min}$



$T = 600\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 10.0\text{ min}$



$T = 650\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 10.0\text{ min}$

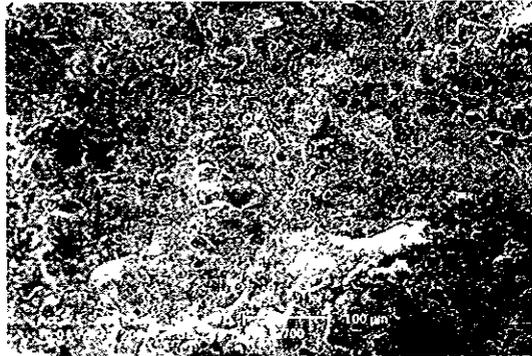
Fig. 31. Conformación interna del  $\text{TeO}_2$  sinterizado



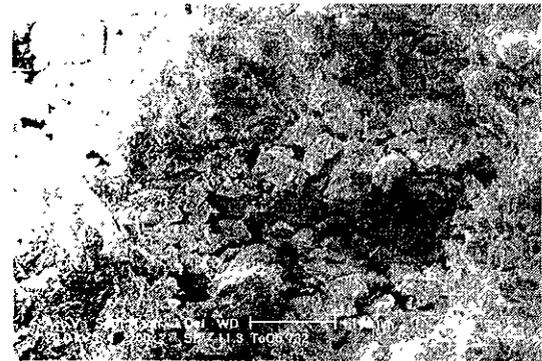
T = 700 °C, t = 3.5 min



T = 732 °C, t = 3.5 min



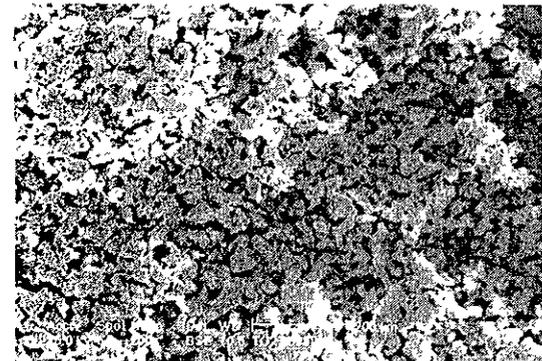
T = 700 °C, t = 5.0 min



T = 732 °C, t = 5.0 min



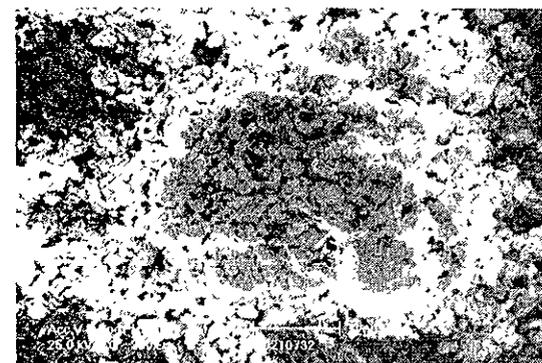
T = 700 °C, t = 7.5 min



T = 732 °C, t = 7.5 min



T = 700 °C, t = 10.0 min

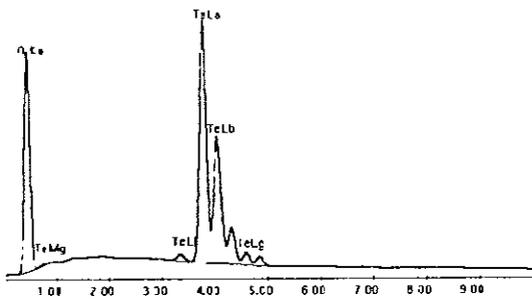


T = 732 °C, t = 10.0 min

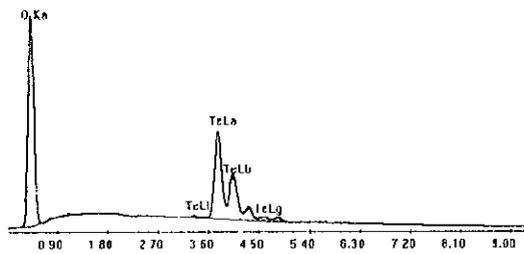
Fig. 31. Conformación interna del TeO<sub>2</sub> sinterizado (continuación)

En la Fig. 32, se muestran los espectros que corresponden a cada una de las muestras como parte de la técnica analítica de microscopía electrónica. Se puede observar lo siguiente:

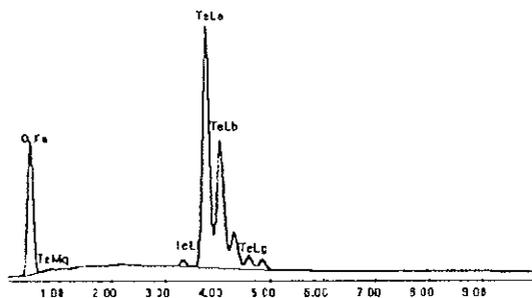
- a) En las muestras, las cuales fueron sinterizadas con  $T = 550\text{ }^{\circ}\text{C}$ , y  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  con  $t = 10$  y  $5$  min, se observa que el pico del O es inferior a los del Te, esto se debe principalmente a que todavía no existe compactación de granos y como consecuencia no existen poros lo suficientemente definidos y consistentes como para atrapar al  $^{131}\text{I}$  en forma definitiva.
- b) A medida que aumenta la temperatura, podemos observar que el pico de oxígeno aumenta y mucho más cuando aumenta también el tiempo de sinterizado, esto es debido a que existe una acumulación de oxígeno mayor dentro de los poros ya que la proporción que existe de oxígeno en los poros es proporcional al tamaño de poro y por consiguiente al aumentar el pico del oxígeno aumenta el tamaño de poro.
- c) los diferentes picos que corresponden al Te nos indican las diferentes capas electrónicas de los átomos del Te en las cuales ocurrieron las migraciones y los reacomodos de los electrones durante el proceso de bombardeo con el haz de electrones como parte esencial de la técnica analítica de microscopía electrónica.
- d) El fondo que se presenta corresponde a la energía causado por el efecto Bremsstrahlung, que significa que el bombardeo de electrones por el microscopio electrónico que inciden en los átomos del Te no causan ionización, pero si interaccionan con los electrones del átomo perdiendo una parte de su energía al disminuir su velocidad.
- e) El pico que corresponde al O, significa en este caso, que ocurrió la migración del electrón de la capa L a la capa K y por lo tanto el fenómeno no se presentó en las subcapas, por eso es nada más un pico.
- f) En el eje de las coordenadas se gráfica la intensidad contra la energía en KeV que corresponde a cada elemento.



