



# Rejeitos radioativos gerados na produção de $^{99}\text{Mo}$ por fissão nuclear

Goro Hiromoto e José Claudio Dellamano

*Gerência de Rejeitos Radioativos, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN-CNEN/SP)*

*Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária*

*05508-000 São Paulo, SP, Brasil*

*hiromoto@ipen.br*

---

## ABSTRACT

The Brazilian Government intends to construct a facility for molybdenum-99 production by nuclear fission, among other installations, at the Brazilian Multipurpose Reactor enterprise. This study aims to investigate in which extension the activity of the radioactive waste generated in the process is enhanced if different mass of the U-235 and irradiation time of the target is employed to produce the same quantity of Mo-99. The simulation was conducted using the computational code Origen S®, assuming that the target is composed of UAlx alloy with 19.9% enriched U-235 and irradiated in a thermal neutron flux of  $1 \times 10^{14} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , to produce 185 TBq of Mo-99 per week. The results obtained for 3 to 21 days of continuous irradiation of targets with different mass of U-235 show that the amount of radioactive waste generated, in terms of total activity, does not appear to be a dominant aspect to be considered in the choice of Mo-99 production parameters.

*Keywords: molybdenum, radioactive waste, fission*

---

## 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. MATERIAIS E MÉTODOS

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  $^{99}\text{Mo}$ .

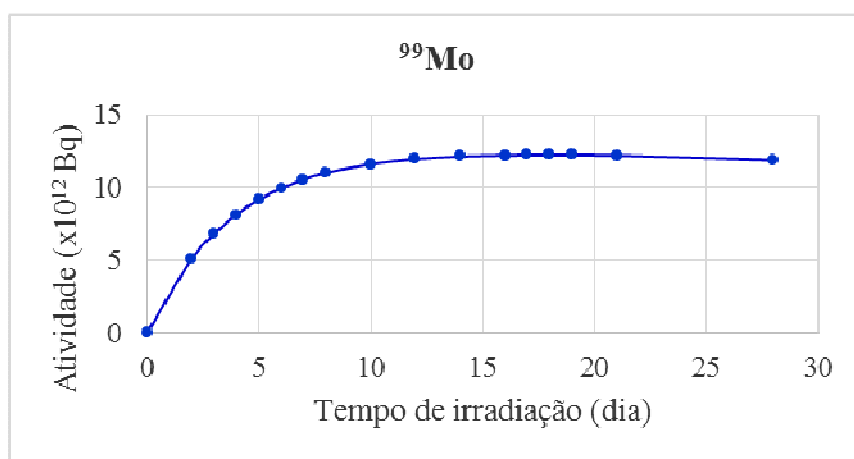
**Tabela 1.** Composição de cada alvo

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 E DISCUSSÕES

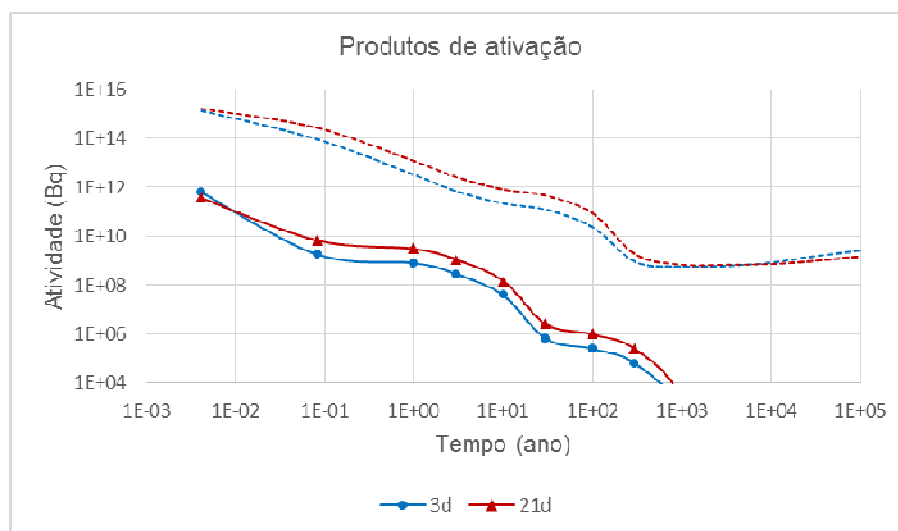
Neste trabalho, não foi efetuada nenhuma distinção entre os vários fluxos de rejeitos radioativos gerados, sólidos, líquidos ou gasosos. Os resultados apresentados referem-se ao inventário total que estaria presente nos rejeitos, assumindo-se que todos os elementos radioativos produzidos na irradiação 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  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  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 Figura 1. Note-se que após aproximadamente 3 semanas de irradiação, não há mais aumento de produção de  $^{99}\text{Mo}$ .

