

**AVALIAÇÃO DOS PROCESSOS DE OBTENÇÃO DE ⁹⁹Mo VIA FISSÃO A PARTIR DE ALVOS DE URÂNIO DE BAIXO ENRIQUECIMENTO (LEU).
PARTE I - ESCOLHA DO ALVO E DISSOLUÇÃO**

Ruth L. Camilo, Victor H. Cohen e Paulo Ernesto O. Lainetti*

*Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, CNEN
Caixa Postal 11 049
816-9339, São Paulo, Brasil
rcamilo@net.ipen.br vhcohen@net.ipen.br lainetti@net.ipen.br

RESUMO

Este trabalho foi idealizado a partir de uma ampla revisão bibliográfica realizada pelos pesquisadores da Supervisão de Tecnologia Química e Ambiental, no intuito de fornecer subsídios à Instituição em caso desta decidir implantar uma linha de produção de ⁹⁹Mo via fissão. Apresentam-se e discutem-se os aspectos positivos e negativos de cada possibilidade, seja em termos da escolha do alvo ou da etapa de dissolução, fator predominante e decisivo na escolha do processo global.

A partir da restrição da exportação de HEU ($\approx 93\%$ ²³⁵U) para uso como combustível ou alvo em reatores de pesquisa ou testes, iniciaram-se estudos em várias partes do mundo para o desenvolvimento de processos de obtenção de ⁹⁹Mo, utilizando alvo de urânio com baixo enriquecimento $\approx 20\%$ de ²³⁵U (LEU). Na substituição de alvos HEU por alvos LEU, para se obter a mesma quantidade de ⁹⁹Mo, deve-se manter a mesma massa do isótopo ²³⁵U. Desta forma, aumenta-se a quantidade do isótopo ²³⁸U e, conseqüentemente, a densidade de urânio na miniplaca (preservando-se o mesmo volume do núcleo).

Entre os possíveis alvos a serem utilizados, citamos o siliceto de urânio, o filme de urânio metálico e soluções de nitrato ou sulfato de urânio, irradiadas em um reator homogêneo.

Palavras-chave: ⁹⁹Mo, siliceto de urânio, LEU, HEU, urânio metálico, Cintchem.

I. INTRODUÇÃO

Os processos comerciais para a obtenção de ⁹⁹Mo via fissão do U-235 a 93% de enriquecimento, encontram-se totalmente consolidados. Os alvos utilizados nos processos comerciais são o UAl_x (Canadá e Bélgica) e o UO₂ eletrodepositado (Indonésia). A partir destes alvos, definiram-se os processos de dissolução, sendo que os países que desenvolveram processos baseados em alvos de UAl_x, Alemanha - KFK, antiga Alemanha Oriental-AMOR, Bélgica-IRE, Argentina-CNEA, África do Sul-AEC, e Canadá) realizaram uma dissolução alcalina com exceção da AMOR, que realiza dissolução ácida, enquanto que os países que utilizaram o UO₂ como alvo (EUA-Brookhaven, Japão-JAERI e Indonésia-BATAN), realizam a dissolução com uma solução ácida ou uma mistura de ácidos [1,2,3].

A emenda aprovada pelo Congresso Americano ao "Atomic Energy Act of 1954" de 1992, que restringiu a exportação de HEU (High Enrichment Uranium) para uso

em combustíveis e alvos, obrigou os países produtores de ⁹⁹Mo a iniciarem pesquisas com o intuito de utilizar alvos de baixo enriquecimento [4]. Bem antes desta proibição, o mundo já mostrava uma tendência de substituição de combustíveis HEU por LEU (Low Enrichment Uranium) [5] nos reatores de pesquisa, como conseqüência do programa denominado RERTR (Reduced Enrichment Research and Test Reactor). Este programa foi criado em 1978 no ANL (Argonne National Laboratory) pelo Departamento de Energia que é responsável pelo seu gerenciamento em conjunto com o Departamento de Estado, a Agência de Controle de Armas e Desarmamento e a Comissão de Regulamentação Nuclear. O objetivo principal deste programa é o desenvolvimento de tecnologia necessária para o uso de urânio de baixo enriquecimento em substituição a urânio de alto enriquecimento, em reatores de pesquisa e teste de materiais, sem mudanças significativas no desempenho experimental e econômico ou nos aspectos relativos à segurança dos reatores. Este enfoque norteou os principais

produtores de ^{99}Mo a iniciarem as pesquisas com o intuito de substituir os alvos HEU por alvos LEU.

