



Studio preliminare di progetto sulla produzione
di $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$
ai Laboratori Nazionali di Legnaro
mediante acceleratori di particelle

Juan Esposito

Paolo Colautti

Giugno 2010

INFN Report
INFN-LNL-232(2010)

Indice

2

Introduzione.....	3
I Parte: Possibili metodi di produzione del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ ai LNL.....	3
1.1. Richiami ed analisi delle reazioni nucleari per la produzione del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$	3
1.2. Metodi di produzione del ^{99}Mo	5
1.2.1. Reazione $^{100}\text{Mo}(p,x)^{99}\text{Mo}$	5
1.2.2. Reazione $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$	7
1.2.3. Reazione $^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$	10
1.3. Metodi di produzione del $^{99\text{m}}\text{Tc}$	11
1.3.1. Reazione $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$	11
1.3.2. Reazione $^{98}\text{Mo}(p,\gamma)^{99\text{m}}\text{Tc}$	14
II Parte: Studio preliminare di possibili sistemi per la produzione di ^{99}Mo o di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ai LNL.....	15
2.1. Premessa.....	15
2.2. Produzione di ^{99}Mo mediante neutroni generati col RFQ TRASCO-IFMIF	15
2.2.1. Caratteristiche principali del dispositivo attivatore.....	15
2.2.2. Stima della produzione di ^{99}Mo prevista	20
2.3. Produzione di ^{99}Mo mediante neutroni generati col ciclotrone SPES	22
2.3.1. Caratteristiche principali del dispositivo attivatore.....	22
2.3.2. Stima della produzione di ^{99}Mo prevista	26
2.4. Produzione del ^{99}Mo e $^{99\text{m}}\text{Tc}$ con i protoni del ciclotrone SPES	28
2.4.1. Caratteristiche principali del fascio di protoni nel bersaglio	28
2.4.2. Stima della produzione di $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ prevista.....	33
2.5. Riassunto dei risultati ottenuti e confronto con i valori riportati in letteratura	36
2.6. Conclusione.....	37
Bibliografia	39

Introduzione

Presso i Laboratori Nazionali di Legnaro (Padova) dell'INFN, si prevede nei prossimi anni l'installazione ed entrata in funzione di due nuovi acceleratori di protoni dalle caratteristiche interessanti e per certi aspetti complementari. Il primo è un ciclotrone, con energia variabile da 40 a 70 MeV e relativamente bassa corrente di fascio, fino a 500 μA (potenza massima 35 kW). Il secondo è un acceleratore di tipo RFQ (quadrupolo a radiofrequenza) di alta intensità, con energia di uscita fissa a 5 MeV, e corrente di fascio di 30 mA (potenza massima 150 kW).

I due acceleratori sono alla base di due linee di ricerca in corso ai LNL. Il primo (progetto SPES) nel campo della fisica nucleare dei nuclei instabili, il secondo (progetto TRASCO-IFMIF) nel campo della fisica nucleare applicata. Per quest'ultimo gli sviluppi sono mirati sia in campo energetico ai futuri reattori a fusione e fissione di IV generazione, sia in quello interdisciplinare medico per la sperimentazione, sui tumori diffusi in stadio avanzato, di tecniche nucleari mediante la Terapia per Cattura Neutronica (NCT). Le caratteristiche di entrambi gli acceleratori sono tuttavia tali da rendere ipotizzabile un loro uso anche per la produzione di alcuni radioisotopi d'interesse clinico, sia mediante reazione diretta con protoni, del tipo (p,x), sia mediante reazioni di cattura neutronica del tipo (n,xn) o (n, γ).

Al fine di valutarne la fattibilità, quindi il potenziale interesse, si riporta nel seguente documento uno studio che valuta l'entità di una possibile produzione di ^{99}Mo ai Laboratori Nazionali di Legnaro che si avrebbe mediante siffatti sistemi. Essendo il precursore del $^{99\text{m}}\text{Tc}$, tracciante radioattivo largamente utilizzato in medicina nucleare per uso diagnostico, la produzione di tale radionuclide riveste particolare interesse. È tuttavia ipotizzabile, anche alla luce di recenti attività di ricerca una produzione diretta del $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

L'ipotesi circa una futura mancanza di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ sul mercato internazionale è diventata, infatti, di stretta attualità per la recente interruzione, per motivi diversi, dei due impianti di produzione, in Nord America, Chalk River (Canada) ed in Europa Petten (Olanda). I due impianti, che coprono circa il 65% della produzione mondiale, sono entrambi dei reattori nucleari. La produzione massiva attuale di ^{99}Mo è, infatti, basata sulla separazione isotopica dei prodotti di fissione dell'uranio, cosiddetto HEU, altamente arricchito in fissile ^{235}U (>80%) sottoposto, pertanto, al rigido controllo internazionale contro la proliferazione delle armi nucleari.

I Parte: Possibili metodi di produzione del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ ai LNL

1.1. Richiami ed analisi delle reazioni nucleari per la produzione del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$

Riportiamo sinteticamente lo schema di decadimento che dal ^{99}Mo , passando per il $^{99\text{m}}\text{Tc}$, porta infine al ^{99}Ru (stabile).

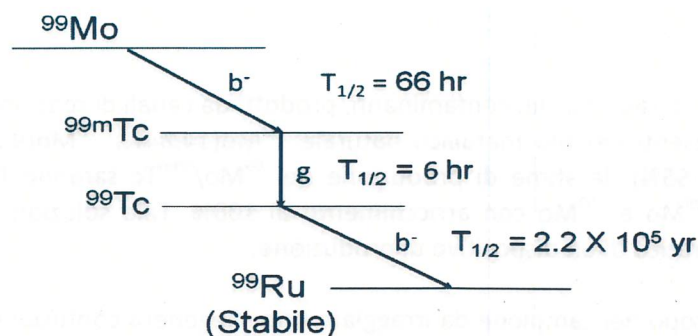
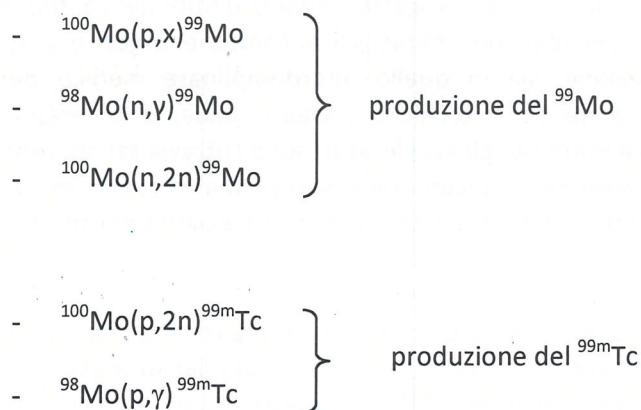


Fig. 1 Schema di decadimento del ^{99}Mo

La differenza sostanziale tra i due nuclidi d'interesse risiede nel fatto che il $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ha una vita media τ ($T_{1/2}/\ln 2$) relativamente breve (circa 8.7 h), mentre il ^{99}Mo ha una vita media circa dieci volte superiore (95.2 h), rendendo più semplice tutte le operazioni necessarie alla produzione del prodotto finito.

Ciò premesso, se si escludono a priori tutti i possibili modi di produzione del ^{99}Mo basati sulla fissione indotta nell'uranio o nel torio, gli unici altri metodi alternativi di produzione del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ che sarebbe potenzialmente possibile sfruttare ai LNL con gli acceleratori prima menzionati, sono basati sulle reazioni di seguito elencate:



Dei cinque possibili metodi di produzione, tre farebbero uso delle reazioni con fascio di protoni, mentre i rimanenti due sono basati rispettivamente sulla reazione di cattura radiativa e sulle reazioni di scattering anelastico, del tipo (n,xn) utilizzando una sorgente neutronica, da realizzarsi sempre con un acceleratore.

Peraltro due delle reazioni considerate (entrambe con protoni) permetterebbero una produzione diretta del $^{99\text{m}}\text{Tc}$. È noto tuttavia che tale produzione, nel caso fosse considerato utile o di qualche interesse, non potrebbe che essere limitato a un'utenza locale, dato il breve tempo di vita media. Infatti, nell'ipotesi di tempi di preparazione complessiva del prodotto finito, dalla fine dell'irraggiamento del bersaglio all'applicazione clinica finale, anche solo di 12 h si avrebbe, per i soli effetti del decadimento, una riduzione della quantità di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ prodotta di circa un fattore 4 ($N/N_0 = e^{-4/3}$).

Entrambi gli isotopi necessari alle reazioni citate sono stabili e presenti nel Mo metallico naturale nelle seguenti abbondanze isotopiche:

- ^{100}Mo 9.6%
- ^{98}Mo 24.1%

Per evitare la presenza di radionuclidi contaminanti, prodotti da canali di reazione che si aprono dagli altri nuclidi stabili presenti nel Mo metallico naturale: ^{92}Mo (14.84%), ^{94}Mo (9.25%), ^{95}Mo (15.92%), ^{96}Mo (16.68%), ^{97}Mo (9.55%), le stime di produzione del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ saranno fornite considerando bersagli costituiti da ^{98}Mo e ^{100}Mo con arricchimento al 100%. Tale soluzione sarà, infatti, quella considerata nel caso pratico di un dispositivo di produzione.

