

Determinación del grado de quemado posproducción de molibdeno 99 por disolución alcalina mediante espectrometría gamma de lantánidos

Patricio M. dos Reis, Laura I. Méndez

Universidad Tecnológica Nacional, Facultad Regional Avellaneda. Ramón Franco 5050 (B1874ABY) Villa Dominico, Provincia de Buenos Aires, Argentina

pmdosreis@gmail.com

Recibido el 11 de enero de 2023, aprobado el 7 de febrero de 2023

Resumen

El europio 155 y otros lantánidos resultan interesantes, por sus propiedades fisicoquímicas y radioquímicas, como monitores de quemado por espectrometría gamma en remanentes de la producción alcalina de molibdeno 99. Se estudiaron propiedades químicas en condiciones de trabajo usuales y se realizaron cálculos numéricos y mediante software para analizar el comportamiento de radioisótopos de interés y validar las técnicas de medición propuestas. Se concluyó que, dentro de los rangos típicos de operación, temperaturas de trabajo y flujos neutrónicos aplicados, la técnica es viable para materiales remanentes de procesos de separación alcalina en medio oxidante, debiendo someterse a verificación experimental.

PALABRAS CLAVE: QUEMADO - ESPECTROMETRÍA GAMMA - MOLIBDENO 99 - EUROPIO 155 - CÁLCULO

Abstract

Europium 155 and other lanthanides are interesting, due to their physicochemical and radiochemical properties, as burn-up monitors using gamma spectrometry in remnants of the alkaline production of molybdenum 99. Chemical properties were studied under usual working conditions and numerical calculations and software were performed to analyze the behavior of radioisotopes of interest and validate the proposed measurement techniques. It was concluded that, within the typical operating ranges, working temperatures and usual neutron fluxes, the technique is viable for materials remaining from alkaline separation processes in an oxidizing medium, and subject to further experimental verification.

KEYWORDS: BURNUP - GAMMA SPECTROMETRY - MOLYBDENUM 99 - EUROPIUM 155 - CALCULATION

Introducción

Diversas instalaciones en el mundo irradian uranio enriquecido para la producción del isótopo médico molibdeno 99 (Mo-99). El tecnecio 99m (Tc-99m), hija del molibdeno 99, es el radioisótopo más extensamente utilizado para aplicaciones médicas en el planeta. Este radioisótopo resulta particularmente indicado, por su energía y su período de semidesintegración, para el diagnóstico médico, puesto que la primera es de 140,511 keV y el segundo de 6,0067 horas. Es decir, presenta buena eficiencia para su detección y rápida eliminación del organismo por su período (Saha, 2010) y asimismo por sus propiedades fisicoquímicas dado que no se acumula en él.

La producción del isótopo molibdeno 99 se inicia con la irradiación para fisión de blancos de uranio de enriquecimientos que van desde los altos enriquecimientos (cerca de un 90 % o más), actualmente en desuso por motivos de No Proliferación Nuclear, a enriquecimientos bajos a moderados (20 % aproximadamente), en general con neutrones térmicos con flujos neutrónicos del orden de 10^{14} n/cm²s. La cantidad de molibdeno 99 producida dependerá del flujo neutrónico, de la masa del uranio 235 (U-235), su sección eficaz de fisión para neutrones térmicos, el tiempo de decaimiento del molibdeno 99 y el tiempo de irradiación en el reactor. Para flujos neutrónicos típicamente utilizados se alcanza un rendimiento óptimo de producción en torno a los 5 días de irradiación (Cristini *et al.*, 2002; Marqués *et al.*, 1987).

Existen básicamente dos formas principales de disolución de los blancos irradiados para la producción del molibdeno 99 por fisión: la disolución alcalina y la disolución ácida (Whipple, 2009). La disolución alcalina es común en materiales que contienen aluminio y silicio (Snelgrove *et al.*, 1994). Este proceso es extensamente utilizado en todo el mundo (Lee *et al.*, 2016; Marqués, 1989; Van Kleef y Duijves, 2001) y está basado en un método desarrollado por el Instituto de Karlsruhe, Alemania (Sameh, 1989-2013). El blanco irradiado se disuelve en una solución de hidróxido de sodio entre 3M y 6M en medio oxidante. En estado sólido permanecerá el uranio y actínidos en general, así como la mayoría de los productos de fisión exceptuando los metales alcalinos y alcalinotérreos, el yodo, los gases de fisión y los elementos que pueden formar aniones como el aluminio y el molibdeno. La solución obtenida es filtrada para retirar los sólidos suspendidos usando un sistema filtrante adecuado. Este filtro retiene el sólido que contiene el uranio y los productos de fisión en general.

Adicionalmente a la producción de radioisótopos medicinales, el uso de monitores de quemado puede ser de utilidad para diversas aplicaciones que incluyen estudiar nuevos combustibles en reactores de investigación de materiales, facilitar ciertas actividades o procedimientos de control de Salvaguardias Nucleares o para adquirir información de relevancia para el control interno de inventario nuclear en instalaciones que trabajan con material fisionable.

La determinación del quemado suele requerir métodos costosos, complicados o laboriosos como la espectrometría de masas o la separación por técnica HPLC (Devida *et al.*, 2002; Radulescu *et al.*, 1992; Robin *et al.*, 1973-1974). Una alternativa relativamente simple es el uso de la espectrometría gamma (Ebaid, 2009; Phillips, 2007; Smith, 2007), que podría ser incluso una técnica de análisis no destructivo en ciertas condiciones.

La forma más común de medir el grado de quemado por espectrometría gamma en combustibles o materiales que no han sufrido una separación posterior es relacionando los isótopos de cesio 134 (Cs-134) y cesio 137 (Cs-137) o mediante aplicaciones de éste último en relación a otros isótopos (Böck, 1992; Caruso, 2007; Lamas Cunha *et al.*, 1981; Phillips, 2007; Valenzuela, 2009; Warner, 2016). El cesio presenta propiedades fisicoquímicas que lo hacen seguir el camino del molibdeno 99 en el proceso de disolución alcalina y de ese modo no se retiene cuantitativamente en la matriz sólida conteniendo uranio.

A diferencia del cesio, el europio es fuertemente insoluble en medio alcalino en el estado de oxidación 3+ y, es de suponer, permanece retenido junto al uranio en la matriz sólida.

Las propiedades químicas de los lantánidos están fuertemente vinculadas al tamaño del ion 3+, siendo esta la configuración más estable de los lantánidos en general (Cotton, 2006; Cotton y Wilkinson, 1969; Kagan et al., 1988).

Esto explica por qué es esperable que durante la disolución de blancos irradiados para la producción de molibdeno medicinal no se pierda, esencialmente, masa de europio como hidróxido ligeramente soluble $\text{Eu}(\text{OH})_2$, al no haber condiciones para la reducción del mismo durante el mencionado procedimiento sino al contrario, dado que dicha disolución suele efectuarse en presencia de peróxido de hidrógeno (Hutter et al., 1994).

Debido a que el hidróxido de Eu^{3+} presenta una constante del producto de solubilidad (Kps) extremadamente baja, resultando en una solubilidad en agua a 20°C de $1,538 \times 10^{-5}$ g Eu/100 g H_2O (Lide, 2003), permanecería retenido en su totalidad o en gran medida en el óxido durante la filtración de la solución generada al atacar los blancos en medio alcalino fuerte y oxidante.

