

## PERSPECTIVA DE PRODUÇÃO DE $^{99}\text{Mo}$ VIA CAPTURA RADIOATIVA NO $^{98}\text{Mo}$ UTILIZANDO O REATOR IEA-R1 A 5 MW E OPERANDO CONTINUAMENTE 5 DIAS POR SEMANA

Mitsuo Yamaguchi, Arlindo Gilson Mendonça, Adimir dos Santos e João Alberto Osso Jr.

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, CNEN  
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)  
05422-970, São Paulo, Brasil

### RESUMO

O projeto de modernização e aumento de potência do reator IEA-R1 para 5 MW visa a produção de radioisótopos, em especial o  $^{99}\text{Mo}$ . Neste trabalho é apresentada uma perspectiva de produção deste radioisótopo via captura no  $^{98}\text{Mo}$  com o reator operando 5 dias contínuos. Foi realizado um experimento de irradiação de amostras de óxido de molibdênio ( $\text{MoO}_3$ ) natural utilizando "flux-trap" de berílio. As atividades das amostras foram calculadas e comparadas com os valores obtidos experimentalmente. Os fluxos de neutrons nas posições das amostras foram determinadas com o programa CITATION em 4 grupos de energia e geometria tri-dimensional.

### I. INTRODUÇÃO

A demanda de radioisótopos para uso na medicina nuclear no país é cada vez mais crescente. Hoje o Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) é responsável pelo fornecimento de radioisótopos para clínicas e centros de medicina nuclear, atendendo a aproximadamente um milhão de pacientes por ano no diagnóstico e terapia de diversas enfermidades.

Alguns radioisótopos, como o samário-153, vêm sendo produzidos no reator IEA-R1 operando a 2 MW num regime contínuo de 64 horas semanais. Com essa potência e regime de operação, não é possível produzir, para fins médicos, o mais importante radioisótopo utilizado no diagnóstico de enfermidades, o molibdênio-99 ( $^{99}\text{Mo}$ ). Atualmente, a demanda semanal desse radioisótopo, importado do Canadá, é de 6290 Gbq (170 Ci). O IPEN produz os geradores de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  a partir do  $^{99}\text{Mo}$  e distribui às clínicas e hospitais.

O  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  é o radioisótopo mais importante utilizado no diagnóstico em medicina nuclear, devido às seguintes vantagens:

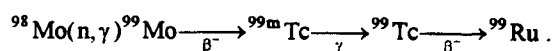
- fornece doses internas de radiação ao paciente menores do que outros radioisótopos;
- emite radiação gama de baixa energia (140 keV);
- possui meia-vida curta ( $T_{1/2} = 6,02$  horas);
- não emite partículas  $\alpha$  ou  $\beta$  no seu decaimento;
- o seu produto de decaimento, o  $^{99}\text{Tc}$ , possui meia-vida bastante longa ( $T_{1/2} = 2,14 \times 10^5$  anos), produzindo baixa dose;
- é disponível na forma de gerador;
- pode ser incorporada numa série de moléculas, possibilitando assim o seu uso em diagnósticos de vários órgãos ou tecidos no corpo humano.

A Diretoria de Reatores do IPEN iniciou em meados de 1995 o projeto de modernização e aumento de potência do reator IEA-R1 para 5 MW. O empreendimento se destina à produção de radioisótopos, principalmente do  $^{99}\text{Mo}$  via captura no  $^{98}\text{Mo}$  irradiado sob a forma de óxido de molibdênio ( $\text{MoO}_3$ ) natural. Neste sentido, na semana de 11 a 14 de novembro de 1996 foi realizado um experimento de irradiação de amostras de  $\text{MoO}_3$  a 2 MW utilizando um "flux-trap" de berílio localizado na região central do núcleo.

Neste trabalho são apresentados os valores de atividade obtidos do experimento e valores calculados utilizando os programas HAMMER-TECHNION [1] para geração de seções de choque e CITATION [2] para determinação de fluxos de neutrons nas posições das amostras. Apresenta-se também uma perspectiva de produção de  $^{99}\text{Mo}$  a 5 MW com operação contínua de 5 dias por semana baseada nos valores obtidos experimentalmente.