Essendoci un solo isotopo nel campione da irraggiare non s'ingenera confusione nella definizione di "Attività specifica" A_s del radionuclide d'interesse così com'è prodotto nel bersaglio, cosiddetto *carrier-free* cioè senza considerare eventuali composti trasportatori. Riportiamo a tal proposito

alcune definizioni presenti nelle normative della Farmacopee Britannica (BP) (1993, 1998, 2004), Europea (Ph. Eur.) (1995, 2005) e Statunitense (USP) (1993, 2002) [1]:

B.P. ('93,'98)

Attività specifica A_s di un preparato o di un materiale radioattivo: l'attività' del radionuclide considerato per unità di peso dell'elemento o del composto che lo contiene.

USP ('93,'02)

Attività specifica A_s : attività di un radionuclide per grammo del suo elemento.

Riportiamo anche una definizione proposta nel 2005 da Goeij e Bonardi [1], non in contraddizione con le precedenti, che riteniamo più esaustiva e che in questo studio adottiamo come riferimento:

Attività specifica A_s : l'attività' del radionuclide divisa per la massa di tutti gli isotopi, stabili e radioattivi, isotopici con l'elemento considerato.

Al fine di valutarne la capacità produttiva riportiamo, nei successivi paragrafi, un'analisi più dettagliata per le cinque reazioni considerate e le relative sezioni d'urto in funzione dell'energia della particella primaria.

1.2. Metodi di produzione del ^{99}Mo

1.2.1. Reazione $^{100}\text{Mo}(p,x)^{99}\text{Mo}$

In questo caso la produzione del ^{99}Mo avviene attraverso due canali, il principale e attraverso il decadimento del $^{99\text{m}}\text{Nb}$ quando si opera a energie sopra i 10 MeV. L'andamento della sezione d'urto cumulativa misurata nei vari esperimenti condotti è riportato in Figura 2.

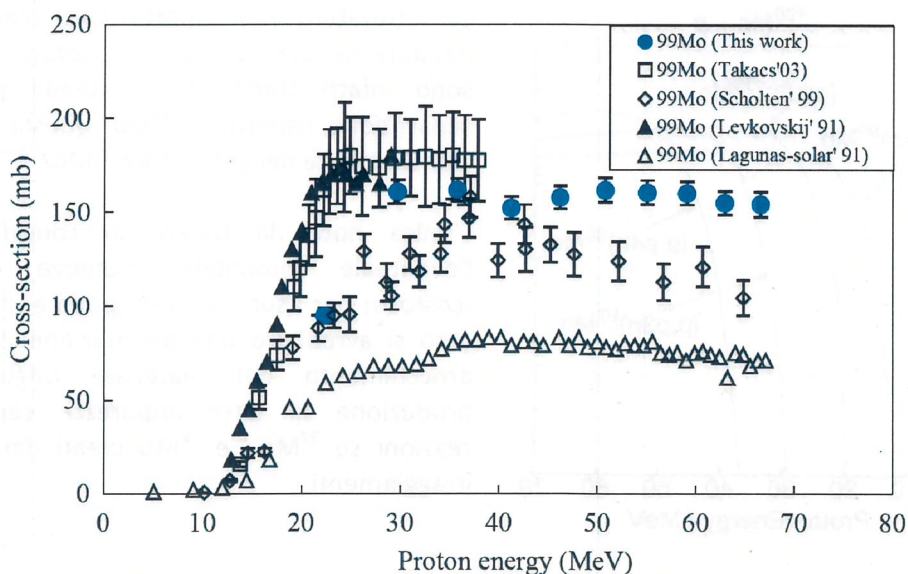
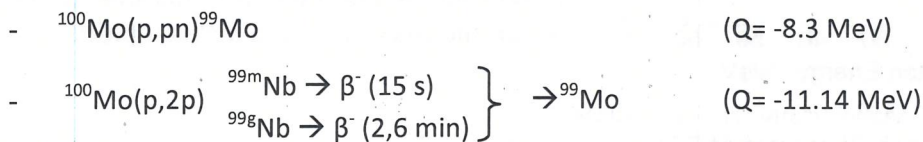


Fig. 2 Andamento della sezione d'urto per la reazione $^{100}\text{Mo}(p,x)^{99}\text{Mo}$ [3].

Come si nota le più recenti misure sperimentali, eseguite da Uddin et al. [2], sono consistenti con quelle di Scholten et al [3] fino ai 35-40 MeV. A valori di energia maggiori, si nota una differenza anche di 50 mbarn. Sotto i 20 MeV si hanno, invece, dati concordi anche con le misure effettuate da Takacs et al. [4]. I dati di Lagunas Solar [5] riportati nel plot essendo molto più bassi, si ritiene siano oramai poco attendibili.

Occorre rilevare che, già ad energie dell'ordine dei 20 MeV, si aprono diversi altri canali di reazione, oltre quello "utile", che portano alla produzione di diversi isotopi del Mo Tc, Nb, Zr, Y. Riportiamo, in alcuni plot nelle seguenti Figure 3-5, le sezioni d'urto di produzione che erano state previste circa 10 anni fa per gli isotopi del Mo, Tc e Nb, basati su alcuni modelli nucleari inclusi nel codice ALICE e presenti nell'articolo di Lambrecht et al. [6].

Sebbene alcuni dati siano sovrastimati rispetto a quelli sperimentali, vedi il valore di picco della produzione di ^{99}Tc intorno a 1000 mb, circa 5 volte superiore a quella effettivo (vedi Figura 10 più avanti), sappiamo che la produzione di tali nuclidi è energeticamente possibile.

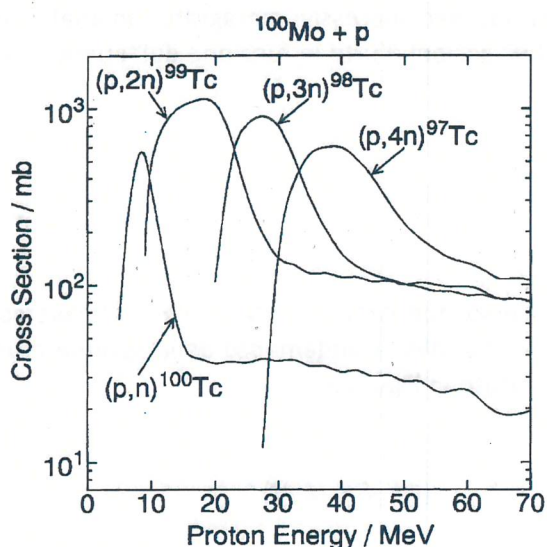


Fig. 3 Andamenti delle sezioni d'urto per la reazione $^{100}\text{Mo}(p,x)$ per la produzione di alcuni nuclidi del Tc [6].

Gli altri isotopi del Tc che si producono hanno i seguenti modi di decadimento:

- $^{100}\text{Mo}(p,4n)^{97}\text{Tc} \rightarrow \text{EC (90d)} \rightarrow ^{97}\text{Mo}$ (stabile)
- $^{100}\text{Mo}(p,3n)^{98}\text{Tc} \rightarrow \beta^- (4.2\text{E}+6 \text{ y}) \rightarrow ^{98}\text{Ru}$ (stabile)
- $^{100}\text{Mo}(p,n)^{100}\text{Tc} \rightarrow \beta^- (15.8 \text{ s}) \rightarrow ^{100}\text{Ru}$ (stabile)

Tuttavia, i radioisotopi a lunga vita media, il ^{97}Tc e il ^{98}Tc non sono ritenuti costituire un problema nell'uso medico del tracciante principale. Il Ru ed il Tc possono essere separati chimicamente dal Mo per un successivo riutilizzo della targhetta.

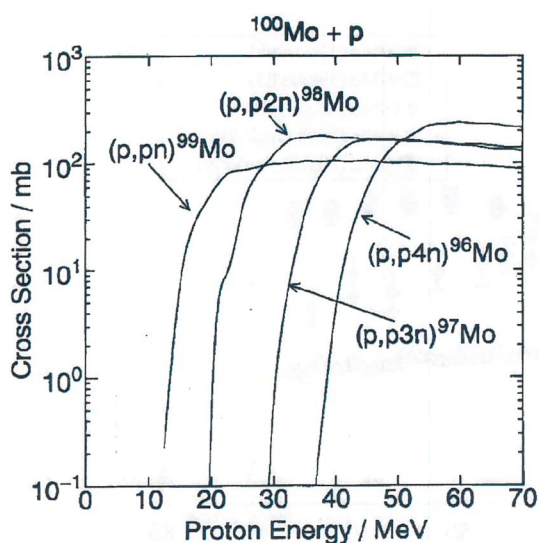
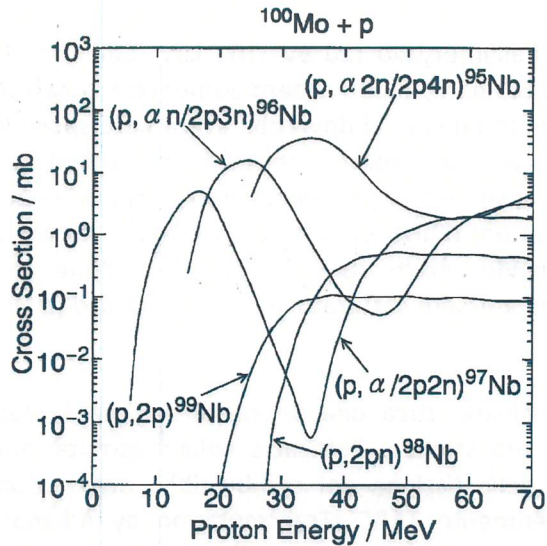


Fig. 4 Andamenti delle sezioni d'urto per la reazione $^{100}\text{Mo}(p,x)$ per la produzione di alcuni nuclidi del Mo [6].