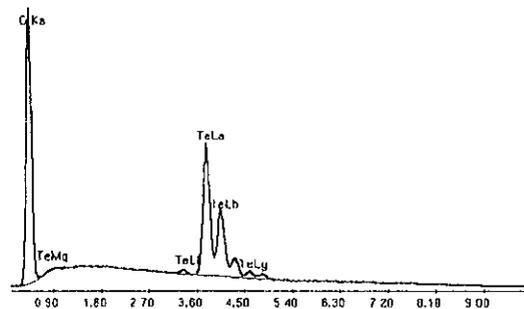
T = 550 °C, t = 10.0 min



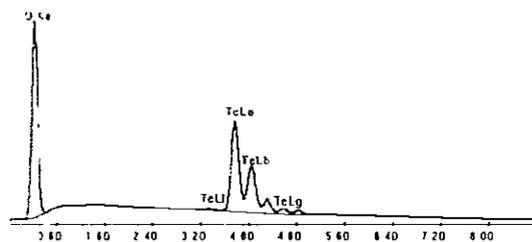
T = 650 °C, t = 3.5 min



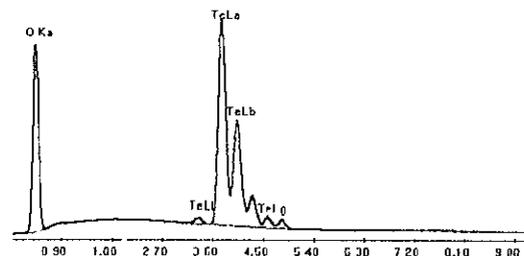
T = 600 °C, t = 5.0 min



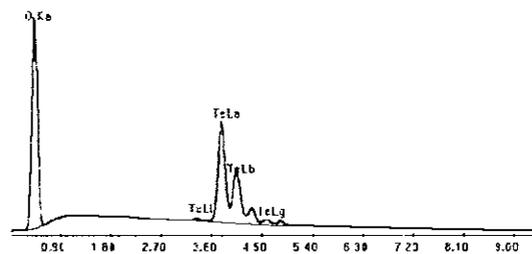
T = 650 °C, t = 5.0 min



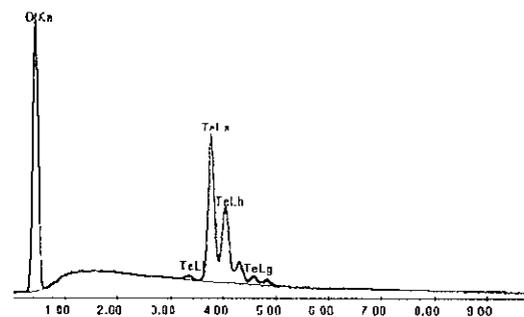
T = 600 °C, t = 7.5 min



T = 650 °C, t = 7.5 min

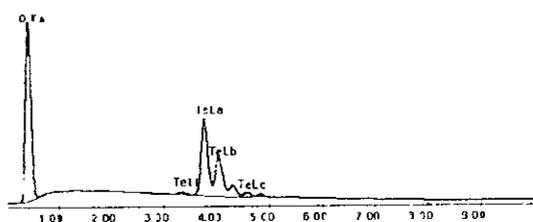


T = 600 °C, t = 10.0 min

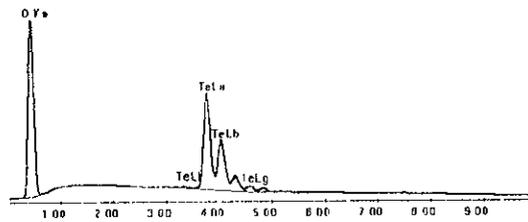


T = 650 °C, t = 10.0 min

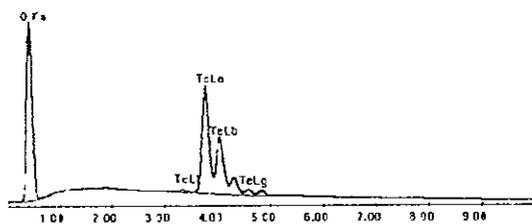
Fig. 32. Espectros del TeO<sub>2</sub> sinterizado



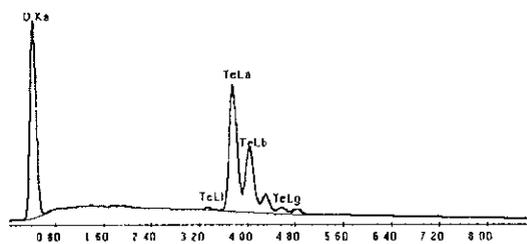
T = 700 °C, t = 3.5 min



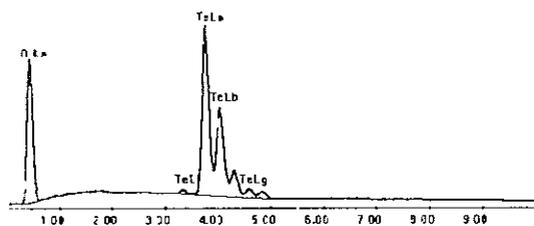
T = 732 °C, t = 3.5 min



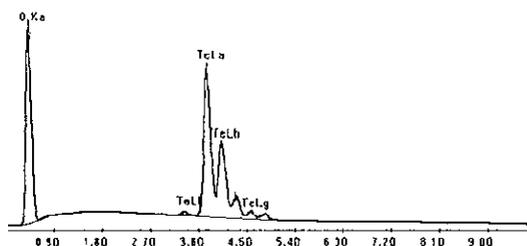
T = 700 °C, t = 5.0 min



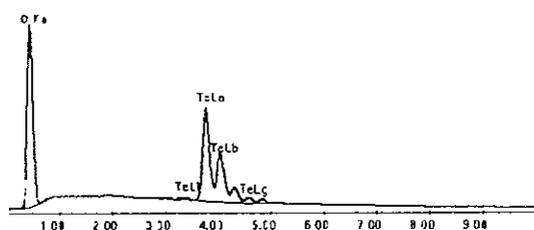
T = 732 °C, t = 5.0 min



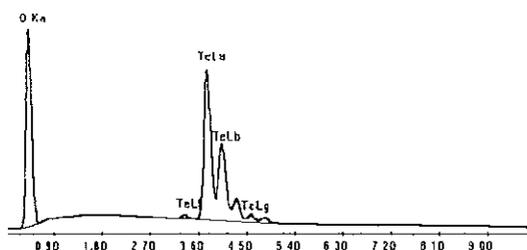
T = 700 °C, t = 7.5 min



T = 732 °C, t = 7.5 min



T = 700 °C, t = 10.0 min



T = 732 °C, t = 10.0 min

Fig. 32. Espectros del TeO<sub>2</sub> sinterizado (continuación)

Los análisis cuantitativos de las muestras para identificar los porcentajes de cada elemento presente, se muestran en la tabla No. 16. Como podemos observar, el porcentaje atómico del O oscila entre 69.70 % hasta 89.13 y el Te de 10.87 hasta 30.30. En el porcentaje en peso del O oscila del 22.31 % hasta 50.69 % y el Te de 77.62 % hasta 49.31 %. Como podemos ver, en la mayor parte de las muestras los porcentajes son similares.

El hecho de que se presenten porcentajes similares de O y de Te y que observemos que no dependen de los parámetros de temperatura y tiempo de sinterizado, es debido a que durante el análisis cuantitativo en el microscopio electrónico se seleccionó la superficie a analizar al azar, y pudo haber sido una superficie porosa, con pocos poros o sin poros

No. MUESTRA	TEMPERATURA DE SINTERIZADO	TIEMPO DE SINTERIZADO	% ATOMICO		% EN PESO	
			OXIGENO	TELURIO	OXIGENO	TELURIO
1	550	10	78.21	21.79	31.03	68.97
2	600	5	69.70	30.30	22.38	77.62
3	600	7.5	88.27	11.73	48.55	51.45
4	600	10	88.04	11.96	48.01	51.99
5	650	3.5	89.13	10.87	50.69	49.31
6	650	5.0	85.83	14.17	43.16	56.84
7	650	7.5	78.53	21.47	31.45	68.55
8	650	10	87.11	12.89	45.88	54.12
9	700	3.5	77.23	22.77	29.94	70.16
10	700	5.0	85.98	14.02	43.47	56.53
11	700	7.5	77.23	22.77	29.84	70.16
12	700	10	87.4	12.6	46.51	53.49
13	732	3.5	87.02	12.98	45.66	54.43
14	732	5.0	85.11	14.89	41.75	58.25
15	732	7.5	83.70	16.30	39.16	60.84
16	732	10	83.05	16.95	38.06	61.94

**Tabla 16. Porcentajes atómicos y en peso de oxígeno y de telurio presentes en las 16 muestras sinterizadas**

En la Fig. 33, se grafican los valores de la tabla 16 donde se muestran los porcentajes atómicos del Te y O contra el número de muestra y se observa como oscilan los valores en función del número de muestra.

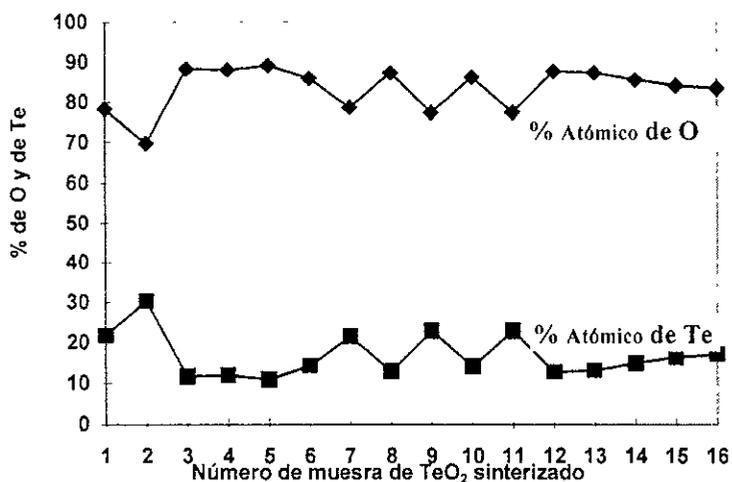


Fig. 33. porcentajes atómicos de Oxígeno y Telurio en el  $\text{TeO}_2$  sinterizado a diferentes tiempos y temperaturas

También para ver la diferencia que existe de un análisis atómico y de un análisis en peso de los componentes, la Fig. 34, muestra los datos obtenidos de la tabla 16.

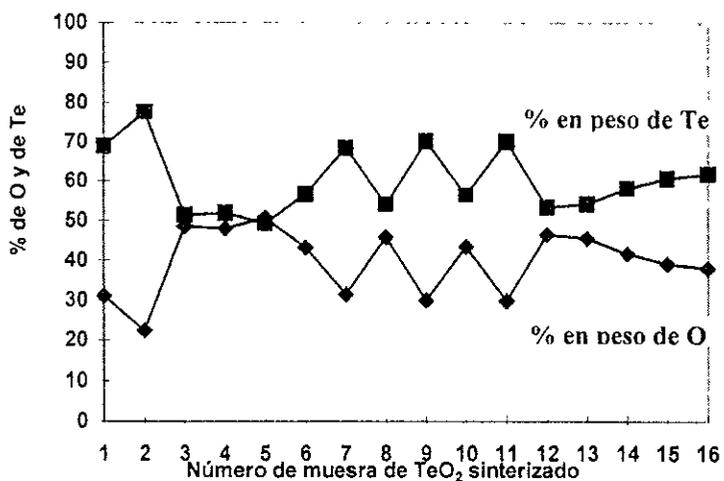


Fig. 34. Porcentajes en peso de Oxígeno y Telurio en el  $\text{TeO}_2$  sinterizado a diferentes tiempos y temperaturas

### 5.5.6. Determinación de las condiciones óptimas de irradiación del TeO<sub>2</sub> en el reactor nuclear.<sup>(61,73)</sup>

Aplicando la expresión ( 4 ) para la irradiación de 1 g de TeO<sub>2</sub> con un flujo de neutrones  $\phi = 6.53 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>seg, para diferentes tiempos, podemos encontrar la curva que nos defina el comportamiento del tiempo de irradiación en función de porcentaje de actividad de saturación obtenida (Fig. 35).

