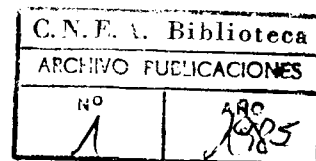


CARACTERIZACION DE PRODUCTOS SECUNDARIOS EN EL PROCESO DE PRODUCCION DE ^{99m}Tc . EVALUACION DE SU ACTIVIDAD Y RADIOEXPOSICION.

I. M. COHEN, C. MAGNAVACCA, G. B. BARO



Comisión Nacional de Energía Atómica. Dirección de Radioisótopos y Radiaciones.

Resumen

Se ha evaluado la incidencia de los productos secundarios, producidos por la componente rápida del espectro neutrónico, en la gestión de resíduos líquidos del proceso de obtención de ^{99m}Tc en el reactor RA-3. El procedimiento comprendió la determinación experimental de las secciones eficaces de las reacciones involucradas, promediadas sobre un espectro de fisión, y el cálculo matemático de la actividad y la radioexposición de los productos, en las condiciones empleadas para la producción rutinaria de ^{99m}Tc .

Se describe el método empleado y se discuten los resultados.

Introducción

El ^{99m}Tc , nucleído ampliamente utilizado en Medicina y Biología, se obtiene a partir de su madre radiactiva, el ^{99}Mo . Existen dos métodos para la obtención de ^{99}Mo en un reactor nuclear: a partir de la fisión del ^{235}U y como producto de la reacción de captura neutrónica sobre ^{98}Mo . Este último es el método usado hasta ahora por la Comisión Nacional de Energía Atómica, y su único producto esperado es ^{99}Mo . Sin embargo, analizando los residuos líquidos activos del proceso, los autores identificaron otros tres nucleídos: ^{92m}Nb , ^{95}Nb y ^{95}Zr , cuya aparición se explica por la existencia de otras reacciones inducidas sobre el molibdeno por neutrones rápidos. Estas reacciones son: $^{92}\text{Mo}(n,p)^{92m}\text{Nb}$; $^{95}\text{Mo}(n,p)^{95}\text{Nb}$; $^{98}\text{Mo}(n,\alpha)^{95}\text{Zr}$. Como los períodos de semidesintegración de los productos son considerablemente más largos que el de ^{99}Mo (^{92m}Nb $t_{1/2} = 10,15$ d; ^{95}Nb $t_{1/2} = 35,15$ d; ^{95}Zr $t_{1/2} = 64,0$ d) es necesario evaluar su actividad y radioexposición, en relación a la gestión de residuos activos. Con este fin se efectuó previamente la determinación de las secciones eficaces de las reacciones involucradas, ya que los datos tabulados eran insuficientes o de escasa precisión, realizando luego los cálculos correspondientes,

en las condiciones de operación del reactor RA-3.

Parte experimental

Se irradiaron en el reactor RA-3 del Centro Atómico Ezeiza hojuelas de molibdeno metálico, juntamente con otras de hierro y manganeso, como monitores de flujo rápido. Las reacciones (n,p) y $(n,2n)$ inducidas sobre ellas tienen diferente energía umbral (4,4 Mev y 10,4 Mev, respectivamente) (1), dando suficiente información sobre la componente de neutrones rápidos del reactor, aunque en un trabajo previo ya se había comprobado que ésta coincide con un espectro de fisión. (2) El flujo rápido en la posición elegida para las irradiaciones fue de $1,1 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ aproximadamente.

Los materiales empleados fueron metales de muy alta pureza. Las hojuelas fueron lavadas, secadas, pesadas y colocadas en una pequeña caja de cadmio, que fue montada con geometría reproducible en la cápsula de irradiación. Se hicieron varias irradiaciones, todas ellas de seis horas de duración. Se incluyó también en cada irradiación una laminilla de zirconio metálico, sometida al mismo tratamiento, con el objeto de producir ^{95}Zr por reacción (n,γ) .