La letteratura non riporta particolari problemi neppure nel caso del Mo: gli isotopi 96, 97 e 98 sono infatti stabili. Non essendo possibile la separazione rispetto al ^{99}Mo , questa avverrebbe chimicamente nel generatore $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$.

L'unica nota da tenere in considerazione è l'eventuale (probabile) riutilizzo del ^{100}Mo (costoso) per i successivi irraggiamenti. In questo caso si avrebbero una diminuzione del grado di arricchimento del materiale originale e la produzione di altre impurezze causate dalle reazioni su ^{97}Mo e ^{98}Mo creati dai precedenti irraggiamenti.



Anche la produzione degli isotopi del Nb non comporta particolari problemi. I nuclidi prodotti hanno i seguenti modi di decadimento:

- $^{100}\text{Mo}(p,\alpha 2n)^{95}\text{Nb} \rightarrow \beta^- (34.98\text{d}) \rightarrow ^{95}\text{Mo}$ (stabile)
- $^{100}\text{Mo}(p,\alpha n)^{96}\text{Nb} \rightarrow \beta^- (23.35\text{h}) \rightarrow ^{96}\text{Mo}$ (stabile)
- $^{100}\text{Mo}(p,\alpha)^{97}\text{Nb} \rightarrow \beta^- (72\text{ min}) \rightarrow ^{97}\text{Mo}$ (stabile)
- $^{100}\text{Mo}(p,2pn)^{98}\text{Nb} \rightarrow \beta^- (51\text{ min}) \rightarrow ^{98}\text{Mo}$ (stabile)
- $^{100}\text{Mo}(p,2p) \left. \begin{matrix} ^{99\text{m}}\text{Nb} \rightarrow \beta^- (15\text{ s}) \\ ^{99\text{g}}\text{Nb} \rightarrow \beta^- (2,6\text{ min}) \end{matrix} \right\} \rightarrow ^{99}\text{Mo}$

Fig. 5 Andamenti delle sezioni d'urto per la reazione $^{100}\text{Mo}(p,x)$ per la produzione di alcuni nuclidi del Nb [6]

Bisogna però ricordare che, nella pratica, l'uso di bersagli ad arricchimento completo in ^{100}Mo non sarà mai possibile. La presenza d'impurezze, e i radionuclidi da essi prodotti, andranno valutati attentamente.

Il rateo di produzione, misurato nelle prove sperimentali effettuate su bersagli spessi con un fascio di 40 MeV, è dell'ordine di circa 3-4 mCi/ μAh [3,4] per le fasi iniziali d'irraggiamento ($T_{\text{irr}} < \tau/2 \approx 48\text{ h}$). Il dato a saturazione non è riportato. Nel caso delle prove fatte con il fascio di 65 MeV [3], si avrebbero invece circa 7.5 mCi/ μAh , mentre il valore stimato praticamente a saturazione ($T_{\text{irr}} > 4\tau = 380\text{ h} \approx 16\text{ d}$) è di circa 750 mCi/ μA .

1.2.2. Reazione $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$

La produzione avviene per cattura radiativa, sfruttando sia il campo termico, sia la zona delle risonanze. Il valore della sezione d'urto (vedi Fig. 6) in campo termico è relativamente basso, circa 130 mb. Ciò implica la necessità di flussi di neutroni termici dell'ordine di almeno $(10^{14}-10^{15})\text{ cm}^{-2}\text{ s}^{-1}$ per avere produzioni rilevanti con questa tecnica. Prestazioni che solo un reattore di potenza, od un sistema acceleratore-convertitore che lavorasse nel campo delle energie della spallazione (rapporti $n/p \sim 5-10$) sarebbero in grado di fornire.

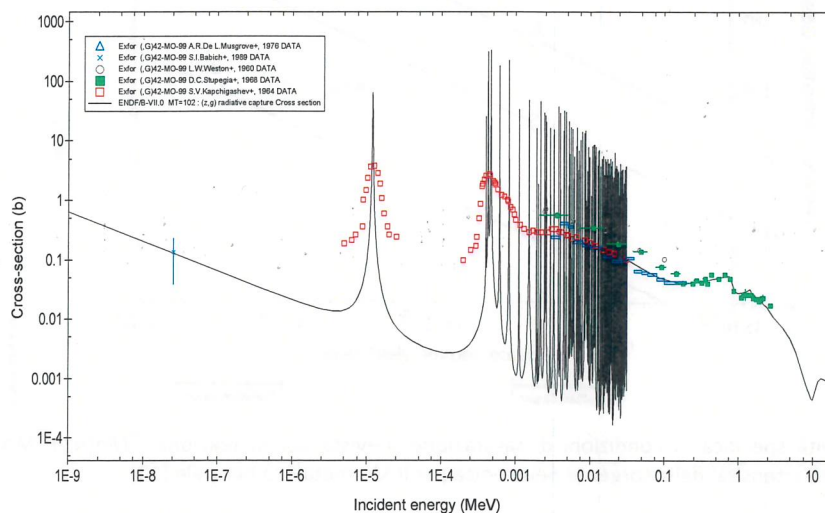


Fig. 6 Andamento della sezione d'urto teorica e le misure sperimentali effettuate per la reazione $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ [7].

Considerando invece anche la zona delle risonanze, nell'intervallo (10 eV- 100 keV) delle sezioni d'urto, il cui integrale è complessivamente pari a circa 6.5 barn, si potrebbero aumentare le catture per incrementare complessivamente i tassi di reazione. In tal caso si dovrebbe avere un dispositivo (sorgente neutronica-moderatore) che fornisca non più uno spettro termico, ma altresì uno epitermico. Un sistema moderante, concettualmente costituito in prevalenza da materiale ad alto peso atomico, ad es. il Pb, caratterizzato da basse sezioni d'urto di cattura ed elevate sezioni di scattering elastico, sarebbe la soluzione ideale. Perdendo, infatti, solo una piccola frazione della propria energia a ogni collisione, il neutrone riuscirebbe a essere catturato con maggiore probabilità nella zona delle risonanze.

Tale concetto, ben noto nel capo dell'ingegneria nucleare, circa una decina di anni fa è stato riproposto da Carlo Rubbia al CERN [8]. L'obiettivo era studiare l'efficacia nella trasmutazione, mediante attivazione, degli attinidi minori prodotti della fissione del combustibile degli attuali reattori termici. Il sistema è stato testato nell'esperimento TARC (Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing) [9], usando una sorgente neutronica da spallazione con il fascio di protoni da 3.5 GeV dell'acceleratore PS e circa 330 t di piombo, con purezza del 99.99%.

Secondo lo studio riportato nel documento (brevetto) [10] depositato da Rubbia, con una sorgente neutronica di qualche unità in 10^{14} s^{-1} l'attività specifica stimata a saturazione su Mo metallico naturale (vedi punto "2" sul grafico della Fig. 7) sarebbe dell'ordine 5-10 mCi/g (~21-42 mCi/g per arricchimento del 100%) . Una sorgente neutronica di tale intensità si potrebbe ottenere ai LNL con entrambi i tipi di acceleratore in questione. Infatti, le efficienze di conversione sia per la reazione $\text{Be}(p,n)$, misurata sperimentalmente negli ultimi anni ai LNL [11], sia per la $\text{Pb,W}(p,n)$ disponibili in letteratura [12,13], permettono di stabilire che si possono raggiungere, con entrambi i sistemi i seguenti valori:

- | | | | | | |
|---|------------|------------------------------|--------------|---|---------------------------------|
| - | TRASCO | (5 MeV, 30 mA) | target in Be | $S_n = 1.05 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ | $\bar{E}_n \sim 1 \text{ MeV}$ |
| - | CICLOTRONE | (40 MeV, 500 μA) | target in Be | $S_n = 1.40 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ | $\bar{E}_n \sim 15 \text{ MeV}$ |
| - | CICLOTRONE | (50 MeV, 500 μA) | target in W | $S_n = 2.30 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ | $\bar{E}_n \sim 10 \text{ MeV}$ |
| - | CICLOTRONE | (70 MeV, 500 μA) | target in W | $S_n = 5.60 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ | $\bar{E}_n \sim 15 \text{ MeV}$ |

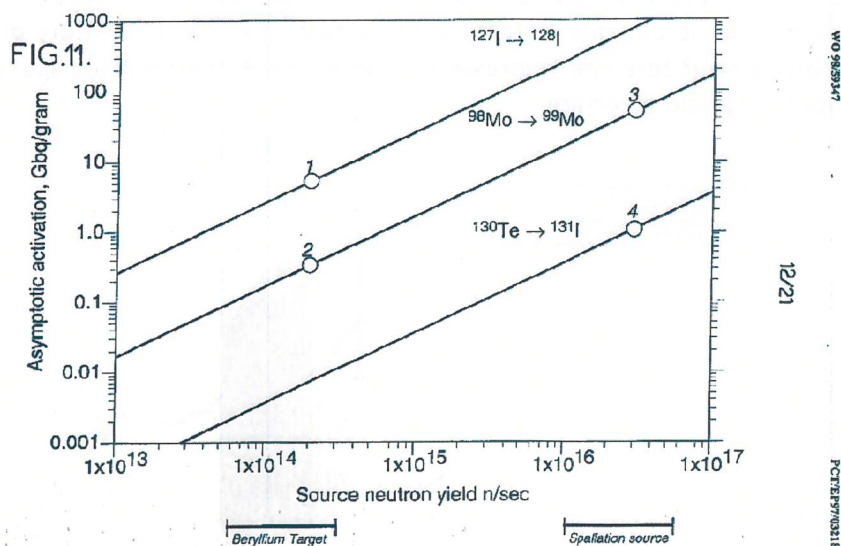


Fig. 7 Attività specifica in condizioni di saturazione prevista per la reazione $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ in funzione dell'intensità della sorgente neutronica per il Mo metallico naturale [10] .