Además del europio, otros lantánidos, como el cerio, son altamente insolubles en medio alcalino. Se toma como base la extensa investigación recopilada en el informe *A selected thermodynamic database for REE to be used in HLNW performance assessment exercises* (Spahiu y Bruno, 1995), del cual se extraen diversos datos sobre el producto de solubilidad de diferentes autores y fuentes para distintos lantánidos y varias reacciones químicas que los involucran. En particular se destacan en el contexto del presente estudio los datos de $\log(\text{Kps})$ para la solubilización del Eu^{3+} presente como $\text{Eu}(\text{OH})_3(\text{s})$, de valor -26,9 y para la solubilización del Ce^{3+} desde su hidróxido insoluble $\text{Ce}(\text{OH})_3$, de valor de $\log(\text{Kps})$ igual a -22,1.

Otro punto destacable hallado durante la investigación bibliográfica es el hecho de que los combustibles de siliciuro no se disuelven fácilmente en álcalis, por lo que se requiere de la adición de ciertos oxidantes como el H_2O_2 . Estos combustibles usando enriquecimientos de menos del 20 % de U-235 han reemplazado a los combustibles típicamente utilizados con enriquecimientos de aproximadamente el 90 % por razones de No Proliferación Nuclear (Suripto y Aliluddin, 1994). Esto haría aún más certera la imposibilidad de reducción del europio en combustibles de siliciuro, lo que facilitaría la aplicación de la técnica que se propone en el presente trabajo si se requiere reprocesar o recuperar uranio con enriquecimientos del orden de 20 % o menos que haya sido irradiado en producción de molibdeno 99.

Los isótopos 154 y 155 del europio presentan varios picos medibles y sus periodos de semidesintegración son suficientemente grandes para poder medirlos varios años después del decaimiento. Por otra parte, el cerio 144 (Ce-144) es un isótopo que comúnmente se presenta luego de la irradiación y por poseer características similares al resto de los lantánidos se encontrará junto con el europio.

En base a estas observaciones, se desarrolló como alternativa una técnica basada en la medición de radiación gamma emitida por el isótopo 155 del europio relativa al uranio 235, así como técnicas auxiliares involucrando isótopos del europio y el cerio.

Dicho desarrollo implicó: la obtención de expresiones matemáticas y evaluación mediante software, además de consideraciones teóricas basadas en evidencia bibliográfica del comportamiento químico de lantánidos y del uranio. Se analizó la generación de los isótopos de interés en los reactores nucleares durante la irradiación, la producción por fisión y la competencia con los procesos de captura neutrónica y con la información

recopilada se elaboró una propuesta de metodología general para la determinación del quemado mediante datos de medición basada en espectrometría gamma de alta resolución. Adicionalmente, se elaboraron técnicas para determinar el enfriamiento en combustibles almacenados si este dato se desconoce.

Parte experimental

Desarrollo matemático de una expresión global para determinación del quemado por espectrometría gamma

El presente desarrollo se fundamenta en que, si la cantidad remanente del monitor de quemado posirradiación es representativa del proceso de fisión, puede considerarse que la medición de dicho isótopo es una forma de evaluar el propio quemado. Se busca aprovechar aquí la relación entre la masa consumida del isótopo 235 del uranio con la que se forma de europio 155. Siempre que se asuma linealidad entre el quemado del isótopo fisiónable y la producción de algún otro isótopo por la propia fisión, en este caso de europio 155, será válido proponer:

$$\Delta N_{u5} = \frac{N'_{Eu}}{Y_{Eu}\%} \quad (1)$$

Siendo ΔN_{u5} la desaparición de átomos de uranio 235, N'_{Eu} el número de átomos producidos del isótopo europio 155 e $Y_{Eu}\%$ el rendimiento porcentual (expresado como fracción en la fórmula) de producción de dicho isótopo. Este rendimiento es estadístico y se encuentra tabulado en diversas publicaciones, adoptándose aquí el valor provisto por la International Atomic Energy Agency (IAEA) en Nuclear Data Services NDS-IAEA.

La cantidad de átomos presentes de europio al final del proceso de irradiación puede medirse mediante espectrometría gamma en relación a la actividad detectada, corrigiéndola por decaimiento siempre que se conozca la fecha de irradiación del material y dado el período de semidesintegración del isótopo europio 155 (de valor 4,753 años) (Bé *et al.*, 2004), pudiéndose medir varios años después de dicha irradiación. Para el caso del isótopo 235 del uranio, el período de semidesintegración es demasiado grande para considerar el decaimiento del mismo.

Teniendo en cuenta decaimiento del europio entre el proceso de irradiación y la medición por espectrometría gamma, entonces:

$$\Delta N_{u5} = \frac{N_{Eu}}{e^{-\lambda_{Eu} \cdot t_d} Y_{Eu}\%} \quad (2)$$

Dónde λ_{Eu} es la constante de decaimiento del europio y t_d el tiempo de decaimiento entre irradiación y medición, siendo ahora N_{Eu} el número de átomos actualmente presentes en la muestra.

Tanto el número de átomos de europio como el número de átomos del isótopo 235 del uranio pueden medirse en base a las actividades obtenidas por espectrometría gamma. Se pueden hallar diversos picos en la región de bajas energías para ambos isótopos, encontrándose picos de buena estadística de medición para el isótopo 155 del europio para energías próximas a la del más fácilmente detectable del uranio 235 (cerca de 186 keV).

Partiendo de la ecuación (2) y de la relación entre actividad (A), la constante de desintegración (λ) y número de átomos (N) y relacionando los números de átomos para el

europio 155 (indicado con sufijo Eu) y uranio 235 luego de la irradiación o final (indicado con sufijo u5f):

$$\frac{N_{Eu}}{N_{u5f}} = \frac{A_{Eu}}{\lambda_{Eu}} \cdot \frac{\lambda_{u5}}{A_{u5}} \tag{3}$$

O, lo que es igual, en función de las cuentas detectadas (C), intensidad en el pico (i) y eficiencia de detección (ϵ) para cada isótopo:

$$\frac{N_{Eu}}{N_{u5f}} = \frac{C_{Eu}}{\lambda_{Eu}} \cdot \frac{\lambda_{u5}}{C_{u5}} \cdot \frac{\epsilon_{u5}}{\epsilon_{Eu}} \cdot \frac{i_{u5}}{i_{Eu}} \tag{4}$$

Reemplazando en (2) y a la vez separando en función de las cantidades de átomos de uranio inicial (indicado como $u5i$) y final, se obtiene:

$$N_{u5i} = N_{u5f} + \frac{\frac{C_{Eu}}{\lambda_{Eu}} \cdot \frac{\lambda_{u5}}{C_{u5}} \cdot \frac{\epsilon_{u5}}{\epsilon_{Eu}} \cdot \frac{i_{u5}}{i_{Eu}} \cdot N_{u5f}}{e^{-\lambda_{Eu} \cdot t_d} Y_{Eu} \%}} \tag{5}$$

Puesto que el número de átomos de uranio 235 antes y después de la irradiación responden al mismo número másico, puede escribirse en función de las masas:

$$m_{u5i} = m_{u5f} \left(1 + \frac{\frac{C_{Eu}}{\lambda_{Eu}} \cdot \frac{\lambda_{u5}}{C_{u5}} \cdot \frac{\epsilon_{u5}}{\epsilon_{Eu}} \cdot \frac{i_{u5}}{i_{Eu}}}{e^{-\lambda_{Eu} \cdot t_d} Y_{Eu} \%}} \right) \tag{6}$$

O bien,

$$\frac{m_{u5f}}{m_{u5i}} = \frac{1}{\left(1 + \frac{\frac{C_{Eu}}{\lambda_{Eu}} \cdot \frac{\lambda_{u5}}{C_{u5}} \cdot \frac{\epsilon_{u5}}{\epsilon_{Eu}} \cdot \frac{i_{u5}}{i_{Eu}}}{e^{-\lambda_{Eu} \cdot t_d} Y_{Eu} \%}} \right)} \tag{7}$$