### II. CARACTERÍSTICAS NEUTRÔNICAS DO MOLIBDÊNIO

O molibdênio natural é composto de 7 isótopos, onde a abundância do  $^{98}\text{Mo}$  é de 24,13 % (tabela 1). As principais reações nucleares que ocorrem com este isótopo são:



O  $^{99}\text{Mo}$  também pode ser obtido através da fissão do  $^{235}\text{U}$ , cujo "yield" é de 0,061. A vantagem deste método é a alta atividade específica. A desvantagem é a necessidade de

separação do <sup>99</sup>Mo de outros produtos de fissão e actínides como plutônio através de processos químicos, gerando rejeitos de alta atividade. Por ser um radioisótopo que será injetado num ser humano, o processo requer um altíssimo grau de pureza. Por outro lado, o método de captura tem a vantagem de necessitar processamento químico bem mais simples, visto que o alvo irradiado não contém produtos de fissão. Como desvantagem tem baixa atividade específica.

O molibdênio irradiado é colocado no gerador de <sup>99m</sup>Tc, que consiste em uma coluna de vidro contendo alumina, que tem afinidade com o molibdênio. Como a afinidade do <sup>99m</sup>Tc pela alumina é pequena, este pode ser eluído facilmente mediante solução fisiológica e é usado para visualização de imagens do corpo humano.

TABELA 1. Abundância dos Isótopos do Molibdênio

Isótopo	Abundância (%)
<sup>92</sup> Mo	14.84
<sup>93</sup> Mo	9.25
<sup>95</sup> Mo	15.92
<sup>96</sup> Mo	16.68
<sup>97</sup> Mo	9.55
<sup>98</sup> Mo	24.13
<sup>100</sup> Mo	9.63

A figura 1 mostra a variação da seção de choque de captura radioativa (n,γ) do <sup>98</sup>Mo extraída da biblioteca de dados nucleares JENDL-3 [3] através do programa NJOY-91.38 [4]. Essas seções de choque foram condensadas em 4 grupos de energia através do programa ANISN [5] de acordo com a estrutura de grupos do programa HAMMER-TECHNION mostrada na tabela 2. Nesta tabela estão mostradas também as seções de choque de captura condensadas do <sup>98</sup>Mo. No grupo 4 (térmico) as seções de choque tem comportamento 1/v. O grupo 3, de maior seção de choque efetiva, concentra as ressonâncias.

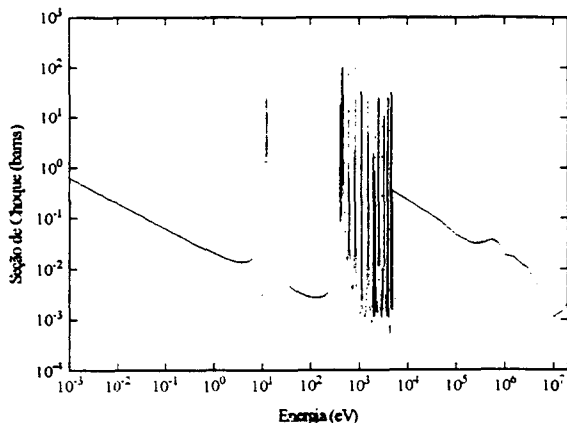


Figura 1. Seção de choque (n,γ) do <sup>98</sup>Mo.

TABELA 2. Seções de Choque do <sup>98</sup>Mo em 4 Grupos de Energia

Grupo de Energia	Limite Superior de Energia (eV)	σ <sub>γ</sub> (barns)
1	10x10 <sup>6</sup>	0.018913
2	0,825x10 <sup>6</sup>	0.073775
3	5.53x10 <sup>3</sup>	0.61281
4	0,625	0.12262

### III. EXPERIMENTO DE IRRADIAÇÃO DE AMOSTRAS DE MoO<sub>3</sub> A 2 MW

Com o intuito de se obter uma perspectiva de produção de <sup>99</sup>Mo, foi realizado um experimento de irradiação de amostras de MoO<sub>3</sub> a 2 MW. A figura 2 mostra a configuração (184) do núcleo do reator IEA-R1 utilizado no experimento com o irradiador de berílio.