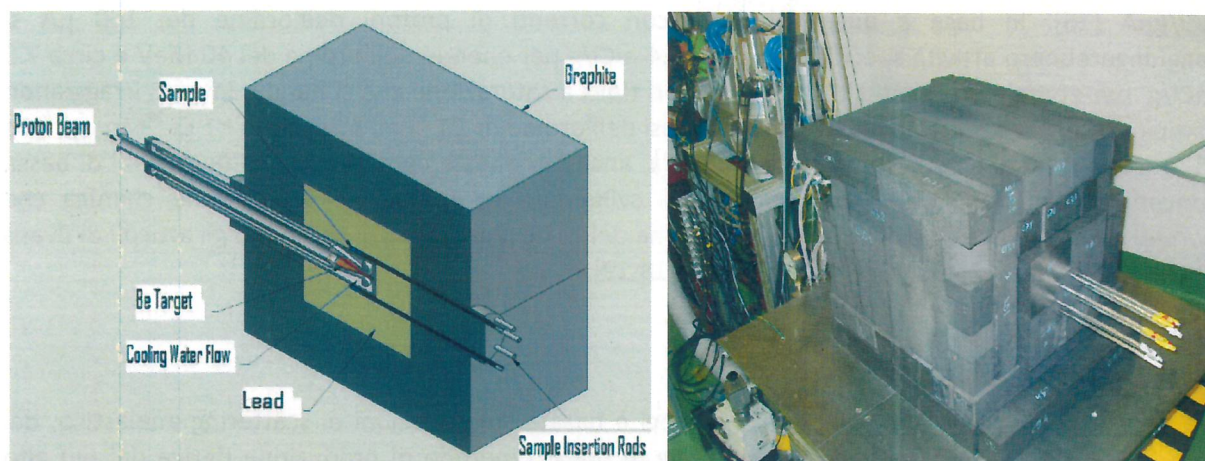


Fig. 8 Schema delle componenti principali dell'attivatore (sinistra) realizzato al JRC di ISPRA (destra) per test di produzione per attivazione di alcuni radioisotopi di interesse medico, tra cui il ^{99}Mo [15].

Una versione ridotta del dispositivo, che sfruttasse il cosiddetto "metodo ARC" ai fini di una produzione di radioisotopi per uso medico, è stato realizzato a Louvaine-la-Neuve nei primi anni 2000 usando un ciclotrone con energia max di circa 65 MeV (corrente di pochi μA) ed un target in Be. I risultati delle prove sperimentali, (vedi più avanti) eseguite su campioni di Mo metallico naturale, sono riportati nell'articolo di Froment et al. [14].

Recentemente presso il laboratorio JRC di Ispra, è stata realizzata una versione ancora più compatta, riportata nella successiva Figura 8, per esplorare la possibilità pratica di produzione di nanoparticelle da attivare per applicazioni in brachiterapia, principalmente Re ed Ho. Il sistema è costituito da un target in Be, inserito in una regione interna in Pb ($30 \times 30 \times 30$) cm^3 di volume sufficientemente grande da assicurare un prevalente, anche se non ottimale, effetto ARC. Il tutto circondato da un riflettore in Grafite-RG, spesso circa 18 cm. Le dimensioni d'ingombro totale sono di $65 \times 65 \times 65$ cm^3 .

In questo caso si è usato il ciclotrone Scanditronix MC40 ivi installato che fornisce un fascio di protoni fino ad un energia max. di 40 MeV ed una corrente di fascio max di 60 μA . Le prove d'irraggiamento si sono svolte invece con un fascio di 36 MeV ed una corrente max di 35 μA . I particolari sono riportati nell'articolo di Abbas et al. [15]. Gli studi sulle efficienze di produzione (vedi più avanti) si sono eseguiti sul Mo metallico naturale e scalati per il ^{98}Mo arricchito al 100%.

Il vantaggio principale di questa reazione, se l'irraggiamento avviene in puro campo termico, è la bassa contaminazione dovuta ad altri nuclidi. Non c'è, infatti, sufficiente energia per aprire altri canali di reazione che quello principale per cattura radiativa. Sfruttando invece il sistema ARC, quindi con spettri di energia media dell'ordine di 1-5 MeV, ma con code fino ai 50-60 MeV si aprono diversi canali di reazione con produzione di altri nuclidi tra cui $^{94,95,96}\text{Zr}$, $^{96,97,98}\text{Nb}$, $^{90,91}\text{Sr}$.

Molti di questi decadono in tempi relativamente brevi (alcune decine di minuti) in nuclidi stabili. L'unico a costituire un potenziale problema è lo ^{90}Sr , noto beta emettitore con $T_{1/2}$ di 28.8 anni. I processi di separazione chimica dovrebbero comunque ridurre notevolmente queste contaminazioni dal ^{99}Mo .

Per contro, lo svantaggio principale di questo metodo di produzione è la bassa concentrazione di ^{99}Mo prodotto nel bersaglio di ^{98}Mo . L'attività specifica per unità di corrente, stimata dagli autori dagli studi sul Mo metallico naturale, tenendo in debito conto le differenze nell'intensità delle sorgenti neutroniche nei due esperimenti per le energie e correnti di fascio diversi, sarebbe di circa 13 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}$ [14] e di 18 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}$ [15], in condizioni di piena saturazione ($7 T_{1/2} = \sim 4.8 \tau$, pari a 462 h = 19.25 d). I valori scalati per il ^{98}Mo arricchito al 100% sarebbero di 53.9 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}$ [14] e di 74.7

$\mu\text{Ci}/\text{g}\mu\text{A}$ [15]. In base a questi risultati, con correnti di protoni dell'ordine dei $100 \mu\text{A}$ si raggiungerebbero attività specifiche di circa 5.4 mCi/g per energie dell'ordine dei 40 MeV e circa 7.5 mCi/g per energie prossime ai 70 MeV . I valori tipici a saturazione che si hanno, invece, irraggiando campioni di ^{98}Mo arricchito in reattori con flussi dell'ordine di $10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ sono di $\sim 1 \text{ Ci } ^{99}\text{Mo} / \text{g } ^{98}\text{Mo}$ [5] in condizioni di equilibrio secolare. Tuttavia, anche in queste condizioni poco favorevoli di bassa concentrazione, negli ultimi anni sono stati sviluppati dei metodi di separazione chimica che permettono un'elevata selettività nell'estrazione del $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Per i dettagli si vedano gli articoli di Evans et al. [16], Knapp [17] e Chattopadhyay et.al. [18,19].

1.2.3. Reazione $^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$

Un'altra possibilità che impiega neutroni veloci è basata sulle reazioni di scattering anelastico, del tipo $(n,2n)$, sul ^{100}Mo . Il vantaggio sostanziale di questo metodo di produzione deriva dal più alto valore della sezione d'urto che, nell'intervallo di energie $12\text{-}17 \text{ MeV}$, si mantiene approssimativamente costante intorno a $\sim 1.3 \text{ b}$. Tale valore è circa dieci volte superiore a quello della reazione di cattura radiativa sul ^{98}Mo in campo termico. Ad eccezione della $^{100}\text{Mo}(n,\text{elastic})^{100}\text{Mo}$, con $\sigma_{\text{el}} = \sim 2.3 \text{ b}$, la reazione in oggetto è quella con il più elevato valore della sezione d'urto nella regione energetica indicata.

Se consideriamo un intervallo di energie ancora più ristretto, $12\text{-}14 \text{ MeV}$, il contributo dovuto agli altri canali di reazione (vedi Figura 9) è molto minore, essendo le sezioni d'urto dell'ordine di $1\text{-}2 \text{ mb}$. L'attività risultante dagli altri canali di reazione si riduce notevolmente, facilitando il processo di separazione e purificazione chimica del prodotto finale.

Questo metodo di produzione è stato recentemente proposto accoppiato alle sorgenti neutroniche da fusione DT. Si avrebbe il sostanziale vantaggio di far ricorso ad acceleratori di concezione molto semplice (colonna elettrostatica da circa 350 KeV), di dimensioni compatte, provata tecnologia ed affidabilità. Le reazioni di fusione nucleare $^3\text{H}(d,n)^4\text{He}$ hanno inoltre il vantaggio di produrre inoltre uno spettro praticamente monoenergetico (14 MeV) e quasi isotropo.