Este trabalho constitui-se de um extenso levantamento bibliográfico dos estudos e progressos realizados em diversas partes do mundo até 1997, com o objetivo de obter ^{99}Mo via fissão, partindo de alvos LEU.

Procurou-se também avaliar e comparar este processo de obtenção com aqueles já consagrados que utilizam alvos HEU e em atividade comercial e, por último, apresentar alternativas à Instituição, caso ela opte no futuro por um processo de obtenção de ^{99}Mo via fissão.

Grandes centros como Argonne, Sandia, Los Alamos, Battan, entre outros, têm despendido esforços no sentido de desenvolver um processo capaz de substituir os já existentes sem muitas modificações nas respectivas instalações de produção.

II. FABRICAÇÃO DE ALVOS

Alvos HEU. Dois tipos de alvos têm sido utilizados para a obtenção de ^{99}Mo em bases comerciais, a partir de urânio com enriquecimento isotópico $> 90\%$ em massa de ^{235}U .

O primeiro tipo consiste de dispersões, na forma de placas, do composto UAl_x em uma matriz de alumínio, com revestimento em alumínio. O UAl_x é obtido fundindo-se o U e o Al metálicos em fornos a arco de eletrodo não-consumível ou em fornos de indução. O composto obtido é triturado e classificado quanto à granulometria. Após a compactação da mistura de pós de UAl_x e de Al, o compactado é laminado empregando-se a técnica conhecida como “picture-frame” [6]. As miniplacas que constituem os alvos são colocadas em dispositivos para irradiação e posicionadas no núcleo do reator. Após a irradiação, os alvos são dissolvidos conforme processos que serão discutidos em uma seção específica.

O processo Cintichem, por outro lado, utiliza alvos na forma de tubos de aço inoxidável com uma fina camada de UO_2 eletrodepositado na superfície interna do tubo. A extremidade superior recebe um tampão, formando um alvo selado e móvel. Os alvos são colocados no núcleo do reator e, após a irradiação, o tampão é removido mecanicamente e o depósito de UO_2 é dissolvido [7]. Este processo foi usado até 1989 nas instalações do reator Cintichem em Tuxedo, New York, passando a licença de utilização do processo para BATAN (BADAN Tenaga Atom Nasional), localizado em Serpong, Indonésia e sendo utilizado desde então para produzir ^{99}Mo , partindo de alvos de UO_2 de alto enriquecimento.

Alvos LEU. Os alvos LEU que vêm sendo estudados para substituir os alvos HEU são constituídos de siliceto de urânio (U_3Si_2) disperso em alumínio ou de uma folha de urânio metálico encapsulada entre 2 tubos concêntricos. Há necessidade de aumento da densidade de urânio nos alvos, de forma que a redução do enriquecimento seja compensada. As principais condicionantes do problema estão relacionadas com:

- . pureza e rendimento do produto $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$;
- . problemas de fabricação dos alvos LEU;
- . rejeitos radioativos gerados.

Do ponto de vista da preservação da geometria dos alvos atualmente utilizados, aspecto extremamente importante quando se considera o impacto econômico da substituição de HEU por LEU, o projeto das miniplacas permite atingir elevadas densidades de urânio associadas à utilização de dispersões de U_3Si_2 . Já a preservação da geometria dos tubos de aço inoxidável recobertos com filmes de UO_2 é mais complexa. Neste caso, para tornar possível a utilização de LEU, deve ocorrer uma mudança no projeto do alvo e/ou a utilização de um filme de um composto muito mais denso [8].

O urânio metálico pode ser empregado na obtenção de compostos, como o U_3Si_2 , ou conformado mecanicamente para a obtenção de folhas finas. Os métodos mais comuns de obtenção de U metálico são a redução do tetrafluoreto de urânio – UF_4 - com cálcio ou magnésio. Após a redução, o metal obtido pode ser submetido a operações de refino, normalmente refusão sob vácuo seguida de lingotamento.