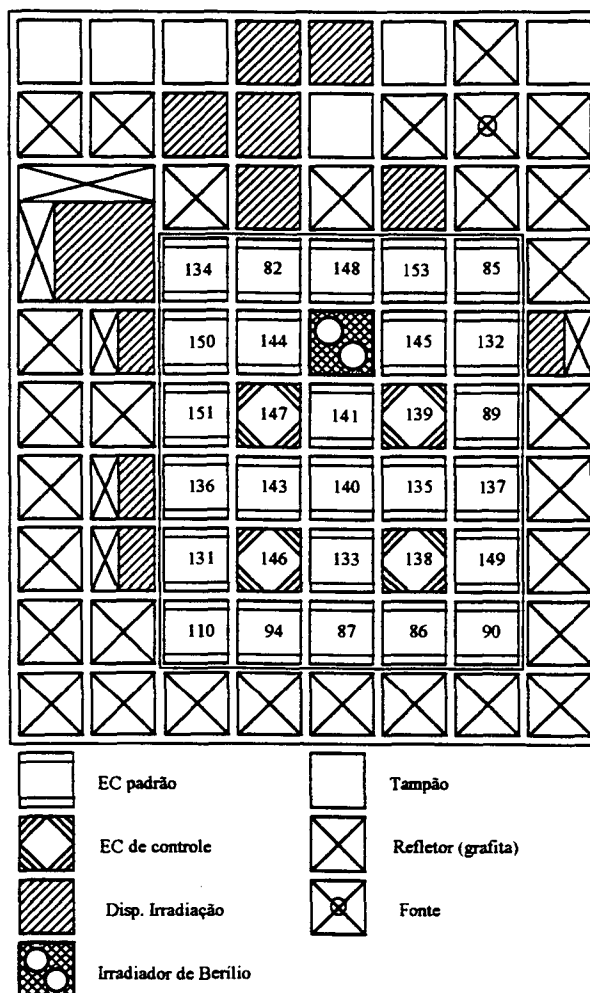


Figura 2. Configuração 184.

A utilização do berílio se deve aos seguintes fatos:

- a seção de choque (n.γ) do  $^{98}\text{Mo}$  possui ressonâncias entre 10 eV e 10 keV, faixa de maior seção de choque efetiva (figura 1 e tabela 2). Por isso, para maximizar a atividade do  $^{99}\text{Mo}$ , o espectro energético não deve ser tão térmico como na água;
- o berílio é um excelente espalhador de neutrons, pois o seu peso atômico é relativamente baixo (igual a 9,0122), mas maior do que o hidrogênio e, portanto, seu espectro energético é mais duro do que o da água; além disso, é um material altamente denso, cuja concentração atômica é igual a  $1,236 \times 10^{-1}$  átomos/barn.cm; e
- possui baixa seção de choque de absorção e reação (n,2n), fazendo com que aumente o fator de multiplicação efetivo em relação à água.

O irradiador de berílio possui dois canais para irradiação, onde foram irradiadas 8 amostras de 2 g de  $\text{MoO}_3$  em cada canal. O óxido de molibdênio irradiado no canal A (à direita na figura 2) foi colocado dentro de cápsulas de quartzo e estas dentro dos "coelhos" (cilindro de alumínio de 7 cm de altura e 2,2 cm de diâmetro externo; a espessura do alumínio é de 0,1 cm). O  $\text{MoO}_3$  irradiado no canal B (à esquerda) foi colocado diretamente nos "coelhos". Os "coelhos" são colocados em dispositivos de irradiação de alumínio e estes introduzidos nos canais do irradiador. As amostras foram irradiadas durante 22 horas e 21 minutos a 2 MW.

Os países que produzem  $^{99}\text{Mo}$  via captura utilizam quartzo nas irradiações. A Diretoria de Aplicação de Técnicas Nucleares vem pesquisando a possibilidade de irradiar o material sem quartzo, pois o radioisótopo poderia ser contaminado devido a possíveis corrosões no alumínio. Essa possibilidade traria um ganho significativo ao processo de produção do radioisótopo.