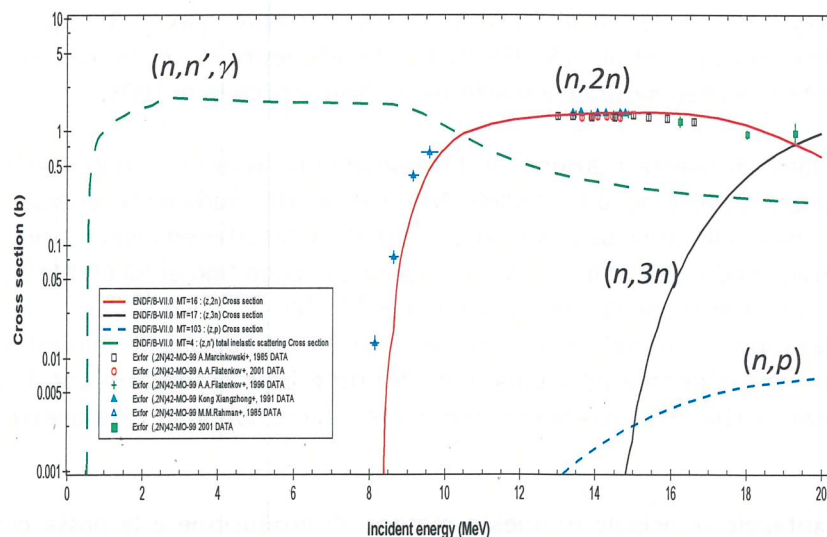


Fig. 9 Andamenti della sezione d'urto per la reazione $^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$ e di alcuni altri canali [7]. Per il canale di reazione $(n,2n)$ sono riportate anche le misure sperimentali effettuate.

Le stime riportate nell'articolo di Nagai et. al. [20], indicano che, con flussi neutronici nella zona di attivazione dell'ordine di $\sim 10^{13} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ (paragonabili a quelle di un reattore) e per un irraggiamento della durata 198 hrs (8.25 giorni = $2.95 T_{1/2} = 2.04 \tau$), si avrebbero attività specifiche del ^{99}Mo prodotto di circa 2.1 Ci/g ^{100}Mo . Tale valore è paragonabile a quello ottenibile dalla reazione $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ nei reattori in condizioni di quasi saturazione. Considerando quantità pari ad 1 Mole (100 g) di materiale da posizionarsi intorno alla sorgente, sarebbero ipotizzabili produzioni dell'ordine di 210 Ci.

Tuttavia solo la facility a bersaglio rotante RTNS-II [21,22], ora non più operativa, realizzata ai laboratori Lawrence Livermore agli inizi degli anni '80 come upgrade della precedente RTNS, sarebbe stata in grado di fornire, nella zona d'irraggiamento (pochi cm^3), flussi così elevati. Gli unici progetti in corso, di sorgenti neutroniche di così alta intensità con spettro adatto per i test di danneggiamento dei materiali per i prossimi reattori a fusione (ITER, DEMO), sono la NFS di SPIRAL-II ed IFMIF. I valori di flusso attesi sono rispettivamente dell'ordine di 10^{14} - $10^{15} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Le sorgenti DT disponibili sono, invece, del tipo a "tubo sigillato" per evitare le perdite di Trizio. Anche considerando quella di maggiori prestazioni, in corso di sviluppo ai laboratori Lawrence Livermore di Berkeley [23], potenzialmente in grado (ma non ancora collaudata) di produrne 10^{13} s^{-1} , i flussi disponibili, nelle migliori condizioni, sarebbero dell'ordine di $10^{11} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. È ragionevole quindi considerare un'attività specifica attesa per il ^{99}Mo , con i medesimi tempi d'irraggiamento, circa 100 volte inferiore ($\sim 20 \text{ mCi/g } ^{100}\text{Mo}$). A parità di massa di materiale (1 Mole) si otterrebbe una produzione di circa 2 Ci a settimana.

Con i migliori tubi sigillati già disponibili sul mercato che arrivano soltanto a 10^{11} s^{-1} , i valori stimati di produzione sarebbero invece inferiori, a parità di condizioni, di un ulteriore fattore cento, $\sim 0.20 \text{ mCi/g } ^{100}\text{Mo}$. Quindi circa 20 mCi a settimana considerando 1 Mole di materiale. L'uso di questo tipo di sorgenti neutroniche non è, al momento, vantaggioso.

1.3. Metodi di produzione del $^{99\text{m}}\text{Tc}$

1.3.1. Reazione $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$

Contrariamente alle reazioni prima considerate, in questo caso è possibile ottenere una produzione di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ in modo diretto e senza passare per il suo precursore ^{99}Mo . Sebbene il radionuclide decada in tempi abbastanza rapidi ($T_{1/2} = 6 \text{ h}$) è tuttavia ipotizzabile una sua produzione limitata ad un'utenza limitrofa alla regione di produzione. Questo metodo è stato recentemente considerato quale possibile sostituto al $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ da reattore, a seguito della recente crisi di produzione (vedi introduzione).

Come si può notare dall'andamento della sezione d'urto riportata nella Figura 10, ripetutamente misurata nel corso degli ultimi 15 anni, nell'ampio intervallo di energie da 5-70 MeV è presente un unico picco, centrato intorno ai 15 MeV. Il valore di picco, misurato nei primi anni '90 da Levonski [24] e da Lagunas Solar [5], ripetuto da quest'ultimo nel '96 (vedi plot), era stato stimato intorno ai 300 mb. Le misure ripetute circa dieci anni dopo da Sholten [3] e Takacs [4], hanno ridotto questo valore a circa 200 mb. Per energie superiori ai 30 MeV il valore crolla intorno ai 15-20 mb. Questo metodo sembra, quindi, offrire potenziali opportunità di produrre quantità interessanti di $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Al fine di valutarne la possibilità pratica di produzione, sono state eseguite anche misure sperimentali per rilevare le impurezze prodotte dagli altri canali di reazione che si aprono durante l'irraggiamento. Sono disponibili i risultati di due test, condotti a distanza di dieci anni l'uno dall'altro. Il primo effettuato da Scholten et al. [3], mentre il secondo da un gruppo canadese (Guerin et al. [25]) recentemente pubblicato.

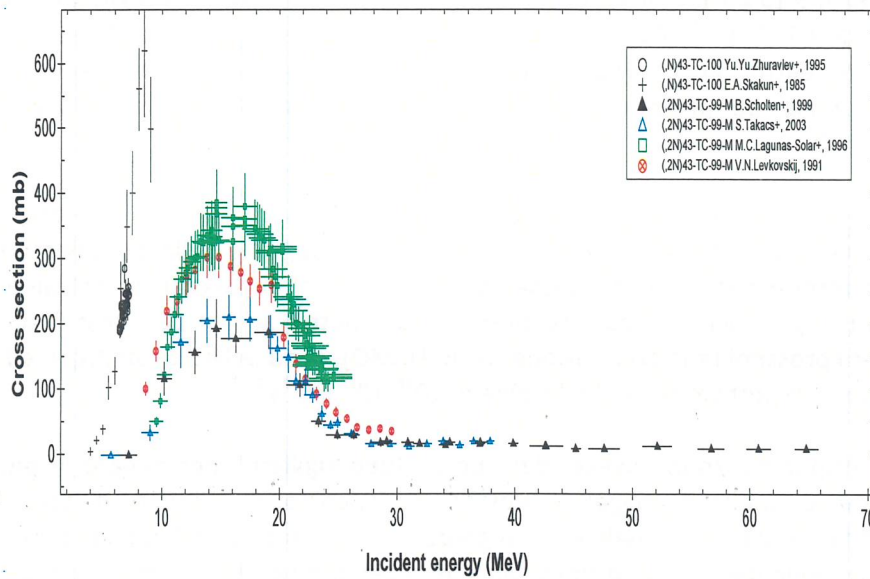


Fig. 10 Composizione di misure di sezione d’urto sperimentali per la reazione $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$. Nel grafico è anche riportata la sezione d’urto sperimentale per la reazione $^{100}\text{Mo}(p,n)^{100}\text{Tc}$ [3].