O siliceto de urânio é preparado a partir da fusão conjunta do urânio e do silício metálicos, utilizando-se fornos de indução ou em fornos elétricos a arco de eletrodo não-consumível. Geralmente, esta operação é executada sob vácuo, embora o uso de atmosferas protetoras de gases inertes, como argônio, também seja possível. O lingote obtido deve ser fragmentado e triturado sob atmosfera protetora. A etapa seguinte é a classificação granulométrica do pó, uma vez que as especificações dos combustíveis a base de dispersões definem uma faixa para o tamanho de partículas e conteúdo máximo de finos (partículas abaixo de $44\mu\text{m}$), que devem estar compreendidas entre valores que podem variar de acordo com o fabricante. O pó de U_3Si_2 , com uma parcela de finos correspondente a cerca de 20 a 25% em peso, é misturado a pó de alumínio com granulometria inferior a $44\mu\text{m}$. A mistura é realizada para cada briquete individualmente, pesando-se as quantidades de cada pó e executando-se uma homogeneização da carga. Para a conformação dos compactados, que constituirão o núcleo das placas combustíveis, as misturas de pós são introduzidas na cavidade de uma matriz e submetidas a compressão unidirecional em prensas mecânicas ou hidráulicas. As placas combustíveis são obtidas por laminação conjunta dos compactados constituídos de U_3Si_2 -Al e o material encamisante. Utiliza-se a técnica denominada “picture-frame” para montagem dos conjuntos, que são constituídos de uma moldura de alumínio, duas chapas de revestimento e o compactado. Os componentes são submetidos a um tratamento de limpeza superficial e os conjuntos são soldados para evitar-se o deslocamento relativo durante a laminação. O caldeamento metalúrgico entre o revestimento e o núcleo, assim como a espessura final da placa, são obtidos após uma série sucessiva de operações de laminação a quente, com redução progressiva da espessura.

As dimensões finais do alvo são obtidas por corte, após a localização do núcleo [9,10].

Quanto à substituição de HEU por LEU, nos alvos cilíndricos contendo filmes finos de UO_2 eletrodepositado, o principal problema tecnológico é a impossibilidade de aumentar-se a densidade superficial de UO_2 , que já está próxima do limite tecnológico de fabricação, mesmo com o uso de HEU. O urânio metálico é a escolha mais óbvia para permitir o aumento da densidade do composto depositado. Dentre as vantagens decorrentes do uso de U^0 , pode-se destacar a maior condutividade térmica, a maior massa específica e a maior eficiência de deposição a partir de banhos de sal fundido em comparação com a deposição de UO_2 a partir de soluções aquosas. Banhos de sais de fluoretos ou cloretos podem ser empregados. Alguns problemas associados à eletrodeposição a partir de banhos de sais fundidos são as elevadas temperaturas necessárias, a necessidade de atmosferas inertes, elevada corrosividade dos banhos, que são também muito reativos com umidade e possibilidade de degradação das propriedades mecânicas do metal do substrato devido às elevadas temperaturas do processo [8].

Uma alternativa à eletrodeposição é o emprego de folhas finas de urânio metálico. Do ponto de vista da fabricação, as dificuldades são a obtenção da folha fina de urânio metálico, com cerca de $125\mu m$ de espessura. Além da laminação do urânio não ser um problema trivial, devido à elevada reatividade do metal com o oxigênio, há necessidade de emprego de materiais e/ou barreiras de difusão, que inibam o caldeamento metalúrgico entre a folha de urânio metálico e os tubos encamisantes. Outro problema é encontrar materiais que apresentem expansões térmicas compatíveis com a folha de urânio, já que é importante um bom contato mecânico entre o alvo e o irradiador, por questões ligadas à remoção de calor. Diversos experimentos vêm sendo conduzidos para a determinação dos materiais que podem constituir os tubos e as barreiras. No ANL têm sido fabricados diversos alvos que são posteriormente irradiados no reator de testes RSG-GAS de 22,5MW da Indonésia. Análises de pós-irradiação são posteriormente realizadas nas instalações de BATAN [11].