Para o cálculo das atividades do  $^{99}\text{Mo}$ , as seções de choque das amostras foram geradas em 4 grupos de energia com o programa HAMMER-TECHNION. Os fluxos de neutrons nas posições das amostras foram calculadas com o programa CITATION em geometria tri-dimensional. A atividade do  $^{99}\text{Mo}$  é dada por (a tabela 3 mostra alguns dados necessários para o cálculo):

$$A_{99} = \frac{Rf}{3,7 \times 10^{10} \rho_{\text{Mo}}} \quad [\text{Ci/gMo}] \quad (1)$$

onde:

$$R = N_{98} \sum \sigma \phi ;$$

$$f = 1 - e^{-\lambda t} ;$$

$N_{98}$  - concentração do  $^{98}\text{Mo}$ ;

$\sigma$  - seção de choque de captura do  $^{98}\text{Mo}$  (tabela 2);

$\phi$  - fluxo de neutrons;

$\lambda$  - constante de decaimento do  $^{99}\text{Mo}$  ( $T_{1/2} = 66$  horas);

$t$  - tempo de irradiação; e

$\rho_{\text{Mo}}$  - densidade do Mo-nat.

As tabelas 4 e 5 mostram as atividades medidas e calculadas no instante da parada do reator. Os valores da tabela 4 são as atividades das amostras irradiadas em cápsulas de quartzo (canal A do irradiador de berílio) e os da tabela 5 sem quartzo (canal B). No canal A os fluxos de

neutrons são maiores por estar posicionado mais ao centro do núcleo; no entanto, as atividades específicas medidas são menores do que as do canal B. Essa diferença sugere que há uma deterioração significativa dos fluxos de neutrons causada pelo quartzo. O modelo de cálculo não "enxerga" essa deterioração, pois o quartzo é um material neutronicamente neutro. Nessas amostras o erro entre os valores médios das atividades medidas e calculadas é de 27,2 %. No canal B o erro médio das 8 amostras ficou em 5,8 %. No topo e na base o erro é maior porque nessas regiões o espectro energético é mais térmico e o modelo de cálculo não faz essa diferenciação. Além disso, é difícil precisar o posicionamento correto das amostras.

TABELA 3. Dados do Molibdênio

Densidade do $\text{MoO}_3$	4,696 g/cm <sup>3</sup>
Concentração do Mo-nat	$1,924 \times 10^{-2}$ át./barn.cm
Concentração do $^{16}\text{O}$	$5,771 \times 10^{-2}$ át./barn.cm
Concentração do $^{98}\text{Mo}$	$4,643 \times 10^{-3}$ át./barn.cm
Densidade do Mo-nat	3,065 g/cm <sup>3</sup>

TABELA 4. Atividades das Amostras de  $\text{MoO}_3$  Irradiadas Com Quartzo (Canal A)

Amostra	Atividade (mCi/gMo)		Erro (%)
	Medida	Calculada	
1	32,74	38,01	16,1
2	71,90	70,71	-1,6
3	88,46	110,73	25,2
4	117,43	146,65	24,9
5	126,57	162,53	28,4
6	113,78	154,73	36,0
7	94,22	124,18	31,8
8	52,12	79,36	52,3

TABELA 5. Atividades das Amostras de  $\text{MoO}_3$  Irradiadas Sem Quartzo (Canal B)

Amostra	Atividade (mCi/gMo)		Erro (%)
	Medida	Calculada	
1	32,13	36,44	13,4
2	68,91	66,89	-2,9
3	105,30	101,37	-3,7
4	130,84	130,91	0,1
5	140,37	144,02	2,6
6	126,35	136,79	8,3
7	96,99	109,70	13,1
8	51,68	69,72	34,9

#### IV. PERSPECTIVAS DE PRODUÇÃO DE $^{99}\text{Mo}$ A 5 MW

A seguir é feita uma perspectiva de produção de  $^{99}\text{Mo}$  a 5 MW com base nos valores experimentais. Esses valores são extrapolados linearmente supondo que o reator seja operado a 5 MW com a configuração 184 com regime de 120 horas semanais. Embora o dispositivo de irradiação comporte 8 "coelhos", a primeira, segunda e última posições, por apresentarem atividades baixas, poderiam ser utilizadas para irradiar outros radioisótopos de menor valor comercial. A tabela 6 mostra as atividades médias medidas e calculadas das 5 amostras de maior atividade por canal.