Il primo test è stato eseguito sia all’energia di 16 MeV (centro del picco) sia a 45 MeV, su bersagli sottili di ^{100}Mo arricchito al 97.39% (2.58% ^{98}Mo , altri isotopi del Mo presenti in tracce). Il secondo test è stato eseguito all’energia di 17 MeV anch’esso su bersaglio sottile, ma con arricchimento al 99.5%. Dalle analisi, effettuate con spettrometria gamma, sono state rilevate le composizioni riportate in tabella: entrambe misurate alla fine dell’irraggiamento (EOB).

bersaglio ^{100}Mo	Scholten et al. [3] (1999)	Scholten et al. [3] (1999)	Guerin et al. [25] (2010)
	E=16 MeV $T_{\text{irr}}=1\text{hr}$; composizione EOB normalizzato al $^{99\text{m}}\text{Tc}$ %	E=45 MeV $T_{\text{irr}}=1\text{hr}$; composizione EOB normalizzato al $^{99\text{m}}\text{Tc}$ %	E=17 MeV $T_{\text{irr}}=1.5\text{-}3\text{h}$ composizione EOB normalizzato al $^{99\text{m}}\text{Tc}$ %
$^{99\text{m}}\text{Tc}$	100	100	100
$^{97\text{m}}\text{Tc}$	<0.026		
^{96}Tc	0.005	53	0.0014
^{95}Tc	0.016	24.1	0.0010
$^{95\text{m}}\text{Tc}$		5.9	< 0.0003
^{94}Tc	0.016	7.2	
$^{94\text{m}}\text{Tc}$	0.11	0.11	
^{93}Tc	---	---	
^{99}Mo	1.34	96.4	tracce
^{97}Nb			tracce

Di tutte le impurezze prodotte, quelle a più lungo tempo di dimezzamento che rimarrebbero nel prodotto finale sarebbero il ^{95}Tc ($T_{1/2} = 20$ h), $^{95\text{m}}\text{Tc}$ ($T_{1/2} = 60$ d), $^{97\text{m}}\text{Tc}$ ($T_{1/2} = 91.0$ d), ^{96}Tc ($T_{1/2} = 4.28$ d). Tuttavia, alla fine del processo di preparazione, i contributi dovuti al ^{95}Tc e ^{96}Tc possono ritenersi trascurabili. Peraltro i valori riportati dal gruppo canadese indicano che le impurezze presenti sarebbero inferiori al limite imposto dalla farmacopea statunitense (USP) che prescrive un limite massimo dello 0.01% nel caso dei generatori di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ da ^{99}Mo . Inoltre è stata anche fatta un'analisi d'impurezze residue dopo 4 giorni per far decadere completamente il $^{99\text{m}}\text{Tc}$. I risultati di spettrometria gamma non hanno rivelato tracce di alcun altro tipo di radioisotopo.

È necessario tuttavia precisare che tale tecnica non è in grado di rilevare la produzione di nuclidi beta emettitori puri quali lo ^{90}Sr , la cui soglia di produzione è a circa 13 MeV [26]. Nel caso di irraggiamenti più lunghi, prossimi alle condizioni di saturazione, ($T_{\text{irr}} \geq 3\tau \approx 26$ h), va da sé che il contributo dovuto alle impurezze a più breve vita peseranno in misura ancora minore, mentre avranno peso maggiore quelli a più lunga vita media. Ciò implica l'esigenza d'irraggiamenti brevi, non più lunghi di un tempo di dimezzamento ($T_{\text{irr}} \leq 6$ h).

Nel caso di irraggiamenti ad energia maggiore, 45 MeV (oltre il picco di risonanza), si nota dalla tabella la presenza di impurezze in quantità sostanzialmente maggiore. Si originano non solo dalle tracce degli altri isotopi di molibdeno presenti nel campione, ma anche direttamente dal ^{100}Mo , come ad esempio la $^{100}\text{Mo}(p,5n)^{96}\text{Tc}$, il cui canale di reazione si apre già a circa 35 MeV. Infine, nonostante sia presente in minima percentuale, la produzione del precursore ^{99}Mo è quantitativamente uguale a quella del $^{99\text{m}}\text{Tc}$. In ogni caso sia il $^{100,99}\text{Mo}$, sia il ^{97}Nb si possono separare chimicamente.

La produzione diretta del $^{99\text{m}}\text{Tc}$ è dunque interessante per energie < 25 MeV, in modo da ridurre al minimo le impurezze presenti. Il rateo di produzione risultante dalle prove sperimentali, all'energia di 22 MeV, risulta essere di circa 11.2 mCi/ μAh [3] per le fasi iniziali d'irraggiamento ($T_{\text{irr}} < \tau/2 = \sim 4$ h) e di 102.8 mCi/ μA in condizioni di saturazione. Sostanzialmente in linea con i dati riportati da Takacs [4], ~ 17 mCi/ μAh , per lo stesso valore di energia. Per energie del fascio di 40 MeV, per un target spesso, si è invece stimato un rateo di 20.6 mCi/ μAh [4], sebbene sia preferibile non irraggiare a queste energie. Riportiamo, infine, nella seguente Figura 11 il confronto tra i ratei di produzione integrale per il $^{99\text{m}}\text{Tc}$ e per il ^{99}Mo stimati per le due reazioni da Sholten et al. [3]. Gli andamenti riportati nell'articolo di Takacs et al.[4] sono sostanzialmente analoghi ma con le stime di produzione del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ leggermente migliori.

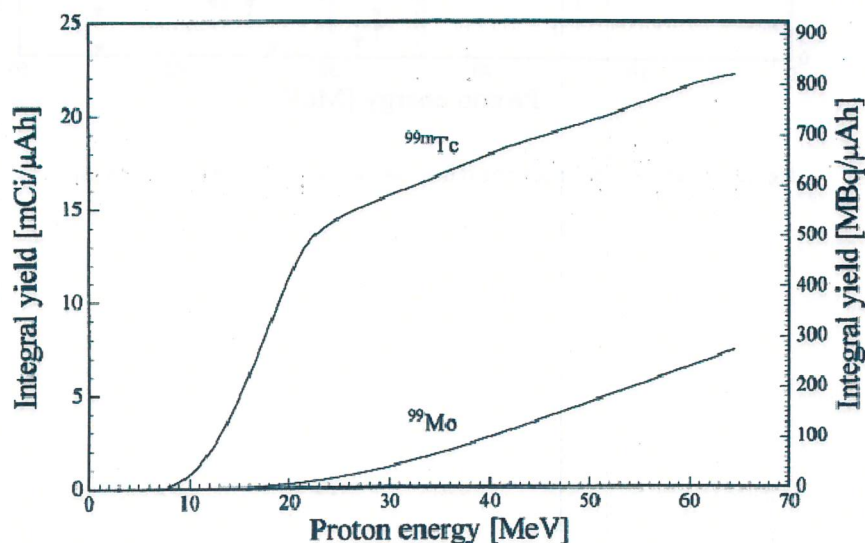


Fig. 11 Ratei di produzione, per le reazioni $^{100}\text{Mo}(p,pn)^{99}\text{Mo}$ e $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$, bersaglio spesso, stimati dalle sezioni d'urto integrali [3].

In aggiunta, v'è da rilevare che le scintigrafie effettuate durante i test su animali usando $^{99\text{m}}\text{Tc}$ prodotto direttamente, non hanno rivelato in sostanza differenze con quelle ottenute usando il tecnezio prodotto dai tradizionali generatori di ^{99}Mo . Le caratteristiche, sia farmacocinetiche, sia di purezza del radionuclide si dimostrano quindi coincidenti. Per i particolari si rimanda all'articolo di Guerin et al. [25].

Ricordiamo, in ultimo, che il procedimento chimico di separazione descritto da Chattopadhyay et.al. [18,19] può essere completato in tempi molto rapidi, appena 1 h, come riportato nell'articolo di Guerin et al. [25], rispetto a quello per la preparazione dei generatori di $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$. Nel caso della produzione diretta di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ si deve quindi ipotizzare la presenza di un impianto di trattamento dei campioni irraggiati, dalla separazione, purificazione e realizzazione del prodotto finito, nello stesso sito di produzione dell'elemento attivo.

1.3.2. Reazione $^{98}\text{Mo}(p,\gamma)^{99\text{m}}\text{Tc}$

Anche questo canale di reazione (lo riportiamo per completezza d'informazione), fornisce un contributo alla produzione diretta del $^{99\text{m}}\text{Tc}$ per energie dei protoni superiori a circa 10 MeV. Tuttavia, secondo le ultime misure di sezione d'urto riportate da Scholten et al. [3], tale contributo si può considerare del tutto trascurabile. Il valore della sezione d'urto per energie del fascio di protoni da 40 a 70 MeV è, infatti, dell'ordine di 0.05 mb.

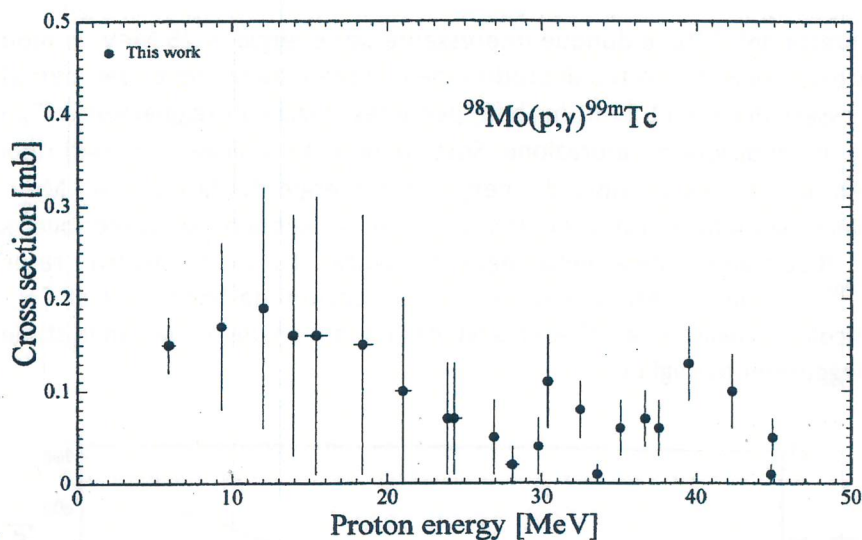


Fig. 12 Andamento della sezione d'urto per la reazione $^{98}\text{Mo}(p,\gamma)^{99\text{m}}\text{Tc}$ [3].