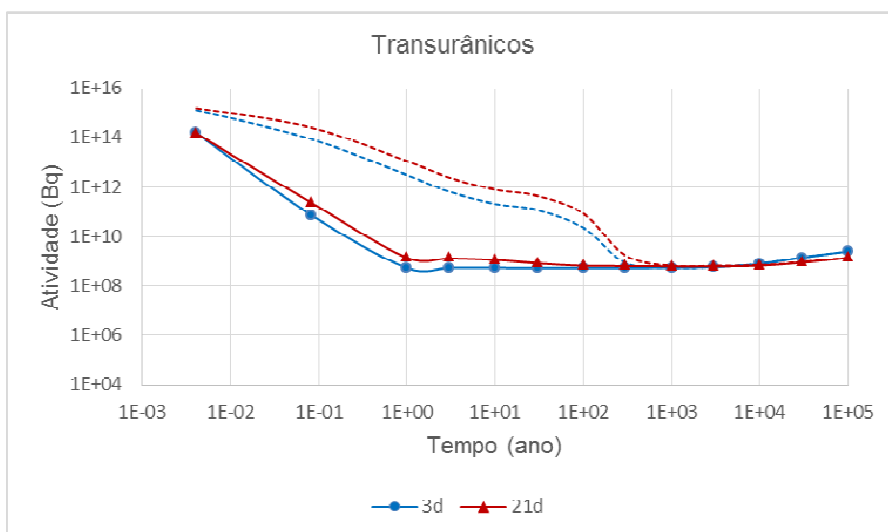


**Figura 1.** Atividade de  $^{99}\text{Mo}$  em função do tempo de irradiação para um único alvo.

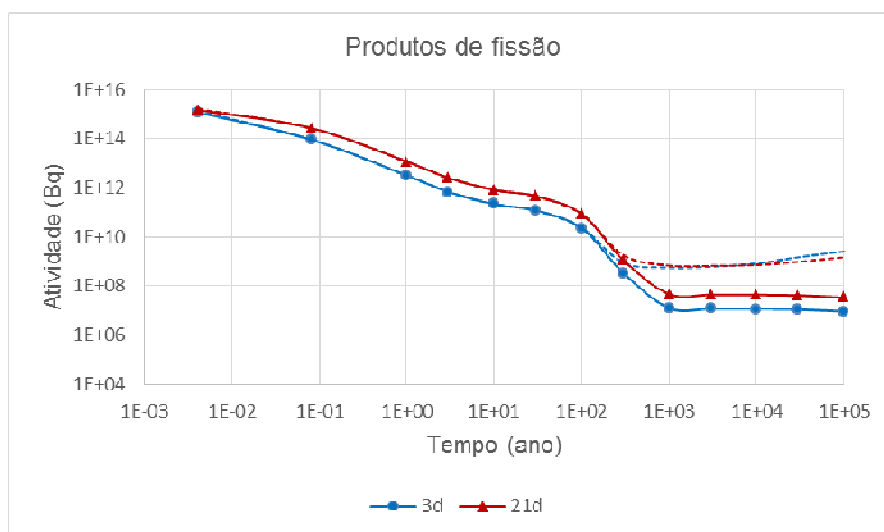
As Figuras 2, 3 e 4 apresentam os resultados obtidos para 3 e 21 dias de irradiação, detalhados em termos de contribuição dos produtos de ativação, produtos de fissão e transurânicos à atividade total.



**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, In **INTERNATIONAL NUCLEAR ATLANTIC CONFERENCE**, 2013. Annals... Recife: Comissão Nacional de Energia Nuclear, 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.