Luego de varios días desde el fin de la irradiación, se retiraron las muestras y se midieron, verificándose que el único producto identificable en espectrometría gamma era el producto principal, ^{99}Mo . Sólo luego de un tiempo de decaimiento prolongado fue posible medir con precisión adecuada los nucleidos de interés; este tiempo fue de 20 días para el $^{92\text{m}}\text{Nb}$ y de 60 días para ^{95}Nb y ^{95}Zr .

Las mediciones se efectuaron con un detector de Ge(Li) , Princeton Gamma Tech, de 70 cm^3 y 2,4 keV de resolución para el pico de 1332,5 keV de ^{60}Co , acoplado a un analizador multicanal Canberra Serie 80, de 4096 canales, con salida a teletipo. Para el cálculo de áreas se empleó el método de Covell (3). Las energías gamma, la intensidad absoluta de las radiaciones (4), y la eficiencia absoluta para los nucleidos medidos se incluyen en la Tabla I, así como el número de mediciones efectuadas para cada irradiación; el que fue ajustado para obtener una dispersión estadística adecuada, en cada caso, teniendo en cuenta las diferentes velocidades de conteo.

En el caso de la reacción $^{95}\text{Mo}(n,p)^{95}\text{Nb}$ fue necesario considerar el hecho de que el ^{95}Nb es la hija del ^{95}Zr , agregando así una vía adicional

de producción, distinta de la reacción nuclear directa. Para restar esa contribución se efectuó la relación de áreas de ambos nucleidos en el patrón de zirconio irradiado, en el cual la única forma de producción de ^{95}Nb es el decaimiento de ^{95}Zr , y se descontó esta contribución a la actividad total de ^{95}Nb medida en el molibdeno. Una vez corregidas las actividades, se obtuvieron por cálculo inmediato las secciones eficaces de las reacciones correspondientes y a partir de ellas se calcularon las actividades de los subproductos para un caso típico de operación.

TABLA I

Datos correspondientes a las mediciones

Nucleido	Radiac. medida (keV)	Intens. absol. de la radiac.	Eficiencia de la medición	Nº de medic. por c/irrad.
$^{92\text{m}}\text{Nb}$	934,0	$0,992 \pm 0,002$	$4,44 \times 10^{-4*}$	2
^{95}Nb	765,6	$0,998 \pm 0,0009$	0,02644	3
^{95}Zr	756,5	$0,546 \pm 0,005$	0,02684	3

Resultados y discusión

Los resultados de las secciones eficaces obtenidos para las reacciones fueron las siguientes, en milibarns: $^{92}\text{Mo}(n,p)^{92\text{m}}\text{Nb}$: $6,92 \pm 0,43$; $^{95}\text{Mo}(n,p)^{95}\text{Nb}$: $0,1511 \pm 0,0091$ y $^{98}\text{Mo}(n,\alpha)^{95}\text{Zr}$: $0,00857 \pm 0,00056$.

Los errores consignados incluyen la dispersión estadística de los promedios, y los errores sistemáticos involucrados: de la fuente calibrada de ^{54}Mn empleada en el cálculo de flujo rápido, de las secciones eficaces de las reacciones nucleares de los monitores de flujo, de las intensidades absolutas de las radiaciones medidas y de las mediciones de la fuente.

La precisión de estos resultados en comparación con datos ya publicados (1) es mejor; la discrepancia existente entre el valor para la reacción $^{98}\text{Mo}(n,\alpha)^{95}\text{Zr}$ y el único valor previo (5) puede explicarse por las condiciones más favorables empleadas en este trabajo; el autor de la referencia (5) utilizó un detector de NaI(Tl), con la consiguiente probabilidad de haber cometido errores importantes en la resolución del complejo $^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$; la espectrometría gamma de alta resolución, permitió, en el presente caso, la adecuada discriminación de los picos de diferentes energías.