Il Parte: Studio preliminare di possibili sistemi per la produzione di ^{99}Mo o di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ai LNL

2.1. Premessa

Considerata la disponibilità degli acceleratori menzionati nell'introduzione del presente documento, riportiamo, nella seguente sezione, lo studio di alcuni dispositivi con i quali si potrebbe produrre ai LNL sia il suo precursore, sia direttamente il tecnezio. Per ciascuna delle scelte descritte si riportano i risultati dell'analisi preliminare per stimare le efficienze produzione attese.

2.2. Produzione di ^{99}Mo mediante neutroni generati col RFQ TRASCO-IFMIF

2.2.1. Caratteristiche principali del dispositivo attivatore

Il primo sistema investigato si basa sulla possibilità produrre ^{99}Mo con una sorgente neutronica *ad hoc*, con spettro piccato in campo epitermico (1 eV-100 keV) per massimizzare le catture radiative sul ^{98}Mo nella zona delle risonanze. L'idea è di sfruttare il fascio di protoni di bassa energia (5 MeV) e alta intensità di corrente (30 mA) del RFQ del progetto TRASCO [27,28]. Tale scelta deriva da un progetto già in corso da alcuni anni ai LNL mirato a realizzare un'intensa sorgente neutronica di bassa energia (termica) per il trattamento sperimentale dei melanomi cutanei mediante NCT [29] basato sul medesimo acceleratore. Ciò permette di sfruttare lo stesso sistema convertitore (target) di potenza in Be progettato e il cui prototipo è già stato realizzato e testato. Per i particolari si veda l'articolo di Esposito et al. [30].

Il vantaggio di tale soluzione risiede nell'energia media sostanzialmente bassa, appena 1.1 MeV, (energia massima di 3.2 MeV) dello spettro neutronico emesso dal target. In queste condizioni basta un piccolo volume di moderatore per "spostare" lo spettro nel campo delle energie epitermiche, riducendo al minimo le catture durante il processo di rallentamento. In base all'esperienza acquisita ai LNL nel campo della progettazione dei traslatori di spettro per la BNCT, il sistema concepito per l'attivatore è schematicamente riportato nella seguente Figura 13.

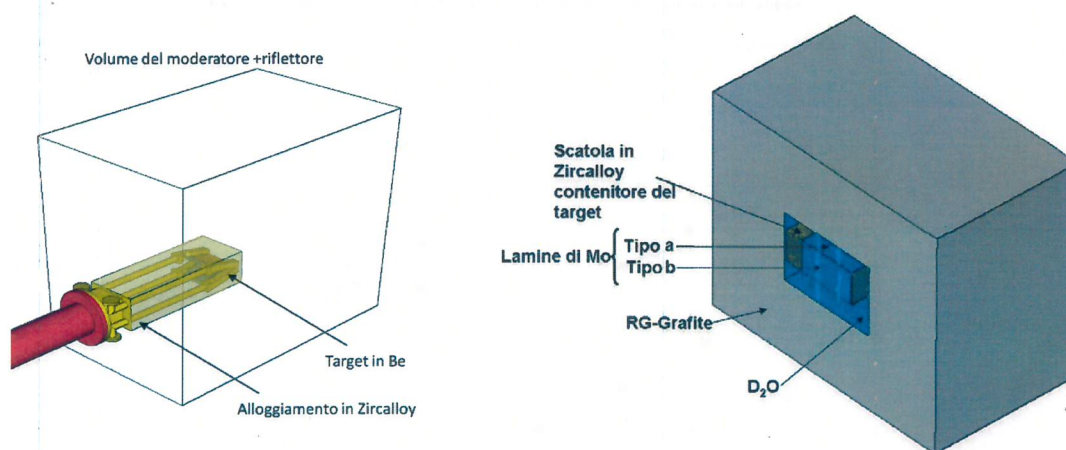


Fig. 13 Schema dell'attivatore neutronico che usa lo stesso target in Be sviluppato ai LNL per il progetto TRASCO BNCT [29] (sinistra). Sezione longitudinale e disposizione degli elementi principali dell'attivatore (destra). Geometria 3D MCNPX.

Il convertitore, inserito all'interno di un alloggiamento a sezione rettangolare a tenuta da vuoto in Zircalloy, è a sua volta collocato all'interno di un volume contenente D₂O. In virtù del buon *potere di rallentamento*, $\xi\Sigma_s$ unito all'ottimo rapporto di moderazione $\xi\Sigma_s/\Sigma_a$ di questo materiale i neutroni perdono la frazione di energia richiesta con una minima cattura. Il contenitore in D₂O ha anch'esso

una sezione trasversale rettangolare e lo spessore di moderatore intorno al target è il medesimo su tutti i lati. Per valutare le dimensioni necessarie per la regione preposta alla moderazione neutronica, si è fatto uno studio parametrico preliminare, per il solo moderatore, considerando intorno al target, oltre alla D_2O , anche il piombo come altro possibile materiale. Come riportato nella successiva Figura

14 il parametro di riferimento considerato per la variazione del volume del moderatore è il suo spessore "d" intorno al target.

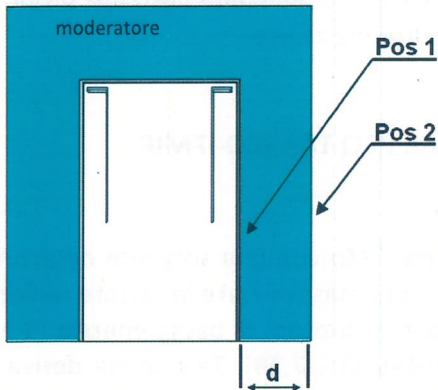


Fig. 14 Sezione longitudinale della zona target-moderatore. Possibili posizioni delle regioni di irraggiamento per i campioni di ^{98}Mo : intorno al target, (Pos 1) e sopra lo strato del moderatore (Pos 2).

Nei calcoli Monte Carlo (MCNPX v2.6a) si sono considerate, per entrambi i materiali, diverse configurazioni di moderazione con spessori crescenti. Per il Pb da un minimo di 5 cm a un massimo di 30 cm, con incremento di 5 cm, mentre nel caso della D_2O lo spessore varia da 2 cm 10 cm con incremento di 2 cm. Nei calcoli di simulazione MCNPX si è inoltre fatto uso dei dati sperimentali degli spettri di emissione neutronica per la reazione $\text{Be}(p,xn)$ a 5 MeV recentemente misurati ai LNL [11]. Le possibili zone per il posizionamento dei campioni di ^{98}Mo da irraggiare sono due, nell'ipotesi di impiegare lamine a piccolo spessore (<1mm): la prima, adagiata sopra le parete in Zircalloy, intorno al target (posizione 1), la seconda sulla superficie

laterale esterna del volume del moderatore (posizione 2). In entrambe le zone si sono calcolati in una regione volumetrica vuota di $(30 \times 15 \times 0.1)$ cm^3 i valori medi delle fluenze, integrate nei tre intervalli di energia: termico ($E_n < 1\text{eV}$), epitermico ($1\text{eV} < E_n < 100\text{keV}$), di interesse per zona delle risonanze, e veloce ($E_n > 100\text{keV}$). Nella Figura 15 riportiamo, per entrambi i moderatori e per le due posizioni d'irraggiamento, l'andamento della fluenza neutronica normalizzata della sola componente epitermica, in funzione dello spessore del moderatore.

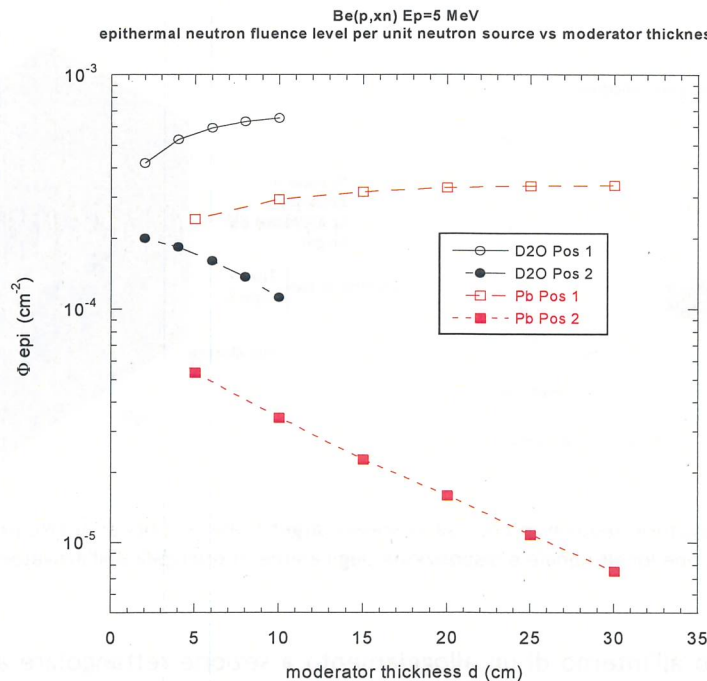


Fig. 15 Fluenza neutronica nell'intervallo energetico $1\text{eV} < E_n < 100\text{keV}$, in funzione dello spessore dei moderatori in D_2O e Pb intorno al target, nelle posizioni di misura indicate nella Figura 14.