Pelas informações disponíveis, parece que ainda é necessário um desenvolvimento importante até a definição de todos os parâmetros de fabricação e a demonstração da viabilidade técnica e econômica de todo o processo, inclusive o processamento dos alvos após irradiação.

III. DISSOLUÇÃO DOS ALVOS

Alvos HEU. Os processos de dissolução dos alvos HEU encontram-se completamente consolidados. No caso de alvos constituídos de UAl_x/Al , podem ser realizados dois tipos de dissolução, a ácida e a alcalina. Na dissolução ácida, utiliza-se uma mistura de HNO_3 e $Hg(NO_3)_2$, este último adicionado com o objetivo de catalisar a reação. A dissolução alcalina é realizada com uma solução de NaOH

ou uma mistura de NaOH/KOH. Devido a grande liberação de H_2 , algumas instalações adicionam $NaNO_3$ ou $NaNO_2$ à solução de dissolução [6,12].

No caso dos alvos de UO_2 (processo Cintichem), o próprio corpo do alvo (tubo de aço inoxidável) serve como dissolvente e a dissolução é realizada com uma solução de HNO_3/H_2SO_4 .

Alvos LEU. O siliceto de urânio vem sendo estudado tanto no ANL -[13,14,15] quanto no KFK [16].

O grupo de Argonne liderado por G.F. Vandegrift, em conjunto com BATAN, vem desenvolvendo estudos de dissolução alcalina de siliceto de urânio. O processo é constituído de duas etapas:

- . Dissolução do revestimento de alumínio, processo consolidado desde os anos 50 em Oak Ridge National Laboratory (ORNL) e aplicável tanto em material irradiado como não irradiado;

- . Dissolução do siliceto de urânio, processo que vêm merecendo atenção especial, devido as dificuldades encontradas.

Os primeiros experimentos foram realizados com material não irradiado, e os resultados obtidos levaram a uma condição de dissolução otimizada. Esta condição foi aplicada aos materiais irradiados ou que receberam tratamento térmico (para simular uma irradiação), não se conseguindo dissolver o material, mesmo com a adição de um excesso de reagentes de duas vezes o da condição otimizada. Trabalhos similares realizados na Argentina apresentaram resultados diferentes, tendo sido dissolvidos alvos de siliceto de urânio irradiado, utilizando-se o mesmo procedimento de dissolução de Argonne [17].

Sameh e colaboradores desenvolveram um processo de produção de ^{99}Mo a partir de alvos LEU de U_3Si_2 com 19,75% em ^{235}U , em escala de 100Ci [16].

O U_3Si_2 apresenta-se como um composto extremamente resistente à dissolução, quando comparado com o UAl_x . Ele não sofre praticamente nenhum ataque significativo na presença da solução básica (durante a dissolução do revestimento), tanto que aproximadamente 85% dos núclídeos de fissão gerados, incluindo o molibdênio, permanecem inativos no resíduo após a filtração da solução alcalina.

Por esta razão, este resíduo é tratado com uma mistura de HF, H_2O_2 e KIO_4 a temperatura ambiente. Após 30 minutos, adiciona-se KOH ao dissolvente até que o sistema atinja a molaridade total de $\approx 1M$ em KOH. A solução é fervida por trinta minutos para liberar o H_2O_2 e, então, é resfriada a uma temperatura de $40^\circ C$.

Aparentemente, o maior problema para a utilização das folhas de urânio metálico como alvos para a obtenção de ^{99}Mo , é a escolha do metal mais apropriado para ser utilizado como material de barreira de difusão. O uso de um material de barreira com mais ou menos $10\mu m$ de espessura entre a folha de urânio e a parede do encamisante evita que o urânio metálico se ligue ao material do tubo durante o processo de irradiação no

reator, pelo processo de fissão de recuo. Desta maneira, o urânio metálico ligar-se-á ao material da barreira, que deverá ser dissolvido com a mesma solução de dissolução.