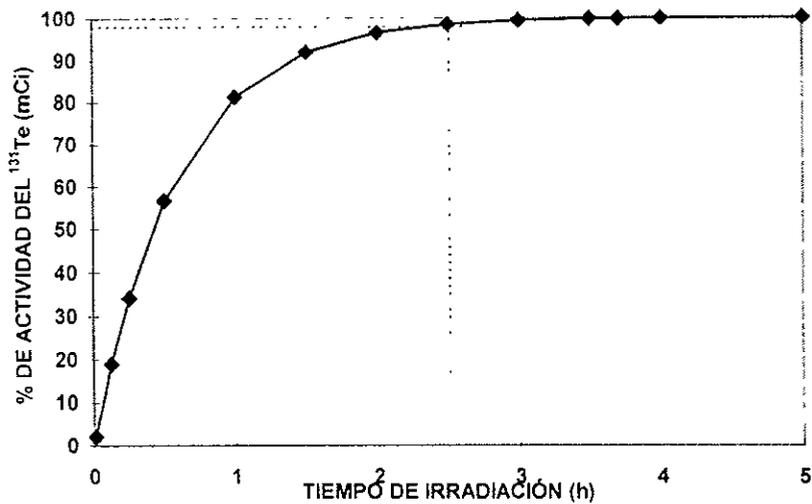


Fig.35. COMPORTAMIENTO DEL <sup>131</sup>Te EN LA IRRADIACIÓN DE TeO<sub>2</sub>

Tomando en cuenta la reacción de obtención de <sup>131</sup>I a partir del isótopo de <sup>131</sup>Te, calculamos el tiempo en que se obtiene la actividad más alta de <sup>131</sup>I, hacemos uso de la gráfica anterior, en la cual se puede apreciar que la actividad máxima de <sup>131</sup>Te se obtiene a las 2.5 h de irradiación que es la actividad de saturación y se alcanza a las 6 vidas medias como tiempo de irradiación, resultando una actividad de 62.3 mCi.

En el caso de decaimiento del <sup>131m</sup>Te a <sup>131</sup>I, debido a que su vida media es mucho mayor a la del <sup>131</sup>Te, por lo que se requiere de un tiempo mucho mayor de

irradiación ( $t = 180$  h aprox.) para llegar a la actividad de saturación que es de 8.62

mCi/g. En la Fig. 36, se aprecia, que para llegar a porcentajes altos de la actividad de saturación, se necesita irradiar tiempos muy grandes.

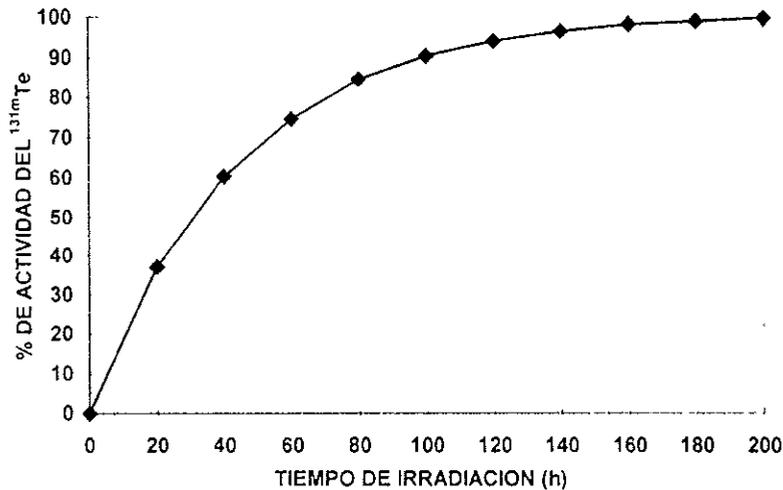


Fig. 36. COMPORTAMIENTO DEL  $^{131m}\text{Te}$  EN LA IRRADIACION DEL  $\text{TeO}_2$

La actividad de saturación del  $^{131}\text{Te}$  [ $t_{1/2} = 25$  min] se alcanza a un tiempo de irradiación de 6 vidas medias, es decir 2.5 horas. Al irradiar más tiempo, obtenemos un crecimiento en la actividad del  $^{131m}\text{Te}$  [ $t_{1/2} = 30$  h] que también decae a  $^{131}\text{I}$ . Sin embargo, el crecimiento en la actividad de  $^{131m}\text{Te}$  es mucho más lento que el crecimiento en la actividad de  $^{131}\text{Te}$  debido a su mayor vida media, y por lo tanto cada microcurie de  $^{131}\text{I}$  obtenido a través del decaimiento del  $^{131m}\text{Te}$  resulta mucho más caro que el obtenido por el decaimiento del  $^{131}\text{Te}$ .

Los valores de 62.3 mCi y 8.62 mCi que corresponden a la actividad obtenida de los isótopos de  $^{131}\text{Te}$  y  $^{131m}\text{Te}$  respectivamente, nos producen la cantidad de  $^{131}\text{I}$  en función de sus vidas medias en el proceso de decaimiento.

### 5.5.7. Determinación de las condiciones óptimas del TeO<sub>2</sub> irradiado para la destilación del <sup>131</sup>I. <sup>(70,71,72)</sup>

Aplicando la ecuación (14) (ver cap. VI.2), encontramos el tiempo (t), óptimo en el cual la muestra de TeO<sub>2</sub> alcanza la máxima actividad, a partir de que se dejó de irradiar, para este cálculo tomamos en cuenta las constantes de decaimiento del <sup>131m</sup>Te, <sup>131</sup>Te y <sup>131</sup>I.

Para <sup>131</sup>Te :

$$\lambda_1 = \text{Constante de decaimiento del } ^{131}\text{Te} = 1.6764 \text{ h}^{-1}.$$

$$\lambda_2 = \text{Constante de decaimiento del } ^{131}\text{I} = 3.59 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}.$$

sustituyendo valores en ( 14 ) cap. VI.2

$$t = \frac{\ln \frac{3.59 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}}{1.6764 \text{ h}^{-1}}}{3.59 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1} - 1.6764 \text{ h}^{-1}} = 3.66 \text{ h} \approx 3.7 \text{ h}$$

Para <sup>131m</sup>Te :

$$\lambda_1 = \text{Constante de decaimiento del } ^{131m}\text{Te} = 0.0231 \text{ h}^{-1}.$$

$$\lambda_2 = \text{Constante de decaimiento del } ^{131}\text{I} = 3.59 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}$$

sustituyendo valores en ( 14 ) cap. VI.2

$$t = \frac{\ln \frac{3.59 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1}}{0.0231 \text{ h}^{-1}}}{3.59 \times 10^{-3} \text{ h}^{-1} - 0.0231 \text{ h}^{-1}} = 95.42 \text{ h} \approx 96 \text{ h}$$

Para comprobar que en este tiempo se alcanza la actividad máxima de <sup>131</sup>I, tomemos en cuenta la irradiación de 1 g de Te natural en el cual la cantidad de núcleos de <sup>130</sup>Te es  $1.627 \times 10^{21}$  ( de acuerdo a la relación isotópica de 0.3448). La muestra fue irradiada con un flujo de neutrones  $\phi = 6.53 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2\text{seg}$ , por un tiempo de 2.5 h (tiempo necesario para llegar a la actividad de saturación en la formación del radioisótopo del <sup>131</sup>Te), la actividad alcanzada fue de 62.318 mCi del isótopo del <sup>131</sup>Te.