Resultando que el quemado (B , como fracción de uranio 235) puede expresarse como:

$$B = 1 - \frac{m_{u5f}}{m_{u5i}} = \frac{\frac{C_{Eu}}{\lambda_{Eu}} \cdot \frac{\lambda_{u5}}{C_{u5}} \cdot \frac{\epsilon_{u5}}{\epsilon_{Eu}} \cdot \frac{i_{u5}}{i_{Eu}}}{\left(e^{-\lambda_{Eu} \cdot t_d} Y_{Eu} \% + \frac{C_{Eu}}{\lambda_{Eu}} \cdot \frac{\lambda_{u5}}{C_{u5}} \cdot \frac{\epsilon_{u5}}{\epsilon_{Eu}} \cdot \frac{i_{u5}}{i_{Eu}} \right)} \tag{8}$$

La ecuación obtenida permite averiguar el grado de quemado porcentual o fraccionario estudiando los espectros gamma en forma relativa, dado que sólo depende de las relaciones de conteos de europio y uranio en la espectrometría gamma, de constantes conocidas ($\lambda_{u5}, \lambda_{Eu}, \lambda_{u5}, \lambda_{Eu}, Y_{Eu} \%$) y de las eficiencias en energía para cada isótopo ($\epsilon_{u5}, \epsilon_{Eu}$) que, de trabajarse en zonas de energía similares no deberían afectar la medición relativa (Knoll, 2010), así como del tiempo de enfriamiento que es otro factor que fue estudiado en el presente trabajo. Esto significa que todo el procedimiento de cálculo de quemado, incluyendo la estimación de tiempos, podría realizarse para cualquier geometría o forma fisicoquímica sin necesidad de calibrar en particular esa fuente.

Métodos de cálculo

Para estudiar la influencia de la captura neutrónica en la expresión obtenida se tuvo en cuenta la formación de los isótopos europio 154 y europio 155 por fisión y también por captura, además de su desaparición debida a la captura neutrónica del isótopo precedente.

Dado el corto período de irradiación (aproximadamente cinco días) en relación a sus períodos de semidesintegración (del orden de años) no se consideró desaparición de núcleos por decaimiento durante la misma.

Se efectuó un cálculo numérico basado en ecuaciones diferenciales para relacionar formación de los isótopos del europio por fisión y captura, de modo de verificar en qué rangos de tiempo y condiciones de operación existía, de presentarse, linealidad entre la formación de europio y el quemado de uranio. Luego, este cálculo se contrastó con resultados arrojados por el código ORIP_XXI (Romanov, 2003), de aplicación al quemado y transmutación, para diferentes flujos neutrónicos en distintos rangos de energía de operación.

Para el cálculo numérico se partió del hecho de que la formación de un isótopo en un reactor de fisión, en este caso el europio 155, está dada por la expresión general:

$$\frac{dN(Eu5)}{dt} = N(U235) \cdot \phi_n \cdot \sigma_{fU5} \cdot Y_{Eu5} + N(Eu4) \cdot \phi_n \cdot \sigma_{CEu4} - N(Eu5) \cdot \phi_n \cdot \sigma_{CEu5} \quad (9)$$

donde:

N es el número de átomos,
 ϕ el flujo neutrónico,
 σ_f la sección eficaz de fisión,
 σ_c la sección eficaz de captura e
 Y el rendimiento por fisión.

Esta ecuación depende a su vez de la formación de europio 154, siendo la expresión para la producción del mismo de:

$$\frac{dN(Eu4)}{dt} = N(U235) \cdot \phi_n \cdot \sigma_{fU5} \cdot Y_{Eu4} + N(Eu3) \cdot \phi_n \cdot \sigma_{CEu3} - N(Eu4) \cdot \phi_n \cdot \sigma_{CEu4} \quad (10)$$

No obstante, ésta también depende de la formación de europio 153 de elevada sección eficaz de captura.

$$\frac{dN(Eu3)}{dt} = N(U235) \cdot \phi_n \cdot \sigma_{fU5} \cdot Y_{Eu3} - N(Eu153) \cdot \phi_n \cdot \sigma_{CEu3} \quad (11)$$

Para confirmar la independencia de factores geométricos en energías próximas se efectuó un cálculo mediante software basado en método Monte Carlo con el paquete PENELOPE/penEasy (Sempau, 2020), que permite la simulación de fenómenos de interacción de fotones, positrones y electrones con la materia. Se construyó un espectro gamma hipotético que toma valores relativos basados directamente en las intensidades tabuladas para los isótopos.

Resultado

Formación de europio 155 en función de la fisión de uranio 235 y otras reacciones nucleares

Los valores de sección eficaz utilizados corresponden a las publicaciones de la International Atomic Energy Agency, IAEA en Nuclear Data Services, ENDF/B-VII.1, USA, 2011; blancos: Eu-155, Eu-154 y Eu-153, reacción: N,G, captura radiativa.

Se muestra en la Figura 1 la variación de la sección eficaz microscópica de captura en función de la energía para el isótopo europio 155, generada a través de la web de la IAEA para secciones eficaces de reacciones nucleares.

En la misma figura puede apreciarse que se presentan algunas zonas de resonancia en la región epitérmica, lo cual sugiere pérdida de linealidad en dicha zona de energía y por lo que se interpretó que flujos epitérmicos muy elevados durante la irradiación podrían redundar en resultados no lineales o no reproducibles.

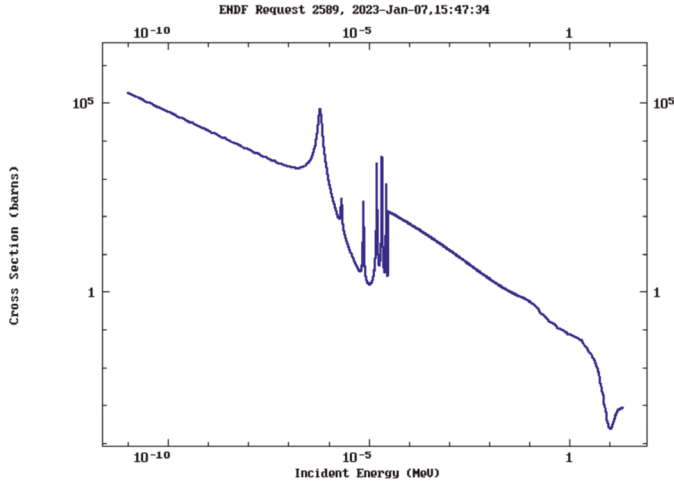


Fig. 1. Gráfica de sección eficaz microscópica de captura radiativa (barn) para el Eu-155 en función de la energía (MeV)

Tabla 1. Secciones eficaces medias para isótopos del europio en diferentes rangos de energía

		Eu-153	Eu-154	Eu-155	U-235
γ%	Sección eficaz (barn)	0,000322	1,91E-9	1,58E-3	-
Térmicos	Fisión	-	-	-	577
	Captura	339,8	1315,75	3588,4	-
Epitérmicos	Fisión	-	-	-	15,58
	Captura	194,99	177,94	169,14	-
Rápidos	Fisión	-	-	-	1,23
	Captura	0,20	0,23	0,06	-

Tabla 2. Formación relativa de europio 155 por fisión de uranio considerando la captura neutrónica en relación a la formación exclusiva por fisión