O primeiro estudo sobre dissolução de folhas de urânio metálico de baixo enriquecimento foi realizado numa cooperação entre Argonne e BATAN, e baseou-se no processo Cintichem. A principal modificação em relação ao processo anterior (com emprego de UO_2) é a utilização de HNO_3 como solução de dissolução, além do uso de um vaso de dissolução [18].

Os experimentos realizados demonstraram ser possível dissolver folhas de urânio metálico com uma solução de HNO_3 8M em tempos compatíveis com as exigências de processo, isto é, tempos menores que 1 hora.

Paralelamente ao estudo de dissolução ácida, pesquisadores de Argonne e BATAN estudam a dissolução de folhas de urânio metálico com uma solução de $\text{NaOH}/\text{H}_2\text{O}_2$. Esta dissolução envolve um processo complexo em que o peróxido é consumido por várias reações de competição, além do fato de que a própria superfície do urânio metálico catalisa a auto destruição do H_2O_2 [15,19].

Realizaram-se experimentos em um sistema de dissolução fechado, operando a 60°C , mantendo-se fixa a concentração de NaOH em 1,0 M e variando-se a concentração de H_2O_2 entre 3,00 M e 4,00 M.

Todos os experimentos foram interrompidos após 1 hora, alcançando-se porcentagens de dissolução variando de 28 a 76%.

A otimização da dissolução alcalina foi alcançada com adições em “batch” de uma mistura das soluções de NaOH 1,5M/ H_2O_2 5M a 70°C .

O processo consiste na redução do número de moles de peróxido de hidrogênio consumido por moles de urânio dissolvido, utilizando adições sequenciais da mistura de peróxido alcalino. Resultados experimentais mostraram que a “HPCR” (razão de consumo de peróxido de hidrogênio) foi significativamente reduzida, em um reator em escala de laboratório, de 100 para 5 vezes, em relação a razão estequiométrica.

Devido ao grande número de adições de pequenos volumes da solução de peróxido alcalino, propõe-se a substituição do reator de dissolução, utilizando-se um reator de configuração “multi-batch” ao invés da configuração “plug flow”.

IV. EXPERIÊNCIA NO IPEN

Oito miniplacas com diferentes concentrações de urânio [20] e 3 placas em tamanho normal (ambos os casos com U natural) contendo dispersões U_3Si_2 -Al foram produzidas, respectivamente entre 93-94 e em 95, como parte dos desenvolvimentos e experiência necessários à fabricação do novo combustível do reator IEA-R1. Atualmente, dispõe-se de U_3Si_2 com enriquecimento de 19,75% adquirido na CERCA-França.

Realizaram-se experimentos de dissolução alcalina partindo-se de retalhos de placas de U_3Si_2 -Al produzidas no IPEN. Os resultados obtidos com o material a frio (não irradiado) foram similares àqueles citados na literatura, não sendo observadas dificuldades quanto à dissolução. Estavam programados testes de dissolução em amostras submetidas previamente a tratamentos térmicos em forno mufla, para simulação das condições de radiação. Contudo, estes experimentos não foram ainda realizados devido à dificuldade de analisar quimicamente o material dissolvido e, conseqüentemente, avaliar corretamente os resultados. Com o intuito de comprovar o processo do Sameh de dissolução ácida, projetou-se e construiu-se um dissolvedor [21] de politetrafluoretileno (Teflon®), para prosseguir com os experimentos, com material não irradiado.

Em termos de urânio metálico, desenvolveu-se um procedimento de dissolução ácida de combustíveis e “scraps”, minimizando ao máximo o consumo do ácido nítrico e a liberação dos vapores nitrosos (“fumeless”) [22].

V. DISCUSSÃO

Do ponto de vista da fabricação do alvo no IPEN, a linha do siliceto apresenta vantagens óbvias, pois a unidade de fabricação de Elementos Combustíveis dispõe de equipamentos e técnicas para a fabricação dos alvos. A diferença básica entre uma placa e um alvo (mini-placa) está nas dimensões, já que a técnica de fabricação é a mesma. Portanto, as instalações que fabricam o combustível à base de siliceto de urânio U_3Si_2 não apresentam problemas técnicos para a fabricação das miniplacas. De fato, 8 miniplacas [20] e 3 placas em tamanho normal (ambos os casos com U natural) com dispersões U_3Si_2 -Al já foram produzidas, respectivamente entre 93-94 e em 95, como parte dos desenvolvimentos e experiência necessários à fabricação do novo combustível do reator IEA-R1. Atualmente, dispõe-se de U_3Si_2 com enriquecimento de 19,75% adquirido na CERCA-França.