Entonces, tomando como base  $A_0 = 62.318$  mCi, y aplicamos la ecuación general de decaimiento (22)

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (22)$$

donde:

$A$  = Actividad final del  $^{131}\text{Te}$

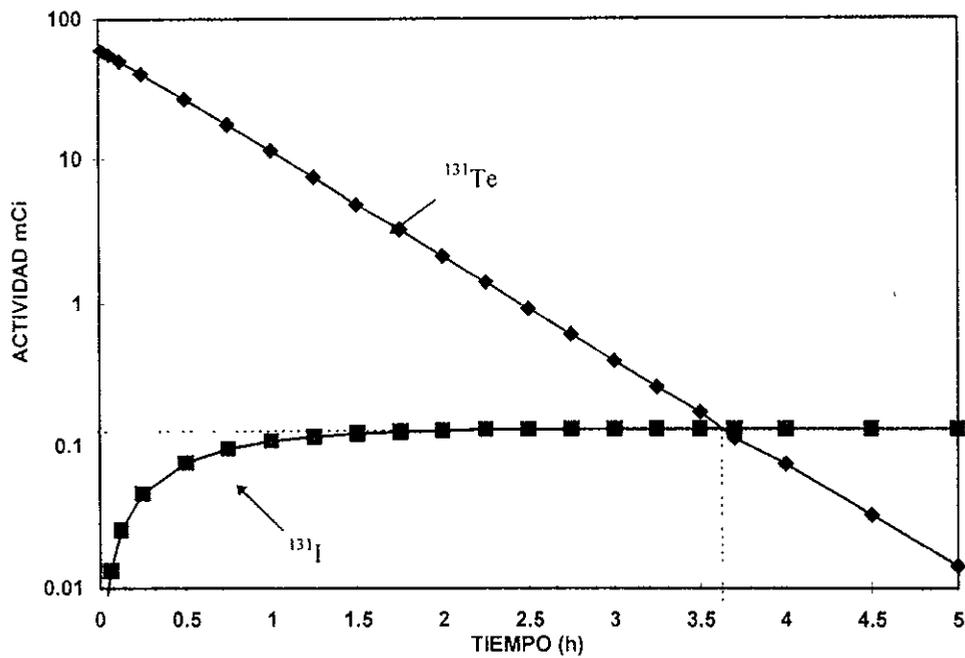
$A_0$  = Actividad inicial  $^{131}\text{Te}$

$\lambda$  = Constante de decaimiento del  $^{131}\text{Te} = 1.6764 \text{ h}^{-1}$

$T$  = Tiempo de enfriamiento del  $^{131}\text{Te} = 3.7$  h. Este valor resulta de la expresión (14), ( ver cap. 4.2), para nuestro caso el  $^{131}\text{Te}$  y el  $^{131}\text{I}$

La actividad  $A = 0.1316$  mCi (131.6  $\mu\text{Ci}$ ) y siendo esta actividad la máxima que adquiere el  $^{131}\text{I}$ , ya que después empieza a disminuir y para calcular la actividad del  $^{131}\text{I}$  al terminar la irradiación despejamos  $A_0$  de la expresión (22) usando naturalmente su propia  $\lambda$ .

Aplicando las ecuaciones (6) y (8) (ver cap. 4.2), para diferentes tiempos de enfriamiento a partir de terminada la irradiación, obtenemos el esquema de decaimiento del  $^{131}\text{Te}$  ( $N_1$ ) y formación del  $^{131}\text{I}$  ( $N_2$ ). El comportamiento se observa en la Fig. 37.



**Fig. 37. ESQUEMA DE DECAIMIENTO DE  $^{131}\text{Te}$  Y FORMACION DE  $^{131}\text{I}$  DESPUES DE LA IRRADIACION DE  $\text{TeO}_2$**

En la Fig. 37 se puede observar, que al irradiarse  $\text{TeO}_2$ , el isótopo  $^{131}\text{Te}$  alcanza una actividad muy alta, pero con su vida media de 24.8 min, que es muy baja comparada con la del  $^{131}\text{I}$ , y a medida que decae el  $^{131}\text{Te}$ , aumenta paulatinamente el  $^{131}\text{I}$ , es un momento crucial y muy interesante el que se presenta en el tiempo de 3.7 h, ya que los dos isótopos adquieren la misma actividad de 0.1316 mCi (131.6  $\mu\text{Ci}$ ) por gramo de  $\text{TeO}_2$  irradiado y además esta actividad es la máxima que adquiere el  $^{131}\text{I}$ , ya que después empieza a decaer según su propia vida media.

De acuerdo a la cantidad de  $^{131}\text{I}$  que se produce por la irradiación de los isótopos de  $^{131m}\text{Te}$  y  $^{131}\text{Te}$  en función del tiempo de irradiación y tiempo de decaimiento, es necesario hacer una comparación en base a la irradiación con diferentes tiempos de muestras de 1 g de  $\text{TeO}_2$  (Tabla 17).

TIEMPO DE IRRADIACION (h)	<sup>131m</sup> Te			<sup>131</sup> Te			<sup>131</sup> I	<sup>131</sup> I
	ACTIVIDAD DESPUES DE LA IRRADIACION (μCi)	ACTIVIDAD 3.7 h DESPUES DE LA IRRADIACION (μCi)	ACTIVIDAD 96 h DESPUES DE LA IRRADIACION (μCi)	ACTIVIDAD DESPUES DE LA IRRADIACION (μCi)	ACTIVIDAD 3.7 h DESPUES DE LA IRRADIACION (μCi)	ACTIVIDAD 96 h DESPUES DE LA IRRADIACION (μCi)	OBTENIDO A LAS 96 Hs DESPUES DE LA IRRADIACION (μCi/g)	OBTENIDO A LAS 96 Hs DESPUES DE LA IRRADIACION (mCi/100g)
2.5	645.5	592	64.45	62314	126.9	91.10	155.55	15.55
20.0	4256.0	3990	463.35	63270	128.9	92.54	555.89	55.58
60.0	8627.0	7920	862.25	63270	128.9	92.54	954.79	95.47

Tabla No. 17. Actividad producida por efecto de la irradiación de los isótopos de <sup>131m</sup>Te y <sup>131</sup>Te

En la tabla No. 17, se observa lo siguiente:

- 1 Para el <sup>131m</sup>Te: La actividad obtenida a las 96 hs después de la irradiación, es igual a la de <sup>131</sup>I, ya que están en equilibrio el <sup>131m</sup>Te y el <sup>131</sup>I.
- 2 Para el <sup>131</sup>Te: La actividad obtenida a las 96 hs después de la irradiación, se consideran también <sup>131</sup>I, ya que el equilibrio se encuentra a las 3.7 h de después de la irradiación, es decir, 92.3 h después del equilibrio.
- 3 La suma de los 2 puntos anteriores nos dan la cantidad de <sup>131</sup>I en μCi/g y por consiguiente en 100 g de TeO<sub>2</sub> (última columna).

Por lo tanto con un tiempo de irradiación de 2.5 hs y un tiempo de decaimiento de 96 hs se llega a obtener 155.55 μCi/g de <sup>131</sup>I, con 20 hs de irradiación es decir 8 veces más, se obtienen 555.89 μCi de <sup>131</sup>I equivalente a 3.57 veces más; También, si se irradian 60 hs, es decir 24 veces más, se obtienen 954.79 μCi/g de <sup>131</sup>I equivalentes a 6.13 veces más.

Entonces, no es conveniente irradiar mucho tiempo debido al alto costo por hora de irradiación comparado con el costo del <sup>131</sup>I al ser vendido en el mercado, por ejemplo, llevando a cabo 3 irradiaciones de 2.5 hs cada una, la actividad obtenida de la suma de las 3, es aproximadamente igual a la actividad que se obtiene cuando se irradia 15 h.

Por otro lado, para seleccionar el tiempo de enfriamiento, vemos que a las 3.7 hs después de la irradiación, se obtiene la máxima cantidad de <sup>131</sup>I proveniente del

$^{131}\text{Te}$ , sin embargo, en este tiempo la cantidad de  $^{131}\text{I}$  proveniente del  $^{131\text{m}}\text{Te}$  es muy pequeña ya que este, alcanza la máxima actividad hasta las 96 hs. En este tiempo, la cantidad del  $^{131}\text{I}$  que ha decaído proveniente del  $^{131}\text{Te}$  es el 29.156 %. Este porcentaje es pequeño, comparado con la cantidad de  $^{131}\text{I}$  que se gana a partir de  $^{131\text{m}}\text{Te}$ . Además dejando enfriar la muestra 96 hs después de la irradiación, nos permite que en este tiempo decaigan los demás isótopos presentes en la muestra como impurezas (ver Fig. 28). Esto nos garantiza obtener el  $^{131}\text{I}$  con alta pureza.

Por lo tanto, el tiempo óptimo de irradiación es de 2.5 hs y el tiempo óptimo de enfriamiento, es decir, el tiempo necesario para poder destilar (separar el  $^{131}\text{I}$  del  $\text{TeO}_2$ ) es de 96 hs.

#### **5.5.8. Determinación de las condiciones óptimas para la destilación del $^{131}\text{I}$ del $\text{TeO}_2$ irradiado.<sup>(73)</sup>**

Durante el proceso de destilación de  $^{131}\text{I}$ , es necesario romper los poros del sinterizado en los cuales se encuentra el  $^{131}\text{I}$  atrapado. Para lograr esto, es necesario aumentar la temperatura (temperatura de destilación) hasta llegar a fundición del  $\text{TeO}_2$ , de tal forma que desaparezcan los poros, y de esta forma el  $^{131}\text{I}$  es liberado en forma gaseosa. Por lo tanto la temperatura de destilación debe ser mayor de 733 °C (temperatura de fusión del  $\text{TeO}_2$ ). Para nuestro caso particular se seleccionó la temperatura de 800 °C. Ya que esta temperatura nos asegura una fundición completa del  $\text{TeO}_2$ .

