

# REJEITOS RADIOATIVOS GERADOS NA PRODUÇÃO DE $^{99}\text{Mo}$ POR FISSÃO NUCLEAR, EM FUNÇÃO DOS TEMPOS DE IRRADIAÇÃO

Goro Hiromoto e José Claudio Dellamano

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN-CNEN/SP)  
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária  
05508-000 São Paulo, SP  
[hiromoto@ipen.br](mailto:hiromoto@ipen.br)  
[jcdellam@ipen.br](mailto:jcdellam@ipen.br)

## RESUMO

Uma das instalações previstas no Reator Multipropósito Brasileiro é uma unidade de produção de  $^{99}\text{Mo}$  por fissão nuclear. Nesse estudo verificou-se a influência de dois parâmetros, a massa de  $^{235}\text{U}$  e o tempo de irradiação do alvo, na atividade total dos rejeitos radioativos gerados no processo. A simulação foi realizada utilizando-se o código computacional Origen S®, considerando-se que o alvo seria composto de uma liga de  $\text{UAl}_x$  com  $^{235}\text{U}$  enriquecido a 19,9% e irradiado em um fluxo de nêutrons térmicos de  $1 \times 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  para a produção de 185 TBq de  $^{99}\text{Mo}$  por semana. Os resultados obtidos para 3 a 21 dias de irradiação contínua de alvos com diferentes massas de  $^{235}\text{U}$  mostram que a quantidade de rejeitos radioativos gerados, em termos de atividade, não parece ser aspecto dominante a ser considerado na escolha dos parâmetros de produção do  $^{99}\text{Mo}$ , pois observou-se um incremento de um fator de no máximo 4 na atividade total dos rejeitos ao longo dos 100000 anos considerados.

## 1. INTRODUÇÃO

O  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , produto de decaimento do  $^{99}\text{Mo}$ , é um dos mais importantes radioisótopos utilizados atualmente em aplicações na medicina nuclear e com perspectivas de demanda crescente, à medida que o acesso a esse tipo de diagnóstico seja facilitado a outras camadas sociais da população. A forma mais usual de produção comercial do  $^{99}\text{Mo}$  é por fissão do  $^{235}\text{U}$ , além de outros dois processos menos competitivos: a produção por irradiação do  $^{98}\text{Mo}$  com nêutrons térmicos ou por irradiação do  $^{100}\text{Mo}$  em aceleradores de prótons [1].

A recente crise internacional em seu fornecimento evidenciou a necessidade do país adquirir autossuficiência nesse setor, consolidando a importância do desenvolvimento de um dos programas prioritários da Comissão Nacional de Energia Nuclear, a construção do Reator Multipropósito Brasileiro (RMB). Dentre as instalações projetadas nesse empreendimento, encontra-se uma unidade para produção do  $^{99}\text{Mo}$  por fissão.

Para suprir a demanda nacional de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , projeta-se uma produção semanal da ordem de 5000 Ci (185 TBq) de  $^{99}\text{Mo}$  ao final da irradiação, o que resultaria em 1000 Ci de  $^{99}\text{Mo}$  após resfriamento e processamento [2]. Essa quantidade poderia ser obtida com uma combinação adequada de três parâmetros de produção: fluxo de nêutrons térmicos, massa de  $^{235}\text{U}$  e tempo de irradiação.

Este estudo tem como objetivo verificar como a combinação entre os valores de massa de U no alvo e tempo de irradiação por campanha de produção do  $^{99}\text{Mo}$  afetam a quantidade de

rejeitos radioativos gerados, em termos de atividade, para um determinado fluxo de nêutrons e grau de enriquecimento do U.

## 2. METODOLOGIA

Considerou-se que a produção de  $^{99}\text{Mo}$  será efetuada irradiando-se alvos compostos de uma liga de  $\text{UAl}_x$  enriquecido a 19,9% de  $^{235}\text{U}$ , com revestimento em liga de alumínio Al-1050, em um fluxo de nêutrons térmicos de  $1 \times 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Como especificação referência, considerou-se a irradiação simultânea de 16 alvos, contendo 2,5 g de  $^{235}\text{U}$  em cada, por 7 dias contínuos. Nessas condições, seriam produzidos 169 TBq de  $^{99}\text{Mo}$  ao final da irradiação, por campanha semanal.

O inventário radioisotópico foi determinado processando-se o código Origen S® [3] com 3, 4, 5, 6, 7, 8, 10, 12, 14, 16, 17, 18, 19, 21 e 28 dias de irradiação e com saídas programadas para 0 a 100000 anos de decaimento radioativo.