Las actividades de los productos secundarios cuando se irradia molibdeno para el proceso de producción $^{99}\text{Mo} - ^{99\text{m}}\text{Tc}$ se indican en la Ta-

* En este caso, las condiciones de geometría fueron diferentes al resto.

bla II; mientras que en la Tabla III se incluyen los datos de radioexposición a un metro, en aire. Los cálculos se hicieron para el caso en que se irradian 25 g de óxido de molibdeno en una posición del reactor caracterizada por los siguientes parámetros: $\phi_t = 3 \times 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$; $\phi_t/\phi_r = 3$; $\phi_{\text{epi}}/\phi_t = 0,03$; durante dos ciclos de operación ya que es usual que las muestras se irradien durante más de un ciclo, y con ello aumenta la importancia de la formación de los productos secundarios.

Tabla II

Evolución de la actividad en una muestra de 25 g de óxido de molibdeno, irradiada durante 2 ciclos de operación. (en mCi).

tiempo de decaimiento (días)	$^{99}\text{Mo}-^{99\text{m}}\text{Tc}$	$^{92\text{m}}\text{Nb}$	^{95}Nb	^{95}Zr
0	5598	12,5	0,109	$5,46 \times 10^{-3}$
1	4348	11,6	0,107	$5,39 \times 10^{-3}$
2	3382	10,8	0,105	$5,35 \times 10^{-3}$
5	1583	8,8	0,099	$5,16 \times 10^{-3}$
10	450	6,3	0,089	$4,90 \times 10^{-3}$
20	36	3,2	0,074	$4,39 \times 10^{-3}$
30	3	1,6	0,060	$3,95 \times 10^{-3}$
60	$1,5 \times 10^{-3}$	0,2	0,033	$2,85 \times 10^{-3}$

Tabla III

Evolución de la radioexposición en una muestra de 25 g de óxido de molibdeno, irradiada durante 2 ciclos de operación. (en mR/h).

tiempo de decaimiento (días)	$^{99}\text{Mo}-^{99\text{m}}\text{Tc}$	$^{92\text{m}}\text{Nb}$	^{95}Nb	^{95}Zr
0	846	6,49	0,047	$2,22 \times 10^{-3}$
1	656	5,99	0,046	$2,18 \times 10^{-3}$
2	511	5,66	0,045	$2,16 \times 10^{-3}$
5	238	4,60	0,042	$2,08 \times 10^{-3}$
10	68	3,28	0,038	$1,98 \times 10^{-3}$
20	5	1,65	0,031	$1,78 \times 10^{-3}$
30	0,4	0,83	0,026	$1,60 \times 10^{-3}$
60	$0,2 \times 10^{-3}$	0,10	0,014	$1,15 \times 10^{-3}$

Como se observa en la correspondiente Tabla, las actividades de ^{92m}Nb , ^{95}Nb y ^{95}Zr alcanzan la importancia de la del producto principal, ^{99}Mo , en 35, 48 y 67 días, respectivamente. En la evolución de la radioexposición la influencia de los subproductos es aún mayor, por ser más energéticas sus emisiones; la igualdad se alcanza en 26, 42 y 54 días, respectivamente.

Los datos obtenidos permiten concluir que la influencia de estos nucleidos en actividad y exposición debe ser considerada para la gestión de los residuos líquidos activos del proceso, sobre todo a largo plazo.

Agradecimientos

Los autores agradecen a A. Nardi por su colaboración en la búsqueda bibliográfica y a Ursula Irene Kopp de Trípoli su ayuda en la preparación del presente trabajo.

Referencias

- (1) A. CALAMAND, en Handbook on Nuclear Activation Cross Sections. Technical Reports Series N° 1561. IAEA, Vienna (1974).
- (2) J. J. GIL GERBINO, I. M. COHEN, R. O. KOROB, G. B. BARO, J. Inorg. Nucl. Chem. 38, (1976), 1386.
- (3) D. F. COVELL, Anal. Chem., 31, (1959), 1785.
- (4) C. M. LEDERER, V. S. SHIRLEY. Table of Isotopes, 7th ed., Wiley, New York, Chichester, Brisbane, Toronto (1978).
- (5) G. RAU. Nukleonik, 9 (1967) 228.