Una vez que es liberado el  $^{131}\text{I}$  de la matriz de  $\text{TeO}_2$ , es arrastrado con una corriente de aire seco con una presión de 2.5 mm de Hg suficientes para hacerlo llegar a los receptores y diluirlo en NaOH (0.1N)

Para comprobar la importancia que tiene optimizar los parámetros del proceso de obtención de  $^{131}\text{I}$ , se prepararon 39 g de  $\text{TeO}_2$ , aplicando las condiciones óptimas en la obtención del  $\text{TeO}_2$ , y en la sinterización del  $\text{TeO}_2$ , y se irradiaron en un reactor nuclear, tipo piscina, Modelo RP-10, con potencia de 10 MW en el

Instituto Peruano de Energía Nuclear (IPEN), el flujo de neutrones fue  $\phi = 1.36 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>seg y un tiempo de irradiación de 11.55 h.

La actividad de <sup>131</sup>I en la muestra fue de 655 mCi, es decir antes de la destilación seca (llevada a cabo en el IPEN) y después de la destilación, en los residuos del TeO<sub>2</sub> sobrante, fue de 0.0406  $\mu$ Ci. Los apéndices 2, 3 y 4, muestran los resultados del estudio llevado a cabo:

Apéndice 2. El análisis por espectrometría de la muestra después de la irradiación, que contiene todos los isótopos formados.

Apéndice 3. El análisis por espectrometría, muestra la región de interés, que es donde se encuentran, las principales energías del <sup>131</sup>I.

Apéndice 4. El análisis del sólido residual, después de la destilación.

## CAPITULO 6

### CONCLUSIONES

El equipo de obtención de  $\text{TeO}_2$  nos permite obtener el  $\text{TeO}_2$  necesario para cubrir la demanda nacional de la producción de  $^{131}\text{I}$  y exportar, además en este equipo se optimizaron los parámetros cinéticos que rigen el proceso de obtención de  $\text{TeO}_2$ .

Estos experimentos de obtención de  $\text{TeO}_2$  nos ayudaron principalmente para confirmar, que se trabajó por una vía correcta para producir el  $\text{TeO}_2$  para obtener el  $^{131}\text{I}$ . Del resultado de los análisis del  $\text{TeO}_2$  como etapa final del proceso de preparación del  $\text{TeO}_2$  para su irradiación en el reactor nuclear se concluye lo siguiente: aplicando la técnica analítica por microscopía electrónica se pudo mejorar la pureza del producto, el tamaño de grano y el tamaño de poro, se perfeccionó el equipo de proceso de producción para eliminar posibles contaminantes orgánicos e inorgánicos y mejorar el proceso de secado, de esta forma se obtuvo el  $^{131}\text{I}$  con mejor calidad.

En el presente trabajo se demostró la factibilidad del equipo de obtención de  $\text{TeO}_2$ , en cuanto a su funcionamiento de los componentes mecánicos, de vidrio y de equipo periférico auxiliar. La producción del  $\text{TeO}_2$  es de alta calidad ya que en base al sistema cerrado con que cuenta nos permite alcanzar una alta pureza.

Estos estudios de la cinética de reacción nos sirven para darnos cuenta del comportamiento de la temperatura durante el transcurso de la reacción en los 7 experimentos. Posteriormente se realizaron los análisis por microscopía electrónica a cada uno de los productos de los 7 experimentos para determinar la calidad y tamaño de grano y de esta forma se seleccionará la temperatura óptima.

De los análisis anteriores podemos obtener cual es la temperatura óptima para obtener  $\text{TeO}_2$  con fines de producción de  $^{131}\text{I}$  por las siguientes razones:

- 1° Los porcentajes de oxígeno en el pulverizado adquieren valores similares en los 7 experimentos.
- 2° Los porcentajes de oxígeno en el sinterizado adquieren valores más altos a temperaturas entre 100 y 150 °C y después disminuye.
- 3° Existen mayores porcentajes de oxígeno en el sinterizado que en el pulverizado (ver tablas 10 y 11) principalmente a temperaturas entre 100 y 150 °C.
- 4° Debido a los puntos anteriores es posible pensar que la región entre el Oxígeno del  $\text{TeO}_2$  pulverizado y el Oxígeno del  $\text{TeO}_2$  sinterizado (Fig. 25) se debe al oxígeno que se encuentra en los poros del sinterizado y a la vez esta región nos indica el grado de porosidad logrado a temperatura de sinterización de 732 °C por 5 minutos, empleando un  $\text{TeO}_2$  obtenido a temperatura entre 100 y 150 °C.

5° Por lo tanto, la temperatura óptima de obtención de TeO<sub>2</sub> es de 125 °C (de valor medio) que nos garantiza la mayor retención de <sup>131</sup>I una vez sinterizado.

6° Los parámetros del proceso de obtención de TeO<sub>2</sub> serán:

PRESION DE REACCION (P) mm de Hg	CONSTANTES DE VELOCIDAD DE REACCION (k) min <sup>-1</sup>	ENERGIA DE ACTIVACION (Ea) Cal/g mol	FLUJO DE AIRE (w) l/min	TEMPERATURA DE REACCION (T) °C
12	1ª Etapa = 0.61 2ª Etapa = 12.7x 0 <sup>-4</sup>	457.81 1ª Etapa 4700.85 2ª Etapa	35	125

Tabla No. 17

Se tiene la seguridad que al sinterizar el TeO<sub>2</sub>, nos facilita el proceso de producción de <sup>131</sup>I, porque de esta manera el TeO<sub>2</sub> atrapa al <sup>131</sup>I en su porosidad, a medida que van decayendo los isótopos <sup>131</sup>Te y el <sup>131</sup>Te<sup>m</sup>. Además se manipula mejor el TeO<sub>2</sub> durante el proceso de irradiación y durante el proceso de destilación del <sup>131</sup>I ya que si fuera pulverizado la pérdida de <sup>131</sup>I gaseoso sería mayor.

Para poder comprobar el poder de retención del <sup>131</sup>I en el TeO<sub>2</sub>, se irradiaron dos muestras, una pulverizada y otra sinterizada, bajo las mismas condiciones de masa, tiempo de irradiación y flujo de neutrones y posteriormente se tomaron las lecturas de actividad en el mismo momento a las dos muestras, en intervalos de tiempos de 24 horas, la actividad del <sup>131</sup>I en la muestra sinterizada se conservó más que en la pulverizada.

Como se puede observar, en esta etapa del proceso, se pensó que podríamos sinterizar el TeO<sub>2</sub> por arriba de la temperatura media de fusión del TeO<sub>2</sub> de 366.5 °C con los tiempos de 3.5, 5.0, 7.5 y 10 min. Sin embargo, el primer sinterizado se obtuvo hasta los 550 °C con tiempo de 10 min. En base a las irradiaciones de las

muestras sinterizadas pudimos seleccionar la muestra que retuvo mayor cantidad de  $^{131}\text{I}$  después de la irradiación, que fue la muestra No. 13 con 569  $\mu\text{Ci}$  la cual fue sinterizada a 732 °C con un tiempo de 5 min. Estos parámetros son los óptimos para sinterizar el  $\text{TeO}_2$  para la producción de  $^{131}\text{I}$ .

Este método de destilación seca para obtener el  $^{131}\text{I}$ , es confiable y seguro, el cual nos brinda un producto con un grado de pureza aproximadamente del 99.9 %, aplicando una temperatura de destilación por arriba de la temperatura de fusión del  $\text{TeO}_2$  de 733 °C, debido a que las condiciones de trabajo de los medidores de temperatura oscilan  $\pm 4$  °C. Por lo tanto, para asegurarnos de una temperatura que nos garantice la liberación de  $^{131}\text{I}$  del  $\text{TeO}_2$  sinterizado la temperatura óptima de destilación es 800 °C.

Los aspectos más relevantes, que aporta este trabajo en el área de las ciencias nucleares, es el haber desarrollado las técnicas de producción y analíticas del  $\text{TeO}_2$  correlacionadas con las técnicas de irradiación del mismo  $\text{TeO}_2$  para poder optimizar todos los parámetros que intervienen en lograr este Nuevo Método de Obtención de  $^{131}\text{I}$  por Destilación Seca a Partir del  $\text{TeO}_2$ , el cual es diferente a los que actualmente existen, ya que este método tiene características diferentes desde el punto de vista de obtención y preparación de la materia prima, que es el telurio (te) y principalmente la separación radioquímica, tal es el caso del principio fundamental de la separación del  $^{131}\text{I}$  del la matriz de  $\text{TeO}_2$  irradiado durante la destilación, además este proceso cuenta con equipos especiales diseñados en base al estudio de la optimización de los parámetros que intervienen el proceso , como es el caso del  $\text{TeO}_2$  al que corresponden los parámetros: tamaño y forma de grano, temperatura de obtención y sinterizado, porosidad; tiempos de irradiación y enfriamiento y temperatura a la cual se somete el  $\text{TeO}_2$  para destilar el  $^{131}\text{I}$  como producto final.