A Tabela 1 apresenta a composição em massa de cada alvo, mantida inalterada em todas as simulações computacionais. Os elementos magnésio, silício, titânio, vanádio, manganês, ferro, cobre e zinco são elementos traços presentes na liga de alumínio Al-1050.

Às atividades finais, para cada tempo de irradiação, foi aplicado um fator de correção de massa correspondente para produzir sempre os 169 TBq de  $^{99}\text{Mo}$ .

**Tabela 1. Composição de cada alvo**

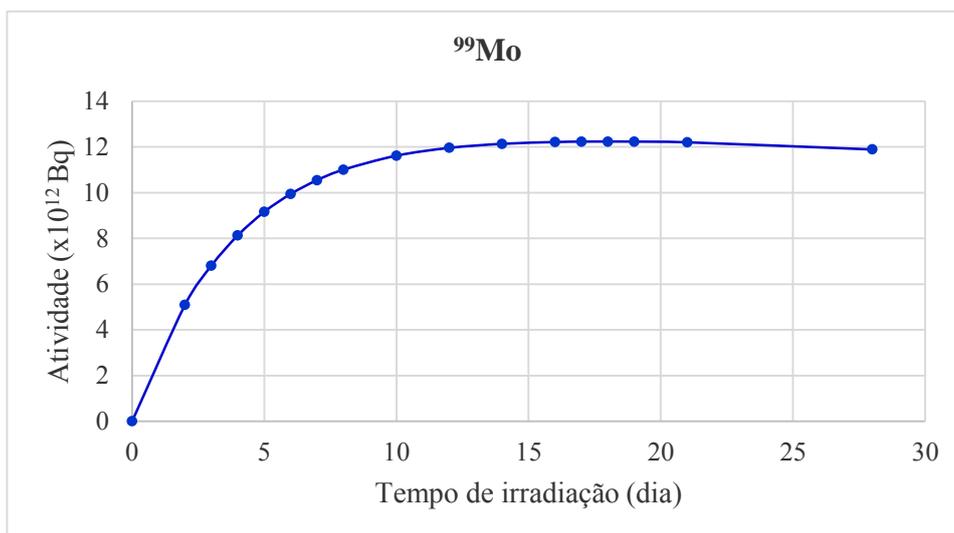
RN	Massa (g)	RN	Massa (g)	RN	Massa (g)
$^{238}\text{U}$	9,988	$^{46}\text{Ti}$	0,00065	$^{57}\text{Fe}$	0,00222
$^{235}\text{U}$	2,5	$^{47}\text{Ti}$	0,00058	$^{58}\text{Fe}$	0,00029
$^{234}\text{U}$	0,075	$^{48}\text{Ti}$	0,00578	$^{63}\text{Cu}$	0,00904
$^{24}\text{Mg}$	0,01032	$^{49}\text{Ti}$	0,00042	$^{65}\text{Cu}$	0,00403
$^{25}\text{Mg}$	0,00131	$^{50}\text{Ti}$	0,00041	$^{64}\text{Zn}$	0,00631
$^{26}\text{Mg}$	0,00144	$^{50}\text{V}$	0,00003	$^{66}\text{Zn}$	0,00366
$^{27}\text{Al}$	26,14	$^{51}\text{V}$	0,01304	$^{67}\text{Zn}$	0,00054
$^{28}\text{Si}$	0,06027	$^{55}\text{Mn}$	0,01307	$^{68}\text{Zn}$	0,00249
$^{29}\text{Si}$	0,00306	$^{54}\text{Fe}$	0,00611	$^{70}\text{Zn}$	0,00008
$^{30}\text{Si}$	0,00202	$^{56}\text{Fe}$	0,09594		

## 3. RESULTADOS

Neste trabalho, não foi efetuada nenhuma distinção entre os vários fluxos de rejeitos radioativos gerados, sólidos, líquidos ou gasosos. Os resultados apresentados referem-se ao inventário total que estaria presente nos rejeitos, assumindo-se que todos os elementos radioativos produzidos na irradiação tornam-se rejeitos, subtraindo-se apenas o  $^{99}\text{Mo}$