Quanto à utilização de urânio metálico como alvo para a obtenção de ^{99}Mo , o maior problema seria a obtenção de folhas de urânio com espessuras da ordem de $125\mu\text{m}$. Para atingir tais espessuras seria necessário o emprego de um laminador dotado de cilindros (rolos) de encosto, equipamento não disponível no IPEN. Além disso, a conformação mecânica a quente do urânio metálico exige o emprego de atmosfera protetora ou invólucros especiais. Uma alternativa seria a aquisição das folhas de urânio metálico enriquecido para a montagem dos alvos. De qualquer maneira, há necessidade de um desenvolvimento significativo desta tecnologia, ainda não dominada no IPEN.

A alternativa de aumentar-se a espessura da folha de urânio, deve ser analisada do ponto de vista do projeto do irradiador, fluxo neutrônico, calor gerado no alvo e capacidade do irradiador de trocar calor de maneira eficiente. Em outras palavras, seria necessário um novo projeto do irradiador.

Deve-se também fazer algumas observações sobre o irradiador. O processo Cintichem original adota irradiadores na forma de vasos cilíndricos revestidos com UO_2 onde, depois de se irradiar o material, faz-se a dissolução. Nos experimentos com folhas de urânio realizadas em Argonne e BATAN manteve-se esta geometria. Por outro lado, o material não deve apresentar reações químicas ou metalúrgicas com o urânio. Vêm sendo aplicados alguns tipos de tratamentos ao alumínio (anodização) e ao zircônio (ligeira oxidação superficial) como forma de evitar o caldeamento metalúrgico entre o urânio com o encamisante, pois estes materiais são utilizados simultaneamente no irradiador (tubos internos e externos). Estes experimentos vêm sendo descritos na literatura, mas a sua realização aqui e a fabricação dos irradiadores exigiria alguns investimentos e trabalhos de desenvolvimento complementar. É possível que seu uso também implicasse em dificuldades do ponto de vista do uso de patentes, necessitando de uma licença ou acordo específico com os atuais fabricantes detentores da tecnologia do processo Cintichem/EUA e BATAN/Indonésia.

Em relação ao restante do processo (separação e purificação do ^{99}Mo , recuperação do urânio e tratamento do rejeito) não há grandes mudanças, e sim, algumas inovações tecnológicas. Portanto, podemos concluir que o fator determinante para a escolha do alvo LEU substituto do HEU será aquele que melhor se comportar frente à etapa de dissolução.

Uma explicação para os bons resultados obtidos pelos argentinos, em termos de dissolução do siliceto de urânio, quando comparados às dificuldades relatadas por outros centros, pode estar presente na fabricação do alvo. É possível que durante a fabricação do siliceto de urânio na Argentina, uma pequena presença de oxigênio, forme, por oxidação, uma película de U_3O_8 , que evita durante a irradiação uma forte interação entre o U^0 e o Al do revestimento. Se este fato puder ser comprovado, o interesse no processo de dissolução alcalina de siliceto de urânio, que foi abandonado pelo grupo de Argonne, pela impossibilidade de dissolução do material irradiado, poderia ser retomado.

O problema associado ao processo apresentado por Sameh, reside no caráter agressivo dos reagentes utilizados, além de não se ter informações sobre a utilização deste processo para a obtenção do ^{99}Mo para fins comerciais.

A dissolução de folhas de urânio metálico, tanto ácida quanto básica, encontra-se totalmente consolidada, necessitando apenas da definição do material a ser escolhido como barreira.

Os pesquisadores do ANL, indicam como uma possível atividade futura, o estudo da dissolução e processamento de alvos de UO_2 na forma de pastilhas.