Por lo tanto, se abre una nueva forma de estudiar y caracterizar las reacciones químicas y nucleares que intervienen en procesos de producción de radioisótopos

Finalmente todos estos estudios, que van desde la cinética de la reacción de obtención del  $\text{TeO}_2$ , la construcción del equipo de obtención del  $\text{TeO}_2$ , la aplicación de las técnicas analíticas de microscopía electrónica y difracción de rayos X, el desarrollo de la técnica y estudios de sinterizado de  $\text{TeO}_2$  y los experimentos de irradiación, contribuyeron para caracterizar con más precisión el "nuevo proceso de obtención de  $^{131}\text{I}$  por vía seca a partir del Te" desarrollado en el ININ, y de esta forma se logró un producto más puro, más económico, con menos riesgos, desde un punto de vista de Seguridad Radiológica y sobre todo que evita la importación al país y hace a México autosuficiente en la producción de  $^{131}\text{I}$ .

## REFERENCIAS

- 1) Lagowski J. J. Química Inorgánica Moderna. Ed. Reverté España 1978
- 2) Kirk-Othmer. Encyclopedia of Chemical Technology. Ed. Board, 3ª ed. Vol. 22, 1978.
- 3) Cotton y Wilkinson. Química Inorgánica Avanzada. Ed Limusa- Wiley, 2ª Ed. 1973. México D.F.
- 4) Omar Palacios Gonzalez. Tesis de licenciatura: Diseño y Construcción de un Prototipo de Destilación de  $^{131}\text{I}$  por Vía Seca. Instituto Tecnológico de Toluca, 1993.
- 5) Chart of the Nuclides. Knols Atomic Power Laboratory . General Electric Company. Naval Reactors, U : S : Departament of Energy. Thirteenth Edition Revised to july 1983.
- 6) Irgolic, K.J. The Organic Chemistry of Tellurium. Gordon and Breach Csience Publishers, In., New York, 1973.

- 7) W Hayden. Procesos en Ciencias de Materiales. Caps. 1, 6 y 9. Tomo 3, 1989.
- 8) Alanis Morales J. Un Nuevo Método Por Vía Seca de Obtención de  $^{131}\text{I}$  por Irradiación Neutrónica de  $\text{TeO}_2$ . Tesis de Maestría en Ciencias Nucleares, Facultad de Química UNAM. 1996.
- 9) Correia A : E. A. Mitta. Manual de controles Radiofarmaceuticos. Buenos Aires, Argentina, 1970.
- 10) Roque, J. Alanis y M. Navarrete. Diseño y Construcción de un Prototipo para la Obtención de  $\text{TeO}_2$ . VIII Congreso Anual de la Sociedad Nuclear Mexicana, Nov-1997.
- 11) J. Alanis. Obtención de  $^{131}\text{I}$  por Destilación Seca de Telurio y/o Dióxido de Telurio. Informe Técnico MR-RAD-04. Centro Nuclear de México (ININ), 1993.
- 12) Technical Reports Series. Manual radioisotope Production. International Atomic Energy agency. Vienna Austria, 1966.
- 13) J. Alanis. Obtención de  $\text{TeO}_2$ . Informe Técnico MR-RAD-03. Centro Nuclear de México (ININ), 1991.
- 14) J. Alanis, I. Roque, M. Navarrete. Obtención y Sinterizado de  $\text{TeO}_2$  para la Producción de  $^{131}\text{I}$ . VIII Congreso Anual de la Sociedad Nuclear Mexicana, Nov-1997.
- 15) J. Alanis , M. Navarrete. Cinética del Proceso de Obtención de  $\text{TeO}_2$  para la Producción de  $^{131}\text{I}$  en el ININ. IX Congreso de la SNM y XVI Reunión Anual de la SMSR. 29 sep-2 de oct. Oaxaca Oax. México, 1998.
- 16) F. Orozco D. Análisis Químicos Cuantitativos. Ed. PORRUA S. A., 1989, 214-235, México D. F.
- 17) Ya Guerasminov, V. Dreving. Curso de Física Química. Segunda edición 1977. Edit. MIR, Moscu.
- 18) J. Alanis , M. Navarrete. Optimal Parameters to Produce  $^{131}\text{I}$  by Neutron Irradiation and Melting of Sintered Tellurium Dioxide. Symposium on Radiation Measurements and applications" mayo 11-14 , The University of Michigan, U.S.A., 1998

- 19) W. Leddicotte. The Radiochemistry of Tellurium. National Academy of Sciences U. S. Atomic Energy Commission Washington 25 D. C. 1961.
- 20) Raddecay 2.02. For the PC 2.1. Grove Engineering, Ing. Software, october, 1987.
- 21) Manuel Navarrete, Luis Cabrera, Introducción al Estudio de los Radioisótopos. Facultad de Química, UNAM, 2º Edición, 1993.
- 22) Edwards-Penney. Ecuaciones Diferenciales Elementales. Edit. Prentice-Hall, 1979.
- 23) A. Rodríguez. Determinación de la Composición Estructural de Muestras de Te Elemental y TeO<sub>2</sub> por Espectroscopía Vibracional y Termogravimetría. Informe Técnico- CB-97-01. Enero, 1997.
- 24) G. Choppin, J. Rydberg. Nuclear Chemistry. Pergamon Press G. B. 1980.
- 25) Aw, Feng John W. More, William Harwood, Robert B. Gayhart. Software ; VERSION 4.1. ; october 1988. Division of Chemistry of the American Chemical Society.
- 26) Vicent López-Majano, M. D. Nuclear Medicine Basics. Chairman-Nuclear Div. Cook County Hospital. 1825 Wes Harrison Street. Chicago, Illinois 60612, 1979.
- 27) Radioisotope Production and Quality Control. Series : International Atomic Energy Agency, Vienna Austria, 1971.
- 28) Navarrete, L. Cabrera, T. Martínez, J. Lartigue, J. Alanis. A simple equation to calculate the necessary time to get the equilibrium between radioactive pairs. Fourth International Conference and Applications of Radioanalytical Chemistry. American Nuclear Society. Kailua-Kona, Hawaii, U. S. A. Abril 6-11, 1997
- 29) Juan azorin Nieto. El Sistema Internacional de Unidades (SIU) y las Ciencias Nucleares. Revista del Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares, 1968.
- 30) Series 1. IAEA, International Atomic Energy Agency. Vienna Austria, 1962.
- 31) Bruce F. R. Mc. Graw Hill. Progres in Nuclear Energy. Series III. Process Chemistry. New York, 1956.

- 32) Getoff, N. Parker. W. Separation of Radioiodine from tellurium by Means of Column Chromatography. Nature London, 1963.
- 33) Chiotan. C. Preparation of Iodine-131 with high Specific Activity. 1961
- 34) Chien-Chang Lin, Chau-Ting Chang. Preparation of Carrier-Free <sup>131</sup>I with Adsorption Method. Nipon, 1963.
- 35) S. Burgess E. J. Partington. Radiation Decomposition Effects in Aqueous Solutions of carrier-free Sodium Iodine I-131. The Radiochemical Center Amersham Buchs. March, 1960.
- 36) W. Leddicotte. The Radiochemistry of Tellurium. National Academy of Sciences. National Research Council, 1961.
- 37) Jacqueline Beydon, Constancia Pagano Goncalves Da Silva. Production de L'Iode á partir de Tellure Elementaire Irradié a la pile, par Andre Brady. Centre d' Etudes Nucleaires de Saclay, Francia, 1967.
- 38) Antonio Ponce M. Publicación de difusión. El Reactor triga Mark III del Centro Nuclear de México. Centro Nuclear de Néxico (ININ), 1980.
- 39) José A. Babor- José Ibarz Aznarez. Química General Moderna. Edit. Nacional. 9ª Edición, 1979.
- 40) Guidebook. Measurement of Radionuclides in Food and the Environment. International Atomic Energy Agency . Vienna Austria, 1989.
- 41) Wulff John . Ciencia de Materiales. Cap. 6,9. Tomo 3, 1986.
- 42) Prakongvong, P. A Study on the Separation of Iodine-131 from Neutron Irradiated Tellurium Compounds by the Method of Dry Distillation. Bangkok (Thailand) Chulalongkorn Univ. 1978, p. 75.
- 43) Medical Isotopes Production Proje: Molybdenum-99 and Related Isotopes. USDOE Office of Nuclear Energy, Science and Technology, Waschingon, DC (Unites States), Apr. 1996. P. 453.
- 44) Abdukayumov, M.N. Asharov, T.B. Chistiakov. Production of Radioactive Isotopes at the Institute Nuclear Physics of Uzbekistan Academy of Sciences and its enterprices. Aug. 1999. P. 23-27.
- 45) Optimitation of Production and Cuality Control of Therapeutic Radionuclides and radiopharmaceutical. Final Report co-ordinate Research Proje 1994-