Días	Tiempo de irradiación (s)	N(t)Eu5	N(t)Eu5 (sólo fisión)	N(t)Eu5	N(t)Eu5 (sólo fisión)	N(t)Eu5	N(t)Eu5 (sólo fisión)
		Región térmica		Región epitérmica		Región rápida	
-	0	0	0	0	0	0	0
-	1	1,784E-11	1,784E-11	5,017E-13	5,017E-13	3,963E-14	3,963E-14
-	10	1,784E-10	1,784E-10	5,017E-12	5,017E-12	3,963E-13	3,963E-13
-	100	1,784E-09	1,784E-09	5,017E-11	5,017E-11	3,963E-12	3,963E-12
-	1000	1,784E-08	1,784E-08	5,017E-10	5,017E-10	3,963E-11	3,963E-11
0,12	10000	1,784E-07	1,784E-07	5,017E-09	5,017E-09	3,963E-10	3,963E-10
1,16	100000	1,778E-06	1,784E-06	5,016E-08	5,017E-08	3,963E-09	3,963E-09
5,00	432000	7,490E-06	7,708E-06	2,166E-07	2,167E-07	1,724E-08	1,712E-08
11,57	1000000	1,611E-05	1,784E-05	5,074E-07	5,017E-07	4,766E-08	3,963E-08
23,15	2000000	2,828E-05	3,568E-05	1,113E-06	1,003E-06	2,002E-07	7,925E-08

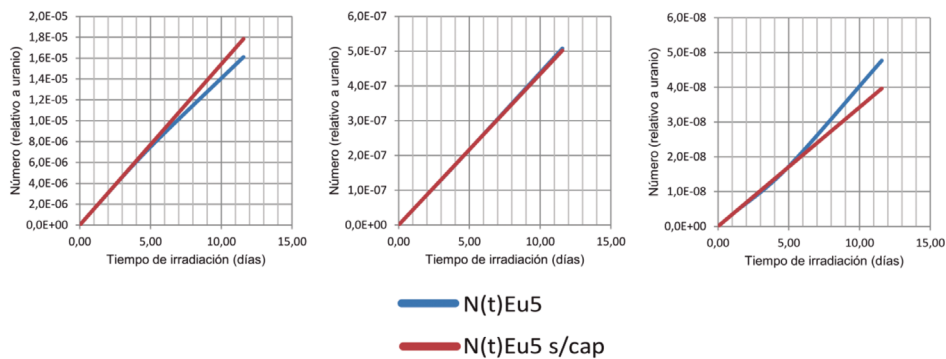


Fig. 2. Gráficas comparativas de la linealidad de formación de Eu-155 por fisión y captura en el tiempo para diferentes rangos de energía. La formación exclusiva por fisión (sin considerar captura) brinda una línea recta de referencia. El flujo neutrónico considerado es de 1×10^{14} n/cm²s. De izquierda a derecha: rangos térmico, epitérmico y rápido.

Se adoptaron valores de flujo de neutrones medios de 1×10^{14} n/cm²s (Cristini *et al.*, 2002; Marqués *et al.*, 1987). Se obtuvo la media de secciones eficaces para diferentes zonas del espectro térmico en base a los resultados de la biblioteca online de la IAEA, ENDF/B.

Utilizando las ecuaciones diferenciales (9), (10) y (11) se obtuvieron resultados que indicaron el rango de linealidad entre la fisión y la producción del isótopo de interés para las condiciones elegidas de flujo neutrónico y los diferentes rangos de energía estudiados. Esto se indica como comparación en dos columnas (Tabla 2) del número de átomos formados por todos los procesos nucleares descriptos en relación a, solamente, los procesos de fisión. El número de átomos formados está dado en forma relativa a cada átomo fisionado de uranio 235. Se muestra en la Tabla 2 al isótopo europeo 155 como Eu5.

En el cálculo se despreció la formación de europio 153 por captura de europio 152 dado que el rendimiento por fisión de este último es de $1,7894 \times 10^{-12}$ y de virtualmente 0 % para el isótopo 151 según NDS-IAEA.

Valores obtenidos mediante código ORIP_XXI

Para verificar el grado de quemado mediante software y validar los resultados obtenidos por cálculo se recurrió al código ORIP_XXI. En él se introdujeron como datos de entrada diferentes flujos para el rango térmico, epitérmico y rápido expresados en función de 1×10^{14} n/cm²s y diferentes temperaturas entre las cuales suelen operar los reactores de producción de molibdeno o de investigación (entre 42 °C y 72 °C, es decir, 315 K y 345 K, respectivamente).

Se analizó la variabilidad respecto al quemado para condiciones tipo de $0,8 \times 10^{14}$ n/cm²s de neutrones térmicos (indicado como 0,8T), $0,3 \times 10^{14}$ n/cm²s de neutrones epitérmicos (0,3E) y $2,5 \times 10^{14}$ n/cm²s de neutrones rápidos (2,5 R).

Los resultados obtenidos se resumen como gradientes de producción de europio 155 en función del consumo de uranio 235 en la tabla 3.

Valiéndose del mismo software, se pudo obtener una serie de valores para diferentes condiciones de irradiación para determinados isótopos de interés. Estos resultados se resumen en la tabla 4, como actividades de cada radioisótopo en curies a 5 días de irradiación.

Tabla 3. Gradiente de formación de europio 155 en función del uranio en g/g

Flujo neutrónico (x 1E+14 n/cm²s)	0,8T 0,3E 2,5R	0,8T 0,3E 2,5R	1,5T 1,0E 2,5R	1,5T 1,0E 2,5R	0,8T 3,0E 2,5R
T (K)	315 K	345 K	315 K	345 K	315 K
Tiempo (días)	$\Delta Eu/\Delta U$ (g/g)	$\Delta Eu/\Delta U$ (g/g)	$\Delta Eu/\Delta U$ (g/g)	$\Delta Eu/\Delta U$ (g/g)	$\Delta Eu/\Delta U$ (g/g)
1	-0,0001678	-0,0001678	-0,0001507	-0,0001504	-0,0001140
2	-0,0001609	-0,0001608	-0,0001341	-0,0001340	-0,0000857
3	-0,0001545	-0,0001545	-0,0001198	-0,0001198	-0,0000677
4	-0,0001484	-0,0001484	-0,0001075	-0,0001076	-0,0000548
5	-0,0001426	-0,0001427	-0,0000970	-0,0000972	-0,0000454
6	-0,0001371	-0,0001373	-0,0000879	-0,0000881	-0,0000384
7	-0,0001319	-0,0001321	-0,0000800	-0,0000802	-0,0000331

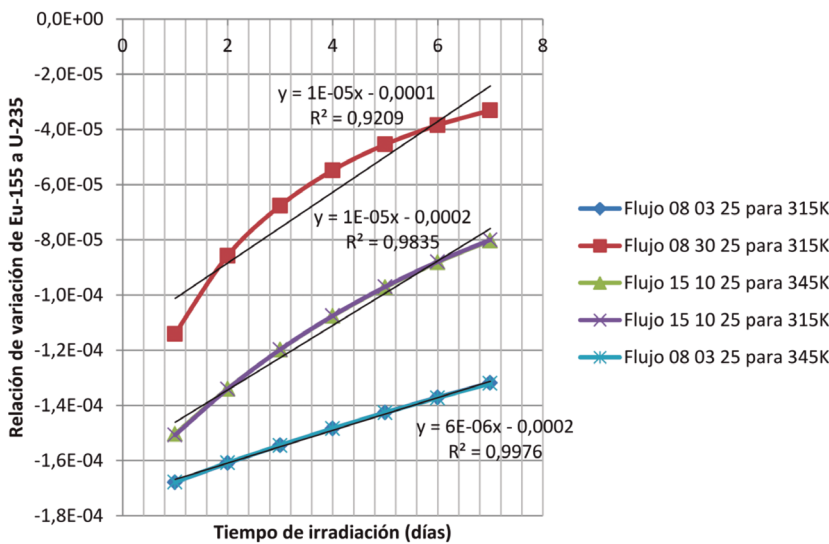


Fig. 3. Estudio de la linealidad de formación de europio en función del consumo de uranio para diferentes rangos de energía de neutrones y temperatura de operación

En base a los datos de actividad en el momento de finalización de la irradiación, obtenidos en ORIP_XXI, se construyeron la Tabla 4, en la que se observa la influencia de las variaciones en el flujo neutrónico y la temperatura, y la Tabla 5 en la que se indican las relaciones entre los radioisótopos de interés en diferentes momentos luego del proceso de irradiación. Posteriormente se generó una gráfica y se obtuvo una expresión matemática que relaciona el tiempo de decaimiento con las actividades relativas de cerio 144 y europio 155.