Uma das alternativas mais promissoras, propostas para a produção de ^{99}Mo , é o emprego de reatores homogêneos, nos quais os alvos e/ou combustível são constituídos de soluções de um sal de urânio dissolvido em

água (por exemplo, nitrato ou sulfato de urânio). Neste caso, a geração de grande quantidade de rejeitos radioativos pode ser substancialmente reduzida [23].

VI. CONCLUSÃO

Em termos de dissolução, do ponto de vista da experiência do IPEN, o melhor alvo seria a folha de urânio metálico e o processo sugerido seria a dissolução ácida, uma vez que esta tecnologia é do conhecimento e domínio dos pesquisadores do IPEN. Do ponto de vista da fabricação dos alvos, o melhor seria a utilização de dispersões U_3Si_2-Al , existindo instalações adequadas e experiência operacional. Contudo, devido aos problemas existentes na dissolução do siliceto, a utilização de alvos de urânio metálico seria mais conveniente, já que a etapa de dissolução deve ter peso decisivo na escolha do processo como um todo. As dificuldades associadas à fabricação das folhas de urânio metálico poderiam ser contornadas com a aquisição das mesmas em um centro já aparelhado para a produção. Evitar-se-ia um investimento elevado em equipamentos, ao menos numa fase inicial da operação.

Cabe considerar que ainda não existem instalações produzindo ^{99}Mo a partir de LEU em caráter comercial e nem todos os problemas técnicos já foram devidamente equacionados. É provável que, enquanto existam instalações produzindo o radioisótopo comercialmente a partir de HEU, não seja viável a instalação de processos alternativos a base de LEU.

REFERÊNCIAS

- [1] Snelgrove, J.L., Hofman, G.L., Wiencek, T.C., Wu, C.T., Vandegrift, G.F., Aase, S., Buchholz, B.A., Dong, D.J., Leonard, R.A., Srinivasan, B., Wu, D., Surtip, A., and Aliluddin, Z. **Development and Processing of LEU Targets for Mo-99 Production--Overview of the ANL Program**. Proceedings of the XVIII International Meeting on RERTR, Paris, France, 17-21 Sept. 1995.
- [2] International Atomic Energy Agency, **Alternative Technologies for $^{99}Tc^m$ Generators**. IAEA-TECDOC-852.
- [3] Münze, R., Hladik, O., Bernhard, G. Boessert, W., Schwarzbach, R., **Large Scale Production of Fission ^{99}Mo by Using Fuel Elements of a Research Reactor as Starting Material**, J. Appl. Radiat. Isot., Vol. 35, N^o. 8, 1984.
- [4] Srinivasan, B., Hutter, J.C., Johnson, G.K., Vandegrift, G.F., **Development of Dissolution Process for Metal Foil Target Containing Low Enriched Uranium**, Proceedings of the 1994 International Meeting on RERTR, Williamsburg, USA, 18-23 Sep., 1994.

[5] Leventhal, P. and Kuperman, A., **RERTR at the Crossroads: Success or Demise?**, Nuclear Control Institute, 18 Sep., 1995.

[6] Sameh, A. A. and Ache, H. J. **Production Techniques of Fission Molybdenum-99**, Radiochimica Acta 41, 1987.

[7] Wu, D., Landsberger S., Buchholz, B.A. and Vandegrift, G. F., **Processing of LEU Targets for ⁹⁹Mo Production – Testing and Modification of the Cintichem Process**, Proceedings of the 1995 International Meeting on RERTR, Paris, France, 17-21 Sep., 1995.

[8] Vandegrift, G.F., Chsiko, D.J., Heinrich, R.R., Kucera, E.T., Jensen, K.J., Pos, D.S., Varma, R. and Vissers, D.R. **Preliminary Investigations for Technology Assessment of ⁹⁹Mo Production from LEU Targets**, Proceedings of the 1986 International Meeting on RERTR, Gatlinburg, USA, 3-6 Nov. 1986.

[9] Knight, R.W., **Observations in the Manufacture of Aluminum-Based Research Reactor Fuel Elements**, ORNL/TM-11809, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, 1993.

[10] Wiencek, T.C., **Summary Report on Fuel Development and Miniplate Fabrication for the RERTR Program, 1978 to 1990**, ANL/RERTR/TM-15, Argonne National Laboratory, Argonne, 1995.