1998. International Atomic Energy Agency, Vienna (Austria). Sep 1999. P. 100.
- 46) Harris, K.J. Neutron Irradiations in Australia. International Symposium on Research Reactor Utilization, Safety and Management Lisbon (Portugal) sep. 1999 p. 6-10
- 47) Anathakrishnan, M. Ramaswamy, A.N; Nagaraje, P.S. Kole, O.T Large Scale Production of Radioisotopes from Research for Medical and industrial Applications: Indian Experience. International Symposium on Research Reactor Utilization, Safety and Management Lisbon (Portugal) 6-10 sep. 1999.
- 48) Mondini, A. V.; Cols, H: J.; Cristiani . P. R. ; Furnari, J. C: Separation of Iodine Produced from Fission with a Porous Metal Silver in <sup>99</sup>Mo Production. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. Jun. 1999 v. 240 (3) p. 731-734.
- 49) Freud, A.; Hishfeld, N.; Canfi, A.; Melamud, Y. Production of <sup>131</sup>I Gelatin Capsules. Israel Atomic Energy Commisision (israel) Israel Atomic Commission 1997 Annueal Report 1977, 113 p.p. 51-65.
- 50) Jim, S. Nuclear Medicine in China. ANZ- Nuclear- Medicine (sep 1998) v. 29 (3) p. 23-24.
- 51) Cabalfin, E:G; Development of Radioisotope Production in the Philippines ( Philippine Nuclear Research Institute, Quezon Philippines). 1997 Workshop on the Utilization of Research Reactors Bandung (Indonesia) 6-13, Nov. 1997.
- 52) Sood, D:D: Changing Scenarios in Isotope Production and Utilization. INSAC-97: International Conference on Problems and Prospects for Nuclear Energy in the Developing Countries Mumbai (India) 21-25 jul. 1997.
- 53) Khukhuzhaev, S.; Aripov, D.; Urumbaev, I: T; Abdukayumov, M. Shurkurov, A., Rikisiev, A. Z. The Method of Obtaining <sup>131</sup>I for its Implementation. Davlat Patent Idorasi. Jun 1994. 272 p. p. 88-89
- 54) Zvonarev, A:V; Koloskov, B.V.; Kotchekov, L:A; Isotope Production in fast Reactor Blankets. Transitions of the American Nuclear Society. (1993). V. 67 (Suppl. 1). P. 457-458. U.SA.

- 55) Baranyai, L.; Koernyei, J.; Miller, J.; Radioisotope Production Based on the 10-MW Research Reactor of the Isotope Institute Hungary. *Itd. Izotoptchinka,-Diagnosztika*. (1994), v. 37(4). P. 225-226. Ungria.
- 56) Radiochemical Separation of  $^{131}\text{I}$  from Irradiated Natural Uranium and Tellurium Dioxide by Solvent Extraction Using Dibenzo- 18-crow-6. Iraq Atomic Energy Commission, Baghdad (Iraq), Nuclear Research Centre. Annual Report. 1988. (200 p.)p.105.
- 57) Yoon,-Byung-Mok (HANARI Center, Korea Atomic Energy Research Institute, Taejon (Korea, Republic of ). Recent Progress in Develoment of Radioisotope production. Japan Atomic Energy Research Inst., Tokyo (Japan) Proceedings of the 1997 Woorkchop on the Utilization of Research Reactors. Oct. 1998 509 p.p. 289-306.
- 58) Strezov,-A; Porozzhanov,K (IRRNE, Sofia (Bulgaria). Distillation Equipment for the Production of Pharmaceuticals. *Dokladi-na-BYaD(1998)* v. 3(1)p. 88-90.
- 59) Medical Isotopes production Project: Molybdenum-99 and Related Isotopes: Environmental Impact Statement, Volume I. USDOE Office of Nuclear Energy, Science and Technology, Washington, DC (Unites States). Apr. 1996. 453 p-
- 60) Wafelman , A.R. Radiochemical Purity, at Expiry, and Radiochemical Stability of Iodine-131 Labelled meta-iodobenzylguanidine concentrates for intravenous infusion.U.S.A, 1996.
- 61) Hathot, J. H. The Release of radioiodine-131 from the Iraqui IRT-5000 Reactor. Center, Iraqui Atomic Commission, Tuwaitha- Baghdad, p.o.bos 765, Iraq. 1996.
- 62) Parish, T.A.; Lelsey, C T. TAMREAC2: Amodern Code for Calculating Sample Activación. Transactions. American Nuclear Society (ANS) annual meeting. San Diego, CA (united States). 20-24 june 1993.
- 63) Radioisotopes , AECL's bread and butter business. *Ascent –Canada*. (win 1984-win 1985). V. 5 (3)p.26-27.

- 64) Lee,-Ji-Bok; Lee-Chang-Kun, J.E.; Juhn, -Byng-Jim; Choi,-Byung-Ho. TRIGA mark-iii, Reactor operation. Korea Advanced Energy Research Inst. (Republic of Korea). Mar.1985. 77 p.
- 65) Engholom, B.A. Cheng, E.T. Schutz K.R. Radioisotope Production in Fusion Reactors. Fusion-Technology- USA (nov 1996). V. 10(3)p. 1290-1296.
- 66) Shou.-Yong-Tian. Present Status and Prospect of Radiation and Radioisotopes in China. Nippon Conference on Radiation and Radioisotopes . Tokyo (japan). 2-4 sep. 1995.
- 67) Matsuura,T. Nagahara, T. Hattori, M. Kawaguchi, K. Plan of Studies on Fuel Failure Detection in Rikkio Research Reactor.Inst. for Atomic Energy , Rikio Univ. Jul 1997. 547 p.p. 259-254.
- 68) Tang-Jingjuan; Ye-Minglu; Mao-Yun; Lu-Shijun,; Tng.Zhihua. Removal of Radioiodine from Nuclear-fuel-reprocessing off-gases with silver-nitrate – impregnated silica gel. Journal- of radianalytical and Nuclear Chemistry Letters (12 oct. 1997).v.119(2)p. 109-118
- 69) Owlya, A. Radioisotope Programme in Iran.National Conference on Nuclear Science and Technology in Iran VI. 2 Proceeding of the National Conference at Bushehr, 14-19 mar. 1995.
- 70) Marchand. L. Irradiation Performances at the osiris Reactor for the production of radioisotopes for Medical Use: Mo-99, I-131 and Xe-133. Revue-IRE (Dec 1988). V. 12 (4)p. 18.26.
- 71) Dellamono, J.C. Techniques of Tratment or Conditioning for Waste Arising from  $^{131}\text{I}$  Production. Instituto de pesquisas Energeticas e Nucleares, Sao Paulo, SP (Brazil), jul.1998. 21 p.
- 72) Caisigla H.T. Goncalves, R. da S:V;; Silva, C.P. –da. Coordenadoria de Aplcacao de tecnicas de Nucleares. Activites report-1998. 74 p.p.p 5-6.
- 73) Pereira N.S.P. –de Achando, E. ; Babosza M.R.F. de Silva. Quality Control. Isotope Production. Coordenadoria de aplicacao Tecnicas Nucleares. Relatorio de Actividades-1998. Jul. 1999. 74 p.p. 12. Brazil.
- 74) Salscz, j. Production of Fission  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{131}\text{I}$  and  $^{133}\text{I}$ . Internationa Atomic Energy Vienna (Austria. 13-16 October 1987. 155 p.p.

- 75) The Research Group. Radioisotope Production. National Accelerator Centre, Faure (South Africa). Annual report june 1986. 282 p.p. 154-162
- 76) Constant, R.J., Gens.R.F. Heeren L.L. Jacquemin R.A. Radioisótopes production Programes for reactor Radioisotopes.Proceedings of a Colloquium Held in Patten (Netherlands), 20-21 April 1998
- 77) Villarreal, B. J. E. ; Molina, -G. Lessons Learnt the Incident of Contamination with I-131 in the Radioisotope Production Departamente at the ININ. Seguridad- Radiológica (sep 1991). No. 5 p. 178 México.
- 78) Le -Van-So. Production of Radiopharmaceuticals. Pt. G. Nuclear Research Inst., Da Lat(Viet Nam). Report Of Activities 1986-1990.jan 1991. 72 p.p. 49-56.
- 79) Mengati J. ; Gasiglia, H.T. Yanagagua S.T.I. Production of New Primary Radioisotopes and Production Increase of the Existent ones. Coordinadoria de Aplicaao de Tecnicas Nucleares.Activities Report.-1998. Jul 74. P.p 63 Brazil
- 80) Baugent J.M.; Blondeel, G. Irradiation of  $^{235}\text{U}$  at the BR2 Reactor for the production of  $^{99}\text{Mo}$  and  $^{131}\text{I}$ .International Atomic Energy Agency , Vienna (Austria). Molybdenum for Medical Use. 13-16 Octover 1987. Jun 155 p.p. 137-139.