Se obtiene así una ecuación que permite conocer, en forma estimativa, el tiempo de decaimiento o enfriamiento desde la irradiación hasta la medición (t_d) como función de la relación de actividades de Ce144/Eu155 (R_2):

$$t_d = -1,342 \ln(R_2) + 9,6448 \text{ (años)} \tag{12}$$

Tabla 4. Actividades de diferentes radioisótopos en función de las condiciones de irradiación y relaciones en condición de referencia (42º - 315K y 0,8T, 0,3E, 2,5R en 10¹⁴ n/cm²s)

0,8T 0,3E 2,5R 42º - 315 K 100g U5 (REFERENCIA)	1,5T 1E 2,5R 42º - 315 K 100gU5	1,5T 1E 2,5R 72º - 345 K 100gU5	0,8T 3E 2,5R 42º - 315 K 100gU5	0,8T 0,3E 2,5R 72º - 345 K 100gU5	Isótopos
A (Ci)	A (Ci)	A (Ci)	A (Ci)	A (Ci)	
5,26E+02	1,01E+03	8,18E+02	8,37E+02	4,14E+02	Ce-144
1,58E-06	2,83E-06	2,35E-06	2,40E-06	1,26E-06	Eu-154
3,75E-01	4,74E-01	4,06E-01	2,27E-01	3,05E-01	Eu-155
2,04E-04	1,91E-04	1,96E-04	1,94E-04	2,06E-04	U-235
Relativo a 42º - 315K y 0,8T, 0,3E, 2,5R en 10 ¹⁴ n/cm ² s (valores típicos)					Isótopos
1,000	1,917	1,554	1,591	0,786	Ce-144
1,000	1,791	1,489	1,520	0,798	Eu-154
1,000	1,264	1,083	0,606	0,813	Eu-155

Tabla 5. Actividades de los isótopos de interés en función del tiempo de enfriamiento

	Ce-144	Eu-154	Eu-155	U-235	
T0,5 (años)	0,7789	8,8	4,96	7,04E+08	
t _d , tiempo de enfriamiento (años)	5 días de irradiación en reactor				Ce/Eu5
0	2,20E+02	6,86E-07	1,73E-01	2,11E-04	1,27E+03
5	3,71E+01	5,86E-07	1,27E-01	2,11E-04	2,93E+02
10	6,27E+00	5,01E-07	9,25E-02	2,11E-04	6,78E+01
11	2,57E+00	4,63E-07	7,99E-02	2,11E-04	3,22E+01
12	3,01E-02	3,12E-07	3,94E-02	2,11E-04	7,63E-01
13	1,24E-02	2,89E-07	3,41E-02	2,11E-04	3,64E-01
14	5,08E-03	2,67E-07	2,95E-02	2,11E-04	1,72E-01
15	2,09E-03	2,47E-07	2,54E-02	2,11E-04	8,24E-02

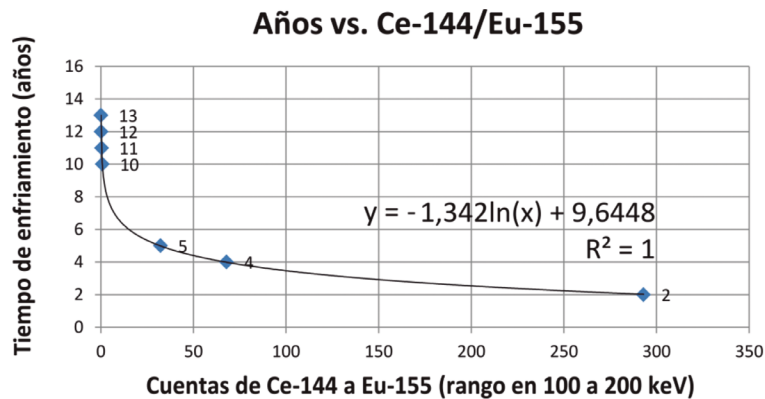


Fig. 4. Gráfica y ecuación, obtenidas a partir de los datos de la Tabla 6, relacionando el tiempo de enfriamiento con la tasa de cuentas de Ce-144 a Eu-155

Análisis de la influencia o independencia de la eficiencia de detección mediante PENELOPE/penEasy

Se elaboró un modelo de un detector de radiación gamma de germanio hiperpuro (HPGe) con PENELOPE (parte del paquete PENELOPE/penEasy). La pastilla de HPGe (identificado en la Figura 5 con color naranja, material: germanio) está cubierta con una cápsula de acero inoxidable (color magenta, material: hierro). En diferentes geometrías se coloca una botella conteniendo una solución acuosa de la muestra (color azul, material: agua).

Por su relativamente corto período de semidesintegración, para enfriamientos largos el cerio 144 estará presente en cantidades poco apreciables. Se estudió qué sucede en su ausencia y luego se efectuó la misma simulación para cada geometría considerando la existencia de cerio en la muestra. Se estudiaron los valores relativos a partir de cantidades arbitrarias, puesto que solo se deseaba obtener relaciones entre radioisótopos. Se indica en Tabla 6 el espectro obtenido para diferentes geometrías y las relaciones de las intensidades espectrales a un valor de referencia (pico de 162 keV).

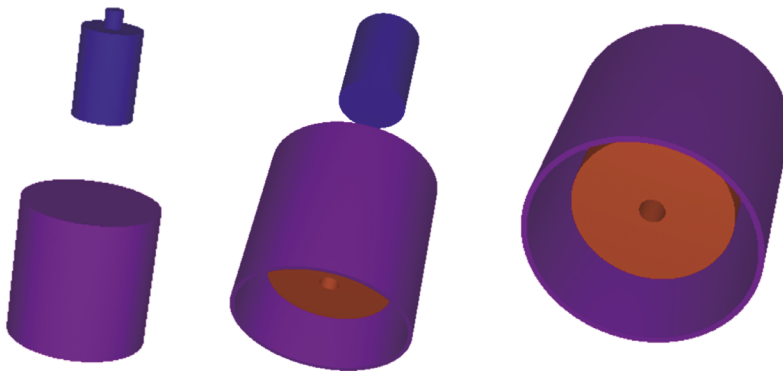


Fig. 5. Diferentes vistas en tres dimensiones de la geometría creada para la simulación de medición en detector de germanio hiperpuro (HPGe) de una muestra acuosa hipotética de la mezcla de isótopos de interés. El material blanco, en naranja, es el germanio.

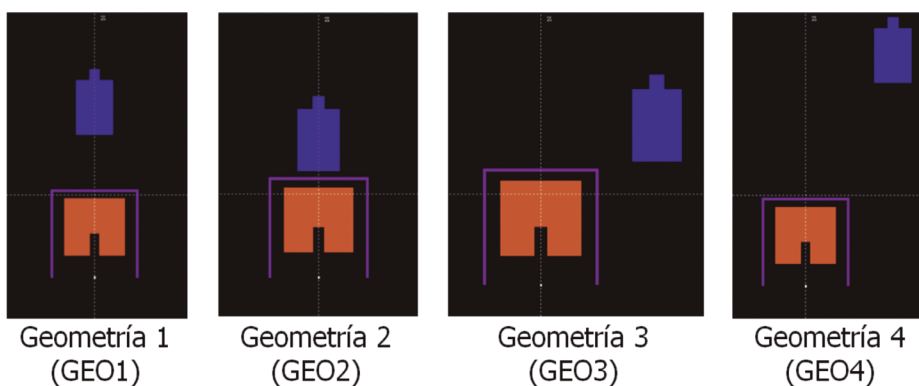


Fig. 6. Diferentes ubicaciones de la muestra en distintas geometrías para simulación por separado y comparación de resultados

Tabla 6. Espectro gamma simulado para las diferentes geometrías generadas. Se indica, además, isótopo al que corresponde cada pico e intensidad relativa de tablas, excepto el cerio 144 al que se le asigna un valor relativo mayor para emular un mayor contenido del mismo.