[11] Hofman, G.L., Wiencek, T.C., Wood, E.L., Snelgrove, J.L., Suario, A., Nasution, H., Lufti-Amin, D., Gogo, A., **Irradiation Tests of ⁹⁹Mo Isotope Production Employing Uranium Metal Foils**, Proceedings of the 1996 International Meeting on RERTR, Seoul, Korea, 7-10 Oct., 1996.

[12] Blanco, R.E., **Dissolution and Feed Adjustment**, Symposium on the Reprocessing Irradiated Fuels, Brussels, Belgium, 20-25 May, 1957

[13] Hutter, J. C., Srinivasan, B. and Vandegrift, G. F., **Production of Mo-99 Using Low-Enriched Uranium Silicide**. ANL/CMT/CP-84245.

[14] Buchholz, A. and Vandegrift, G. F. **Processing of LEU Targets for ⁹⁹Mo Production Dissolution of U₃Si₂ Targets by Alkaline Hydrogen Peroxide**. ANL-CMT/CP-87721.

[15] Chen, L., Dong, D., Buchholz, B.A., Vandegrift, G. F., **Progress in Alkaline Peroxide Dissolution of Low-Enriched Uranium Metal and Silicide Targets**. Proceedings of the 1996 International Meeting on RERTR, Seoul, Korea, 7-10 Oct., 1996.

[16] Sameh, A. A. and Bertram-Berg, A. **HEU and LEU MTR Fuel Elements as target Materials for Production**

of Fission Molybdenum. ANL-RERTR/TM-19,1993.313-333.

[17] Cols, H. J., Marques, R. O and Cristiani, P. R., **Research on Behaviour of the Irradiated Uranium Silicide for Fission Mo-99 Production**. Comisión Nacional de Energia Atómica, Centro Atómico Ezeiza, 1994.

[18] Wu, D., Landsberger, S. and Vandegrift, G. F. **Progress in Chemical Treatment of LEU Targets by the Modified CINTCHEM Process**. ANL-CMT/CP-87759.

[19] Dong, D., Vandegrift, G. F., Amini, S., Hersubeno, J. B., Nasution, H. and Nampira, T., **Processing of LEU Targets for ⁹⁹Mo Production—Dissolution of Metal Foil Targets by Alkaline Hydrogen Peroxide**,

[20] Lainetti, P. E. O., Souza, J. A. B. and Junior, O.,J. **Desenvolvimento do Processo de Fabricação de Miniplacas com Alta Concentração de Urânio Contendo U₃Si₂**. V CGEN, R. J., 28-2 Sep, 1994.

[21] Forbicini, C. A. L. G. O.; Araújo, I. C.; Gonçalves, M. A.; Felinto, M. C. F. C.; Yamaura, M.; Camilo, R. L.; Forbicini, S.; Kuada, T. A.; Cohen, V. H. Lobão, A. S. T. **Estudo da produção de ⁹⁹Mo a partir de urânio com baixo teor de enriquecimento**. VI CGEN, R. J., 27-31 Out., 1996.

[22] Camilo, R. L.; Kuada, T. A.; Forbicini, C. A. L. G. O.; Cohen, V. H.; Lobão, A. S. T.; Araújo, B. F. **Desenvolvimento de um processo de recuperação de “scraps” resultantes da fabricação de combustíveis nucleares de urânio metálico**. VI CGEN, R. J., 27-31 Out., 1996.

[23] Ball, R. M., **The Mo-99 Solution**, Nuclear Engineering International, p. 12.

ABSTRACT

Most of the world's supply of ^{99m}Tc is currently produced from the fissioning of high-enriched uranium. This scenario has changed since 1992, when the U.S. Congress approved an amendment to the Atomic Energy Act and prohibited HEU export for use as fuel or target in research and test reactors unless several conditions are met. Several countries have developed LEU based processes for replacing HEU. Significant progress was made on producing ⁹⁹Mo from fission targets utilizing LEU metal-foils and U₃Si₂-Al dispersions. In this work a review of several targets production and dissolution processes is presented. The most important issues are discussed as well as the IPEN's experience and capability.