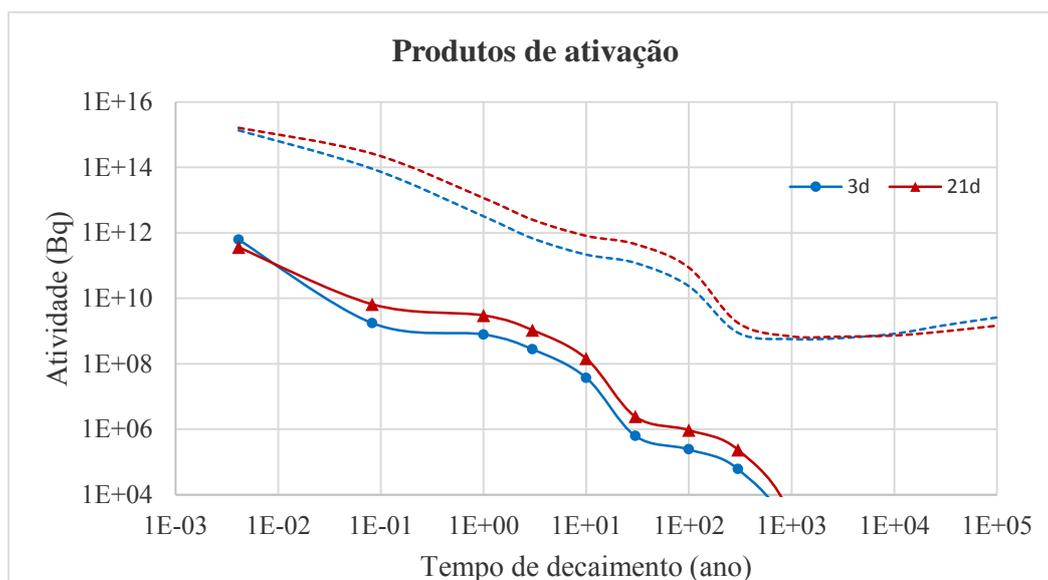
separado após 36 horas (12 horas de esfriamento do alvo e 24 horas de processamento) e os respectivos  $^{99m}\text{Tc}$  e  $^{99}\text{Tc}$  gerados como seus produtos de decaimento.

Os fatores de correção de massa foram determinados a partir das atividades obtidas com os diversos tempos de irradiação, apresentadas na Fig.1. Note-se que após aproximadamente 3 semanas de irradiação, não há mais aumento de produção de  $^{99}\text{Mo}$ .