Energía (eV)	GEO1	GEO2	GEO3	GEO4	isótopo	i
8,60E+04	3,18E-07	1,29E-06	3,50E-07	9,38E-08	Eu5	0,3076
1,06E+05	1,76E-07	7,04E-07	2,03E-07	5,29E-08	Eu5	0,2125
1,22E+05	2,23E-07	8,75E-07	2,53E-07	6,78E-08	Eu4	0,407925
1,34E+05	3,83E-07	1,50E-06	4,42E-07	1,14E-07	Ce	0,9911
1,62E+05	2,92E-08	1,07E-07	3,11E-08	9,33E-09	-	0,05084
1,86E+05	1,20E-07	4,57E-07	1,37E-07	3,59E-08	U5	0,5725
2,06E+05	1,88E-08	6,89E-08	2,19E-08	5,74E-09	-	0,05015
4,26E+05	1,36E-08	5,27E-08	1,59E-08	4,50E-09	Sb	0,3
4,62E+05	6,86E-09	2,65E-08	7,21E-09	2,06E-09	Sb	0,1049315
6,02E+05	4,64E-09	1,95E-08	6,13E-09	1,49E-09	Sb	0,17865
6,34E+05	2,79E-09	1,16E-08	3,76E-09	8,75E-10	Sb	0,11319
7,22E+05	4,75E-09	1,68E-08	5,00E-09	1,41E-09	Eu4	0,20229
1,04E+06	1,58E-09	6,29E-09	2,11E-09	5,00E-10	Eu4	0,18015

Tabla 7. Espectro gamma simulado relativo a la energía de 162 keV tomado a partir de los datos de la Tabla 6. Se indican, además, valores de relación entre Eu-155/U-235 y la desviación respecto a la media, así como el tiempo de enfriamiento calculado para diferentes geometrías en función de la ecuación (12) y su desviación respecto a la media.

Energía (eV)	GEO1	GEO2	GEO3	GEO4	isótopo
1,06E+05	1,44E+00	1,57E+00	1,56E+00	1,36E+00	Eu155
1,22E+05	9,50E-01	1,02E+00	1,01E+00	9,06E-01	Eu154
1,34E+05	6,72E-01	7,15E-01	7,30E-01	6,26E-01	Ce-144
1,62E+05	1,00E+00	1,00E+00	1,00E+00	1,00E+00	-
1,86E+05	3,64E-01	3,77E-01	3,92E-01	3,42E-01	U-235
Eu5/U	3,95	4,15	3,98	3,96	-
%desviación a media	-1,48%	3,54%	-0,86%	-1,20%	-
$t_d = f(\text{Ce/Eu5})$ (años)	9,798	9,831	9,794	9,816	-
%desviación a media	-0,12%	0,21%	-0,16%	0,07%	-

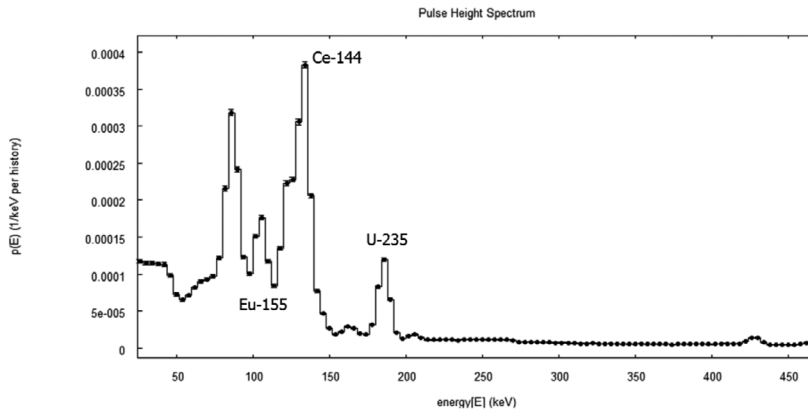


Fig. 7. Espectro gamma simulado conteniendo cantidades relevantes de cerio 144. Puede apreciarse el pico para el uranio 235 y para el Eu-155, pero no se observa el del Eu-154 por superposición del Ce-144.

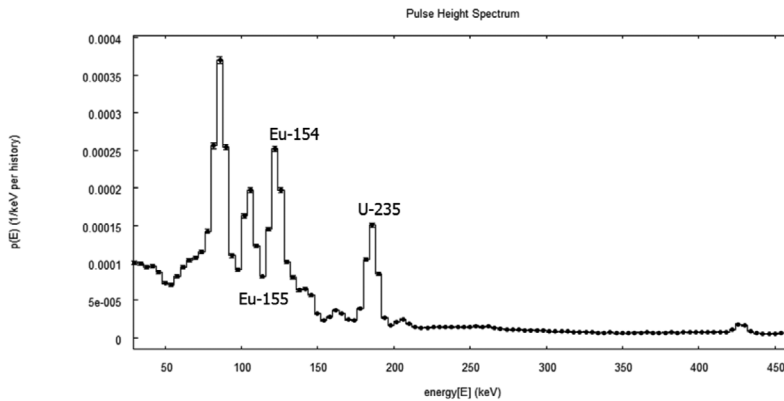


Fig. 8. Espectro gamma simulado conteniendo cantidades no apreciables de cerio 144. Puede visualizarse el pico para el uranio 235 y para el Eu-155 y, en este caso, aparece visible el pico de Eu-154 al no estar enmascarado por el Ce-144.

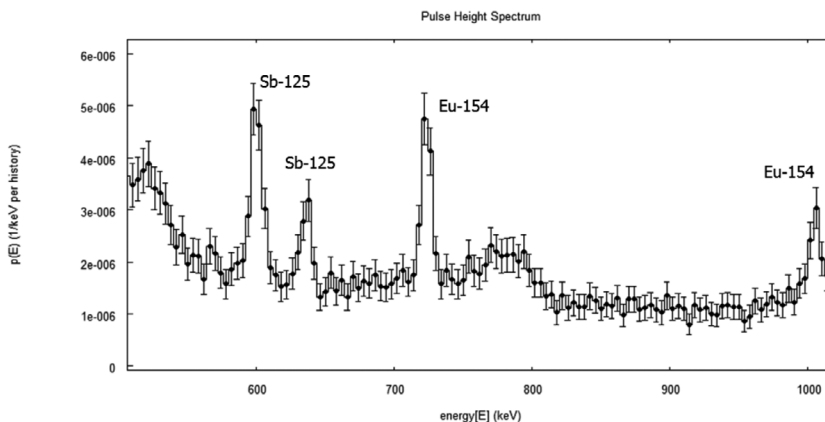


Fig. 9. Espectro gamma simulado para zona de energías intermedias. La mayor parte de los picos corresponde al Sb-125 no considerado en el presente estudio por sus propiedades químicas. No obstante, sí resulta de interés la existencia de diversos picos para el Eu-154.

Se muestran, en las Figuras 7, 8 y 9, los espectros en las diferentes zonas de energía donde puede verse, además, el solapamiento del cerio 144 sobre el europio 154 para tiempos de enfriamiento cortos, para los cuales el primero está en una proporción de actividad mucho mayor.