TABELA 6. Atividades Médias das Amostras de  $\text{MoO}_3$

Canal	Atividade (mCi/gMo)		
	Medida	Calculada	Erro (%)
Com Quartzo	108,09	139,76	29,3
Sem Quartzo	119,97	124,56	3,8

Com um regime de 120 horas contínuas de operação a 5 MW, os valores da tabela 6 devem ser multiplicados por 8,561. Este fator é a razão entre os fatores  $f$  da equação (1) com tempo de irradiação de 120 horas ( $f = 0,71642$ ) e do experimento ( $t = 22,35$  h e  $f = 0,20921$ ). Cada "coelho" comporta no máximo 35 g de  $\text{MoO}_3$ . Assim, pode-se carregar até 228,4 g de Mo. A tabela 7 mostra as atividades específicas e totais de  $^{99}\text{Mo}$  irradiado com e sem quartzo a 5 MW durante 120 horas contínuas no instante da parada do reator.

TABELA 7. Atividades Específicas e Totais de  $^{99}\text{Mo}$

Canal	Atividade	
	Espec. (mCi/gMo)	Total (Ci)
Com Quartzo	925,35	211,3
Sem Quartzo	1027,06	234,5

Após as 120 horas de irradiação, é necessário ainda um intervalo de tempo para decaimento antes de ser levado para a célula de processamento. Esse tempo, somado ao tempo necessário para a preparação do gel, será de aproximadamente 24 horas. A calibração para os usuários deverá ser feita após um intervalo máximo de 24 horas, que inclui o transporte do material até às clínicas e hospitais. Neste período de 48 horas, a atividade do  $^{99}\text{Mo}$  reduz para 60 % da atividade inicial (no instante de parada do reator). É preciso considerar ainda que apenas 85 % do  $^{99}\text{Mo}$  decai para o  $^{99m}\text{Tc}$  e que o rendimento de eluição do  $^{99m}\text{Tc}$  é de, no mínimo, 80 %. Assim, para a atividade de 1027,06 mCi/gMo no instante da parada do reator, a atividade do  $^{99m}\text{Tc}$  reduz para 419 mCi/gMo no instante da calibração dos geradores.

#### V. CONCLUSÕES

Os resultados experimentais da irradiação de amostras de  $\text{MoO}_3$  dentro de cápsulas de quartzo mostraram que este material deteriora significativamente os fluxos de neutrons. As atividades dessas amostras obtidas através de cálculos apresentaram um erro médio de 27,2 % quando comparadas com os valores experimentais. Por outro lado, as irradiadas sem quartzo apresentaram um erro bem menor, de 5,8 %.

Uma perspectiva de produção de  $^{99}\text{Mo}$  foi feita baseando-se nos valores obtidos experimentalmente. Considerando-se a atividade média das cinco amostras localizadas nas posições de maior fluxo de neutrons, a atividade específica máxima é de 1027,06 mCi/gMo a 5 MW considerando 120 horas de irradiação contínua, podendo-se produzir até 234,5 Ci no instante da parada do reator, que reduz para 95,6 Ci no instante da calibração dos geradores (48 horas depois). Com esta atividade específica, o IPEN poderá atender no máximo 50 % da demanda, que constituem geradores de menor atividade.

#### REFERÊNCIAS

- [1] Barhen, J.; Rhotenstein, W. and Taviv, E., **The HAMMER Code System Technion**, Israel Institute of Technology, Haifa, Israel, NP-565, 1978.
- [2] Fowler, T. B.; Vondy, D. R. and Cunningham, G. W., **Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION**, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-TM-2496, Rev. 2, July 1971.
- [3] Shibata, K. et alli, **Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 - JENDL-3**, JAERI-1319, 1990.
- [4] MacFarlane, R. E., Muir, D. W. and Boicurt, R. M., **NJOY 91.38 - A Code System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross Section from ENDF/B Evaluated Nuclear Data**, Oak Ridge National Laboratory, PSR-171, 1992.
- [5] Engle, W. W., **ANISN - A One-Dimensional Discrete Ordinate Transporte Code**, Oak Ridge National Laboratory, Technical Report RSIC/CCC-254, 1979.

#### ABSTRACT

The modernization and upgrading for 5 MW project of IEA-R1 reactor aim to radioisotope production mainly  $^{99}\text{Mo}$ . In this work it is shown the production perspective of  $^{99}\text{Mo}$  with the reactor operating at 5 MW during 5 days. An experiment has been organized and performed with  $\text{MoO}_3$  samples irradiated in a beryllium flux-trap. The calculated activities were compared to the experimental values showing good agreement. The neutron fluxes in the sample positions were determined by CITATION code with four energy groups and three-dimensional geometry.