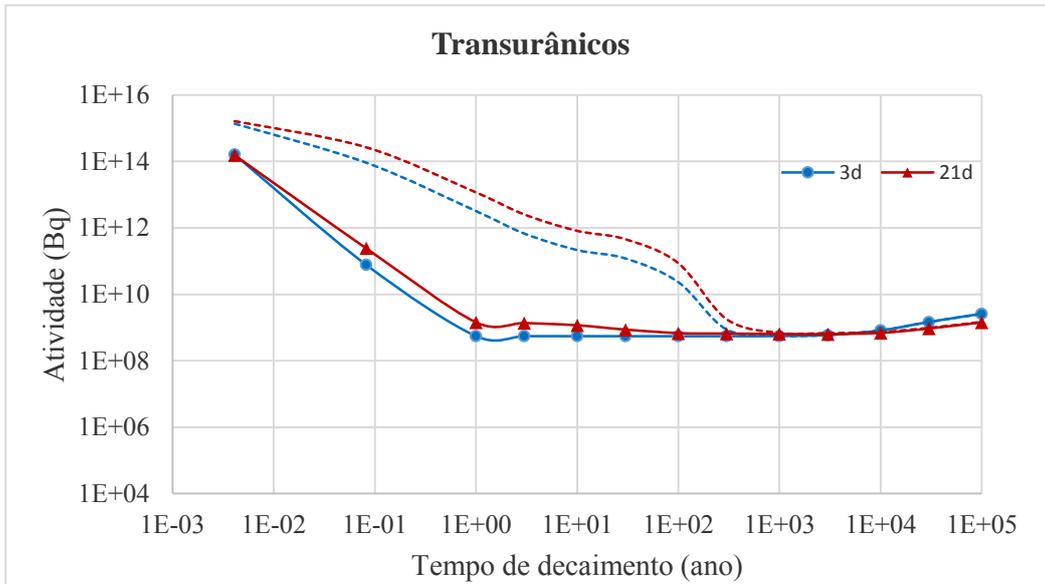


**Figura 1. Atividade de  $^{99}\text{Mo}$  em função do tempo de irradiação para um único alvo.**

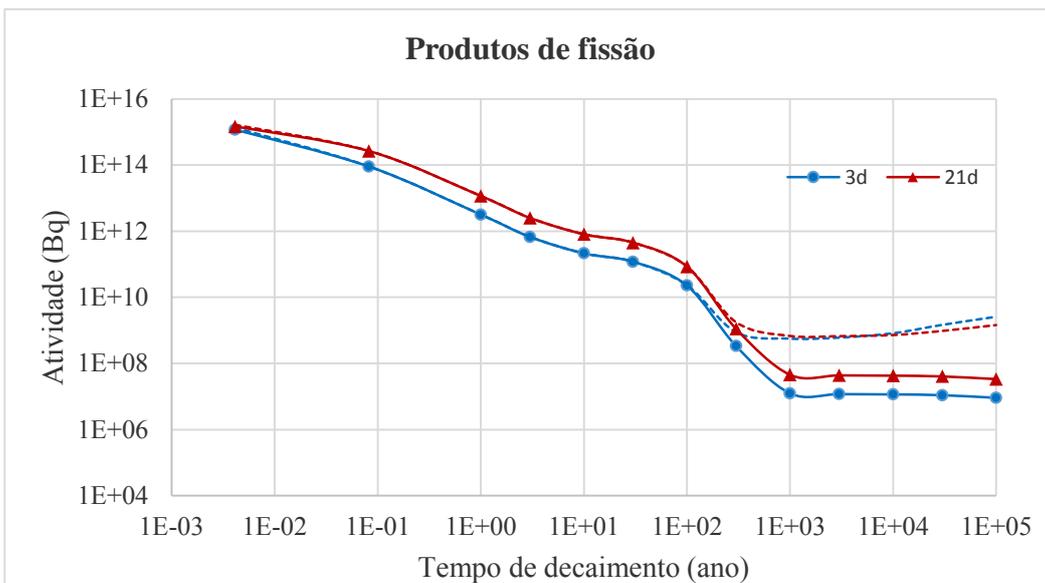
As Fig.2, Fig.3 e Fig.4 apresentam os resultados obtidos para 3 e 21 dias de irradiação, detalhados em termos de contribuição dos produtos de ativação, produtos de fissão e transurânicos à atividade total.



**Figura 2. Atividade dos produtos de ativação por campanha semanal. As linhas pontilhadas indicam a atividade total.**



**Figura 3. Atividade dos transurânicos por campanha semanal. As linhas pontilhadas indicam a atividade total.**



**Figura 4. Atividade dos produtos de fissão por campanha semanal. As linhas pontilhadas indicam a atividade total.**

Como pode ser observado, aumentando-se o tempo de irradiação – e a respectiva diminuição da quantidade de  $^{235}\text{U}$  necessária para produzir a mesma quantidade de  $^{99}\text{Mo}$  – a atividade total dos rejeitos radioativos gerados tem um incremento de um fator menor que 4, em todo o intervalo de tempo considerado na simulação; para os transurânicos, há inclusive decréscimo da atividade total após aproximadamente 4000 anos.

Observa-se também que, como esperado, a contribuição dos produtos de fissão predomina nas primeiras centenas de anos e, depois, os transurânicos; após as primeiras horas de decaimento, a contribuição dos produtos de ativação é desprezível.

#### 4. CONCLUSÕES

Os resultados obtidos para 3 a 21 dias de irradiação contínua de alvos com diferentes massas de  $^{235}\text{U}$  mostram que a quantidade de rejeitos radioativos gerados não parece ser o aspecto dominante a ser considerado na escolha dos parâmetros de produção do  $^{99}\text{Mo}$  pois o incremento de um fator de no máximo 4 na atividade total, ao longo dos 100000 anos considerados, tende a ser irrelevante frente a outros critérios de decisão, como custo de produção, dificuldade no processamento de maior quantidade de massa do alvo etc.

Ressalte-se que pode haver radionuclídeos que apresentem incremento da atividade de ordens de magnitude com o aumento do tempo de irradiação, mas com contribuições pequenas na atividade total dos rejeitos. Estudos conclusivos e mais detalhados do comportamento específico de cada radionuclídeo estão ainda em curso.

#### REFERÊNCIAS

1. International Atomic Energy Agency. *“Production technologies for molybdenum-99 and technetium-99m”*. IAEA, Vienna (1999).
2. I. J. Obadia. “Suprimento de molibdênio 99 – Potencial crise de abastecimento no médio prazo e ações de mitigação propostas”. *International Nuclear Atlantic Conference*, Recife, 24-29 de Novembro 2013 (2013).
3. S. M. Bowman; I. C. Gauld. *“OrigenArp Primer: How to perform isotopic depletion and decay calculations with SCALE/ORIGEN”*. Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, USA (2010).