En la zona de energías intermedias se presentan picos típicos de la espectrometría gamma correspondientes al antimonio 125 y europio 154. El antimonio no fue tomado en cuenta en el presente estudio debido a su solubilidad en medio alcalino y las evidencias bibliográficas de que se halla en los filtrados junto al molibdeno (Marqués, 1989).

De este modo, se puede llegar a una expresión general y más simple dependiente únicamente de las cuentas en los picos de interés de los isótopos cerio 144, europio 155 y uranio 235, para las energías respectivas de 133,515 keV ($i = 11,09\%$), 105,305 keV ($i = 21,2\%$) y 185,712 keV ($i = 57,2\%$). Se considera que las relaciones de eficiencias son prácticamente unitarias en cualquiera de los casos, conforme al análisis previamente realizado.

Llamando X_1 a la relación de cuentas netas de europio 155 a uranio 235 y X_2 a la relación de cuentas netas de cerio 144 a europio 155, todas en los picos considerados del rango 100 a 200 keV y conocidos los datos necesarios ($i_{Ce} = 11,09\%$, $i_{Eu5} = 21,2\%$, $i_{U5} = 57,2\%$, $Y_{Eu}\% = 0,000322$, $\lambda_{Ce} = 0,888 \text{ años}^{-1}$, $\lambda_{Eu5} = 0,146 \text{ años}^{-1}$) se llega a una expresión para el quemado de uranio 235 (fracción, relativa a la masa inicial del isótopo) como función de la relación entre cuentas netas de Eu-155/U-235 en la espectrometría y el tiempo de decaimiento o enfriamiento:

$$B = \frac{1,81956 \times 10^{-8} X_1}{e^{-\lambda_{Eu} \cdot t_d} Y_{Eu}\% + 1,81956 \times 10^{-8} X_1} \quad (13)$$

También se puede llegar a una función exclusiva de las relaciones de cuentas netas en los picos de interés, en la región de 100 a 200 keV de la espectrometría gamma, en caso de que puedan determinarse y no se conozca el tiempo transcurrido desde la irradiación:

$$B = \frac{1,81956 \times 10^{-8} (X_1)}{9,09174 \times 10^{-5} (X_2)^{0,1946} + 1,81956 \times 10^{-8} (X_1)} \quad (14)$$

Discusión

En relación a la linealidad existente entre la producción del isótopo utilizado como monitor de quemado, europio 155, se verificó a partir de los datos obtenidos mediante cálculo, que dentro del rango de los cinco días típicos de irradiación no existe pérdida de linealidad para las condiciones estándar de este procedimiento. No obstante, la desviación se hace apreciable a partir de los 7 u 8 días de irradiación o si las condiciones resultan fuertemente modificadas, especialmente respecto a la composición en energía o variaciones importantes de los flujos neutrónicos.

En función de los datos obtenidos mediante ORIP_XXI expresados en la Tabla 3 y Figura 3 se apreció que la linealidad se va perdiendo a medida que se incrementa el aporte del flujo epitérmico debido a que se hacen más influyentes los procesos de captura. A flujos 0,8T; 0,3E; 2,5R veces $1 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$ se solapan los gráficos a 315K (42 °C) y 345K (72 °C). A flujos 1,5T; 1,0E; 2,5R sucede lo mismo. Se hizo evidente la pérdida de linealidad para 0,8T; 3,0E; 2,5R, donde el flujo epitérmico es de diez veces el valor considerado como estándar.

Con respecto al análisis del tiempo de decaimiento, se verificó mediante la información evaluada y desarrollada en el presente estudio que, siempre que se realice la irradiación de los blancos de producción de molibdeno 99 en un rango típico de flujos neutrónicos en función de la energía, la variabilidad de las relaciones entre los isótopos mencionados podría deberse a dos razones: la primera, a un comportamiento químico diferente durante la disolución que modificaría las proporcionalidades, la segunda a un decaimiento

o enfriamiento luego de la irradiación debido a los períodos de semidesintegración diferentes.

Dado que de las diversas fuentes bibliográficas consultadas se desprende el hecho de que el comportamiento químico de los lantánidos como el cerio y el europio es similar y que estos son extremadamente insolubles en medio alcalino, resulta evidente que la causa de la variabilidad entre la actividad de uno en relación al otro respondería exclusivamente al tiempo de enfriamiento.

En relación a los resultados plasmados en la Tabla 4, se pudo apreciar que en condiciones de irradiación similares respecto al flujo neutrónico se mantiene la proporcionalidad de actividades tanto para cerio 144, así como para el europio 154 y el europio 155, independientemente de las temperaturas en un rango típico de operación, lo cual no sucede al modificar las condiciones de irradiación respecto al flujo neutrónico. Se han realizado cálculos que corroboran que esta proporcionalidad también se mantiene si se preservan las condiciones tipo durante un tiempo más prolongado de irradiación (al menos hasta los 8 días).

En cuanto al desarrollo de una fórmula que permita conocer el tiempo de enfriamiento en caso de desconocimiento del mismo, se eligió como parámetro para la medición de ello la relación de cuentas netas de Ce-144/Eu-155. El motivo de ello es que el cerio 144 presenta buena eficiencia de detección en una zona de energía (133,515 keV con $i = 11,09\%$) muy similar al europio 155 (105,305 keV, con $i = 21,2\%$). Si bien esto también sucede con el europio 154, debe tenerse en cuenta que este último está demasiado próximo al cerio 144 en energía (123,071, $i = 40,79\%$), lo que produce que los picos en esa zona del espectro resulten muy solapados y el correspondiente al europio 154, usualmente mucho menos intenso cuando el cerio 144 se presenta (cuando los tiempos de enfriamiento son relativamente cortos en años) no pueda observarse con facilidad.

Como alternativa, se considera que podrían utilizarse las relaciones entre isótopos del europio o también entre el cerio 144 y el europio 154, pero en este último caso debe tenerse en cuenta que el europio 154 deberá detectarse en otra zona de energía del espectro tal como se muestra en la Figura 9 y en tal caso será necesario corregir por eficiencias, aspecto que se deseó evitar para prescindir de una calibración y relacionar así las cuentas netas sobre la intensidad en forma directa para establecer el tiempo de enfriamiento mediante la ecuación (12).

Como contrapartida, la medición mediante cerio 144 se verá afectada para decaimientos muy largos, dado que en este caso será el europio 154 o incluso los procesos a bajas energías (como el efecto Compton, rayos X, etc.) los que solaparán al cerio 144, resultando que para esos períodos sea necesario recurrir a una separación radioquímica o al uso de otros isótopos, por ejemplo: los del europio.

Si bien el método propuesto ha sido validado mediante diversos códigos de cálculo, la aplicabilidad del mismo queda sujeta a su verificación experimental mediante mediciones por espectrometría gamma de materiales irradiados y procesados en las condiciones en las que se halla enmarcada la actual investigación.

Conclusiones

A partir de los resultados obtenidos se pudo llegar a una expresión general que permite calcular el quemado a partir de una espectrometría gamma de una muestra luego de un posible proceso de disolución alcalina para extracción de molibdeno 99, siendo posible también su potencial aplicación a situaciones previas a que este proceso de disolución fuese realizado. La utilidad de esta metodología se enmarca dentro de los rangos típicos de operación en días de irradiación, temperaturas de trabajo y flujos neutrónicos aplicados.

En base a los cálculos realizados se concluye que la muestra necesaria para la aplicación de la técnica no presentaría limitaciones geométricas o de composición y el resultado sería función, únicamente, de la relación de cuentas netas entre los isótopos Eu-155 y U-235 analizados mediante la propia espectrometría gamma y del tiempo de enfriamiento.

Se obtuvo, además, una fórmula general dependiente únicamente de las cuentas detectadas de los isótopos europio 155, uranio 235 y cerio 144 para situaciones en las que el tiempo de decaimiento no es conocido, debiendo ser esta contrastada con resultados experimentales. Los resultados de aplicar esta fórmula se compararon con valores hipotéticos de tiempo de decaimiento conocido y se verificó la concordancia entre ellos.