## APENDICE

# Apéndice 1. PROPIEDADES NUCLEARES DEL $^{131}\text{I}$

## A. VIDA MEDIA

8.5 Días

## B. TIPO DE ENERGÍA Y ENERGÍA EN MeV.

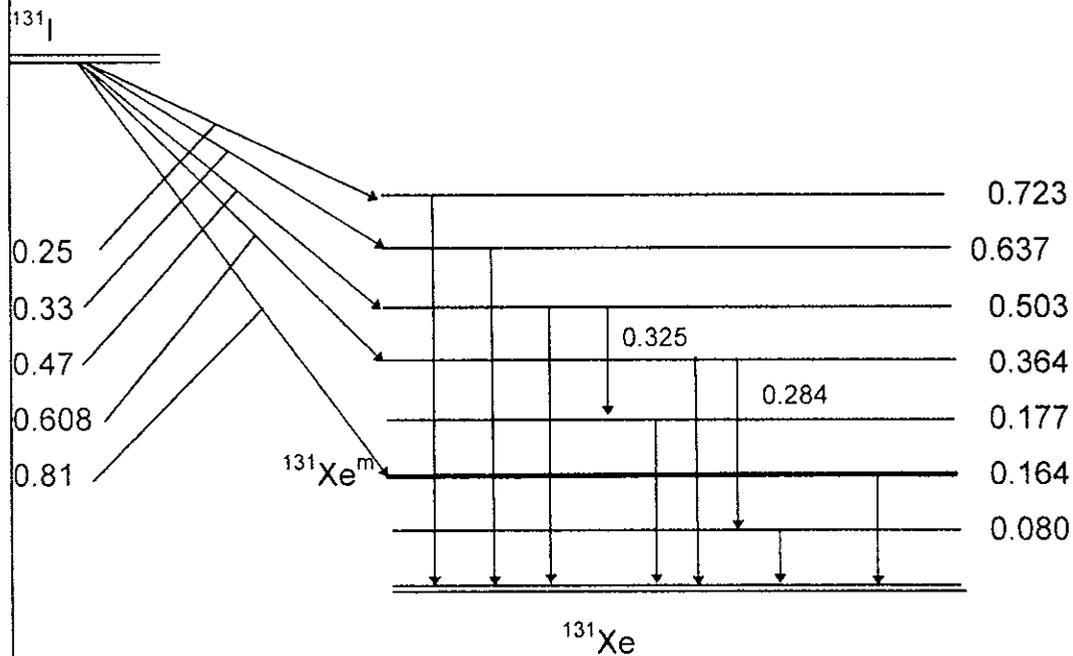
Beta  $\beta^-$

0.25 (1.6 %)  
 0.33 (6.9 %)  
 0.47 (0.5 %)  
 0.608 (90.4 %)  
 0.81 (0.6 %)

Gamma  $\gamma$ :

0.080 (5.0 %)  
 0.177 (0.2 %)  
 0.284 (5.0 %)  
 0.325 (0.2 %)  
 0.364 (85.5 %)  
 0.503 (0.3 %)  
 0.637 (6.9 %)  
 0.723 (1.6 %)  
 0.164 (0.6 %)  
 vía 11.8 días  $^{131}\text{Xe}^m$

## C. ESQUEMA DE DECAIMIENTO:



**Apéndice 2. Espectrometría del TeO<sub>2</sub> irradiado.**

ISÓTOPO	Desde (KeV) A (KeV)	Cuentas Totales cps	AREA (% error)	Pico (KeV) FWHN (KeV)	Energía (KeV)	Fracción porcentual
<sup>131</sup> I	77.9	15570	3698	81.1	80.18	.026
	83.6	31.14	5.83	1.62		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	100	17106	3951	102.2	102.06	.0744
	104	34.21	4.29	1.28		
<sup>129</sup> Te	105	5218	580	105.7	105.5	.0023
	106.8	10.64	5.16	0.35		
<sup>125</sup> Te <sup>m</sup>	107.9	9258	509	109.5	109.28	.0023
	111.1	18.52	16.82	1.16		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	147.1	31622	18088	150	149.7	.242
	152.8	63.24	1.66	1.43		
<sup>123</sup> Te <sup>m</sup>	155.3	83664	69688	159.3	159	.841
	162	167.33	0.71	1.49		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	180.9	6481	349	182.7	182.25	.0074
	184.1	12.96	20.54	1.09		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	196.7	10879	2997	200.9	200.6	.0755
	202.8	21.76	4.59	1.19		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	238.7	9807	3635	241.3	240.93	.0759
	243.6	19.61	4.10	1.37		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	276.8	4981	424	278.9	278.56	.0778
	280.3	9.96	17.96	1.22		
<sup>131</sup> I	282.5	5150	584	284.5	284.3	.0605
	286.4	10.30	15.13	1.39		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	332.4	71.88	2479	334.7	334.27	.0957
	336.6	14.38	4.90	1.39		
<sup>131</sup> I	361.9	15962	11174	364.8	364.48	.8116
	367.6	31.92	1.90	1.62		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	449.6	3474	1347	452.7	452.32	.0155
	455.3	6.95	7.40	1.53		
<sup>129</sup> I	457.7	4135	1902	459.8	454.60	.0710
	462.1	8.27	5.19	1.46		
<sup>121</sup> Te	505.2	3457	1655	507.9	507.59	.1767
	510.5	6.91	5.86	1.57		

**Apéndice 2. Espectrometría del TeO<sub>2</sub> irradiado (continuación)**

<sup>122</sup> Sb	561.5	21628	18619	564.5	563.93	.70648
	567.2	43.26	1.31	1.74		
<sup>121</sup> Te	570.4	9084	7025	573.5	573.14	.803
	576.1	18.17	2.27	1.73		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	585.0	1187	172	586.6	586.30	.01976
	588.6	2.37	22.52	1.27		
<sup>131</sup> Te	600	3702	2465	603.1	602.04	.042
	606	7.40	4.24	1.85		
<sup>131</sup> I	634.5	1372	475	637.2	636.97	.0726
	640.2	2.74	13.37	1.71		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	662.7	1398	699	665.4	665.05	.0434
	668.4	2.80	9.10	1.54		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	711.5	742	221	713.5	713.10	.014335
	716.5	1.48	19.45	1.67		
<sup>131</sup> I	721.5	599	105	723.3	722.89	.018
	725	1.20	26.69	0.93		
<sup>129</sup> Te <sup>m</sup>	727.5	572	107	730	729.57	.007629
	731.8	1.14	10.68	1.87		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	771	6382	5746	774.1	773.67	.382
	777.7	12.76	2.34	2.0		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	779.9	1574	1096	782.0	782.9	.0779
	785.6	3.15	6.08	2.03		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	791.3	2293	1764	794.2	793.75	.1387
	797	4.59	5.54	1.95		
<sup>121</sup> Te <sup>m</sup>	820.9	1115	555	823.2	822.78	.0612
	825.5	2.23	9.28	1.41		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	849.4	3227	2683	852.6	652.1	.0256
	855.8	6.45	3.60	1.67		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	908.5	604	128	910.5	910	.0329
	912.1	1.21	22.53	1.38		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	1918.5	349	87	921	920.62	.01204
	922.6	0.70	29.91	1.59		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	1122.7	1418	1098	1125.8	1125.5	.1143
	1129.5	2.84	5.97	2.32		
<sup>131</sup> Te <sup>m</sup>	1203.6	1019	828	1206	1206	.0976
	1209.6	2.04	6.51	2.01		

### Apéndice 3. Espectrometría de las energías de <sup>131</sup>I.

Desde (KeV) A (KeV)	Cuentas Totales cps	AREA (% error)	Pico (KeV) FWHN (KeV)	Energía (KeV)	Porcentaje (%)
77.9 82.9	66565 133 13	24338 1.63	90.4 1.38	80.18	26.152
175.1 179.7	50358 100 72	2683 12.06	177.8 1.47	179.21	0.264
281.1 287.4	72278 24.56	42130 1.13	264.6 1.57	284.3	6.052
324 328.2	11800 23.60	1221 11.96	325.9 1.39	325.78	0.2507
359 369	449189 896 38	430289 0.27	364.7 1.64	364.48	81.164
500.5 505.5	3321 6.64	1043 8.72	503.2 1.65	502.99	0.3605
636.4 640.2	21411 42.62	19901 1.23	637.1 1.78	636.97	7.2605
640.9 645.5	1126 2.25	381 13.29	643 1.66	642.7	0.2195
719.2 126.3	61 39 1028	4420 2.79	723 1.77	722.89	1.8025

**Apéndice 4. ANALISIS DEL SOLIDO RESIDUAL DESPUES DE LA  
DESTILACION**

<b>RADIOISOTOPO</b>	<b>μCi</b>	<b>g</b>	<b>μCi/g</b>	<b>% ACTIVIDAD</b>
Te-125	2.1040	0.0014	1502.857	23.22
Sb- 122	1.3313	0.0014	950.929	14.69
Te-129m	1.3285	0.0014	948.929	14.66
Te-123m	1.1944	0.0014	853.143	13.18
Te-131m	1.0075	0.0014	719.646	11.12
Te-129m	0.9475	0.0014	676.786	10.46
Te-121	0.4547	0.0014	324.786	5.02
I-131	0.4067	0.0014	290.500	4.49
Te-131	0.2854	0.0014	203.857	3.15