Referencias

- BÉ. M.M.; CHISTÉ, V.; DULIEU, C.; BROWNE, E.; CHECHEV, V.; KUZMENKO, N.; HELMER, R.; NICHOLS, A.; SCHÖNFELD, E. y DERSCH, R., (2004). Table of Radionuclides – BIPM (Monographie BIPM-5 Bureau International des poids et mesures).
- BÖCK, H., (1992). Determination of research reactor fuel burnup. International Atomic Energy Agency IAEA, VIENNA, 1992, IAEA-TECDOC-633. ISSN 1011-4289. Austria.
- CARUSO, S., (2007). Characterisation of high-burnup LWR fuel rods through gamma tomography. Tesis doctoral nº 3762. Escuela Politécnica Federal de Lausanne.
- COTTON, F. A. y WILKINSON, G., (1969). Química Inorgánica Avanzada. Limusa-Wiley S.A.
- COTTON, S., (2006). Lanthanide and Actinide Chemistry. Limusa-Wiley S.A. Uppingham School, Uppingham, Rutland, Reino Unido.
- CRISTINI, P.; COLS, H.J.; BAVARO, R.; BRONCA, M.; CENTURIÓN, R. y CESTAU, D., (2002). Production of molybdenum-99 from low enriched uranium targets. Comisión Nacional de Energía Atómica, Centro Atómico Ezeiza. Argentina.
- DEVIDA, C.; GAUTIER, E.; GIL, D. y STANKEVICIUS, A., (2002). The LFR facility (CNEA) for burnup determination in uranium silicide fuels 20% 235U. Comisión Nacional de Energía Atómica. Ezeiza, Argentina. 2002 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Bariloche, Argentina.
- EBAID, Y. Y., (2010). Use of gamma-ray spectrometry for uranium isotopic analysis in environmental samples. Rom. Journ. Phys. Vol.55, Nos 1-2 P69-74.
- HUTTER J. C.; SRINIVASAN B.; VICEK M. y VANDERGRIFT G. F., (1994). Production of Mo-99 Using Low-Enriched Uranium Silicide. Proc. of the 1994 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Williamsburg, Virginia, Argonne National Laboratory Report, ANL/CMT/CP-84245. EE.UU.
- KAGAN, H. B.; SASAKI, M. y COLLIN, J., (1988). Organic chemistry with lanthanides. Laboratoire de Synthèse Asymétrique. Université Paris-Sud, Francia.
- KNOLL, G. F., (2010). Radiation Detection and Measurement (4th ed.). John Wiley & Sons Inc; EE.UU.
- LAMAS CUNHA, I. I.; NASTASI, M. J. C. y LIMA F. W., (1981). Burn-up determination of irradiated uranium oxide by means of direct gamma spectrometry and by radiochemical method. Publicación IPEN 35; Brasil.
- LEE, S. K.; BEYER, G. J. y LEE, J. S., (2016). Development of Industrial-Scale Fission 99Mo Production Process Using Low Enriched Uranium Target. Radioisotope Research Division, Korea Atomic Energy Research Institute, 111 Daedok-Daero 989 Beongil, Yuseong-gu, Daejeon 34057, Corea del Sur. Grunicke Straße 15, D-04347 Leipzig, Alemania.
- LIDE, D. R., (2003). Handbook of Chemistry and Physics, 84th Edition, Chapter 26. CRC Press. EE.UU.
- MARQUÉS, R. O., (1989). Fission molybdenum for medical use. IAEA, VIENNA, 1989, International Atomic Energy Agency. IAEA-TECDOC-515, ISSN 1011-4289. Austria.
- MARQUES, R. O.; CRISTINI, P. R.; MARZIALE, D. P.; FURNARI, E. S. y FERNÁNDEZ,

- H., (1987). Operación de la instalación para producción de Mo-99 partiendo de productos de fisión. Dirección de Radioisótopos y Radiaciones; Comisión Nacional de Energía Atómica; Ezeiza, Argentina. Actas de la XV Reunión Científica, IV Encuentro Latinoamericano, 1^o Jornadas sobre Centrales Nucleares; San Carlos de Bariloche, Río Negro, Argentina.
- PHILLIPS, J. R., (2007). Passive Nondestructive Assay Manual – PANDA. Irradiated fuel measurements (Chapter 18). Los Alamos National Laboratory, EE.UU.
- RADULESCU, R.; DOBRIN, R. y MATEI, A., (1992). Burn-up determination for experimental fuel elements irradiated in TRIGA SSR from NRI Pitesti. Nuclear Research Institute; Pitesti, Rumania. Twelfth European Triga users conference. Pitesti, Rumania.
- ROBIN, M.; HAGEMAN, R.; BOUCHARD, J.; FREJAVILLE, O. y VIDAL, R., (1973-1974). The importance of fission product nuclear data in burnup determination. Commissariat à l’Energie Atomique; Francia. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria; 3 v.; v. 3 p. 59-69. Panel on fission product nuclear data. Bologna, Italia.
- ROMANOV, E. G., (2003). ChainSolver code for calculations of transmutations.
- Saha, G. B. (2010) Fundamentals of Nuclear Pharmacy. Sixth Edition. Springer. Cleveland, Ohio, EE.UU.
- SAMEH, A. H. A., (2013). Production Cycle for Large Scale Fission Mo-99 Separation by the Processing of Irradiated LEU Uranium Silicide Fuel Element Targets. Science and Technology of Nuclear Installations. Volume 2013, Article ID 704846. Ettlingen, Alemania.
- SEMPAU, J., (2020). PENELOPE/penEasy User Manual. Barcelona, España.
- SMITH, H. A. Jr., (2007). Passive Nondestructive Assay Manual – PANDA. The Measurement of Uranium Enrichment (Chapter 7). Los Alamos National Laboratory, EE.UU.
- SNELGROVE, J. L.; HOFMAN, G. L.; WIENCEK, T. C.; WU, C. T.; VANDERGRIFT, G. F.; AASE, S.; BUCHHOLZ, B. A.; DONG, D. J.; LEONARD, R. A. y SRINIVASAN, B., (1994). Development and processing of LEU targets for Mo-99 production – Overview at the ANL program. Argonne National Laboratory. Argonne, Illinois, EE.UU.
- SPAHIU, K. y BRUNO, J., (1995). A selected thermodynamic database for REE to be used in HLNW performance assessment exercises, MBT Tecnología Ambiental, Cerdanyola. España, January SVENSK KARNBRANSJ.EHANTERING AB, SWEDISH NUCLEAR FUEL AND WASTE MANAGEMENT CO.
- SURIPTO, A. y ALILUDDIN, Z., (1994). Indonesian National Atomic Energy Agency; Serpong; Indonesia. International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors. RERTR 1994 Paris, Francia.
- VALENZUELA, P. A., (2009). Estudio experimental del quemado de combustible nuclear por el método de espectrometría gamma. Tesis de maestría. Universidad Autónoma del Estado de México, Toluca, México.
- VAN KLEEF, R. M. y DUIJVES, K. A., (2001). Radioactive Waste Treatment From Mo-99 Production Facility in the Netherlands. WM ’01 Waste Management Conference; Tucson, Arizona, EE.UU.
- WARNER, D. C.; CEO, R. N. y GULBRANSEN, D. E., (2016). NDA analysis of legacy INL wastes for disposal at WIPP. Technical papers, Canberra Industries Inc.
- WHIPPLE, C., (2009). Molybdenum-99/Technetium-99m Production and Use. National Research Council (US) Committee on Medical Isotope Production Without Highly Enriched Uranium. Washington DC, EE.UU.