Come si nota i valori più alti di fluensa neutronica epitermica si ottengono nella posizione 1, con entrambi i moderatori. Tuttavia, con appena 10 cm di spessore di D_2O , si raggiunge il massimo valore, che risulta circa doppio rispetto a quello ottenibile con il Pb con uno spessore di 30 cm.

Tuttavia per avere un'indicazione dell'efficienza del sistema moderante, non solo è necessario uno "spostamento" in energia dello spettro sorgente nel campo epitermico, ma anche una buona "selettività spettrale", in modo da avere un aumento della popolazione neutronica (quindi un aumento del flusso) in campo epitermico, senza successive perdite in energia. Nel successivo grafico in Figura 16 riportiamo per gli stessi moderatori, l'andamento della selettività spettrale epitermica calcolata al variare dello spessore, nelle due posizioni di irraggiamento.

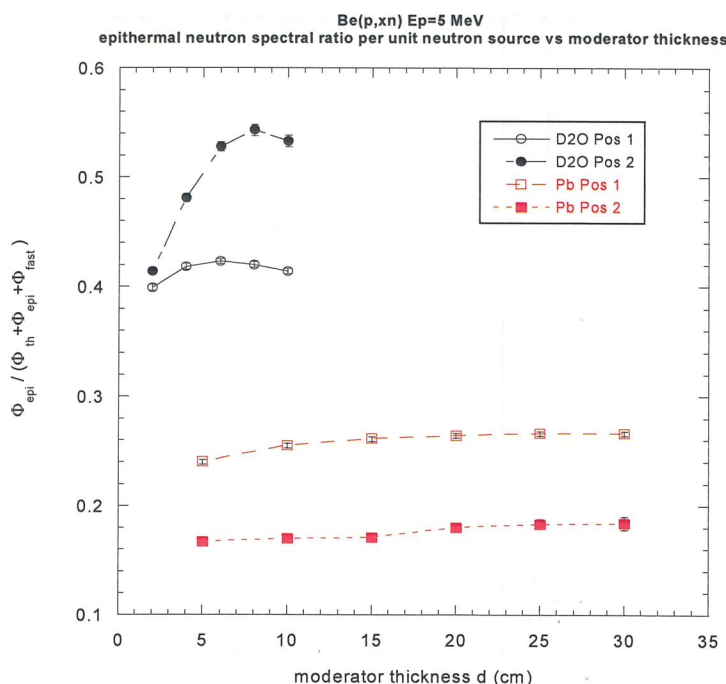


Fig. 16 Rapporto tra la fluensa epitermica rispetto quella totale (rapporto spettrale) in funzione dello spessore dei moderatori in D_2O e Pb intorno al target, nelle posizioni di misura indicate nella Figura 14.

Il miglior risultato si ottiene ancora usando D_2O per uno spessore di appena 8 cm, ponendosi sulla superficie esterna del moderatore (posizione 2). Tuttavia il guadagno nella selettività che si avrebbe in questo caso è di un 30% migliore rispetto alla posizione 1; per contro la fluensa neutronica (vedi Figura 15) diminuisce in valore assoluto di un fattore circa 4.6.

Essendo preferibile avere la maggiore fluensa neutronica nell'intervallo energetico $1\text{eV} < E_n < 100\text{keV}$ per la produzione di ^{99}Mo da ^{98}Mo , sebbene con selettività spettrale non ottimale, la migliore configurazione per l'attivatore dunque è basata su uno stadio moderante in D_2O (circa 10 cm di spessore) con le lamine di molibdeno collocate sopra l'alloggiamento del target in Zircalloy (Posizione 1).

Individuate le caratteristiche ottimali per il moderatore il passo successivo è quello di valutare le caratteristiche idonee per il riflettore. In questo caso, dato il basso valore dell'energia media dello spettro neutronico, uno dei materiali idonei per le sue proprietà di albedo, basso costo e relativamente facile reperibilità ai LNL, è la Grafite-RG [28]. La configurazione finale proposta è quella riportata nella Figura 13 con un volume di moderatore richiesto è di circa 70 dm^3 , circondato da un riflettore in grafite. Le lamine di ^{98}Mo (supposte arricchite al 100%) sono adagiate sulle 4 superfici laterali dell'alloggiamento in Zircalloy che, essendo di sezione rettangolare, determina due posizioni

relative di irraggiamento rispetto al target. Quelle denominate di "tipo a" (collocate sulle superfici superiore ed inferiore) hanno dimensione di $(30 \times 26.4 \times 0.1) \text{ cm}^3$, mentre quelle di "tipo b" (in posizioni laterali) hanno dimensione di $(30 \times 15 \times 0.1) \text{ cm}^3$.

Per determinare il valore ottimale dello spessore del riflettore, per entrambi i tipi di lamine si è calcolato il tasso di produzione medio (pesato sul volume) di ^{99}Mo , che corrisponde a quello raggiunto alle condizioni di saturazione. I risultati sono mostrati nella successiva Figura 17, normalizzati per unità di volume e per neutrone sorgente, al variare dello spessore di grafite che circonda il moderatore. Per ragioni di simmetria, il grafico riporta l'andamento per una sola lamina di entrambi i tipi "a" e "b". Gli errori statistici di calcolo sono minori dello 0.5 %.

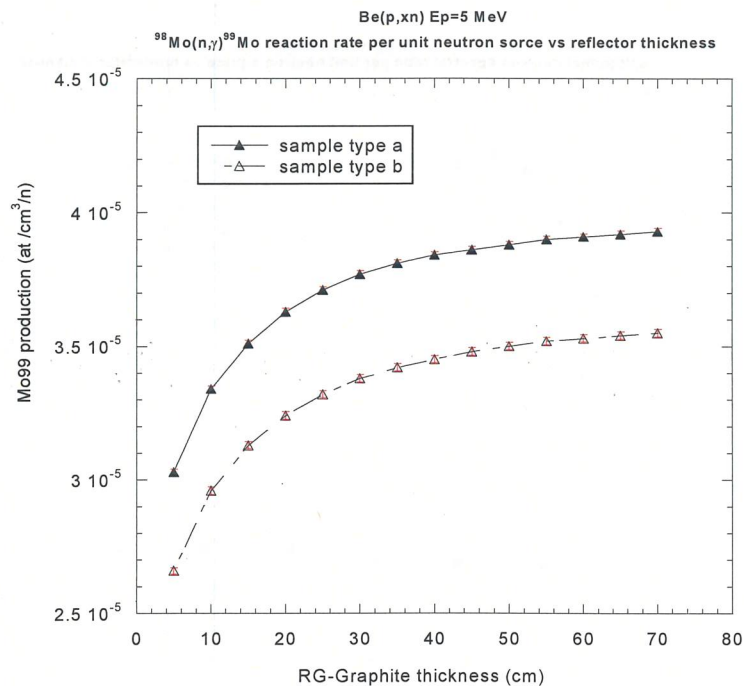


Fig. 17 Produzione di ^{99}Mo attesa per il dispositivo attivatore basato sull'acceleratore TRASCO ed il convertitore in Be a partire dal ^{98}Mo (arricchito al 100 %) in funzione dello spessore del riflettore in RG-grafite.

Nei due casi, come'era logico attendersi, esiste un'asimmetria nella produzione determinato da spettri leggermente diversi. Infatti, i neutroni che attraversano le lamine di "tipo a", poste sopra e sotto le due parti che compongono il target, hanno un'elevata probabilità di subire un ulteriore rallentamento in energia da parte del Be del target stesso, migliorando il processo di cattura. Le lamine di "tipo b", invece, "vedono" i neutroni generati dal target con uno spettro leggermente più duro, con probabilità di cattura complessivamente minore. I dati mostrano che il tasso di reazione aumenta di circa l'80% considerando uno spessore del riflettore di 70 cm, raggiungendo una condizione asintotica di produzione per il ^{99}Mo . Considerando che per gli ultimi 30 cm di spessore di riflettore il guadagno è di circa il 2 %, il valore minimo necessario di grafite è dunque di 40 cm. Le dimensioni d'ingombro totali stimate sono (L,P,H) $(134 \times 126 \times 117) \text{ cm}^3$.

Nella successiva Figura 18 sono riportati gli spettri in fluensa, normalizzati per neutrone sorgente, nella zona corrispondente alla posizione d'irraggiamento delle lamine di "tipo a", nei due casi in cui si abbia sia il solo target in Be (senza moderatore e riflettore in grafite di 40 cm di spessore), sia il sistema completo. La configurazione spettrale risultante è dunque quella ottimale con un andamento della fluensa praticamente piatta nell'intervallo energetico 1eV-100 keV, il cui integrale è di $5.5 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-2}$. Sapendo che il sistema TRASCO + target in Be può generare, alle condizioni operative (vedi pag.

8) una sorgente neutronica d'intensità $1.05 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$, nella posizione d'irraggiamento indicata si avrebbe pertanto un flusso epitermico $\Phi_{\text{epi}} \sim 6.0 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

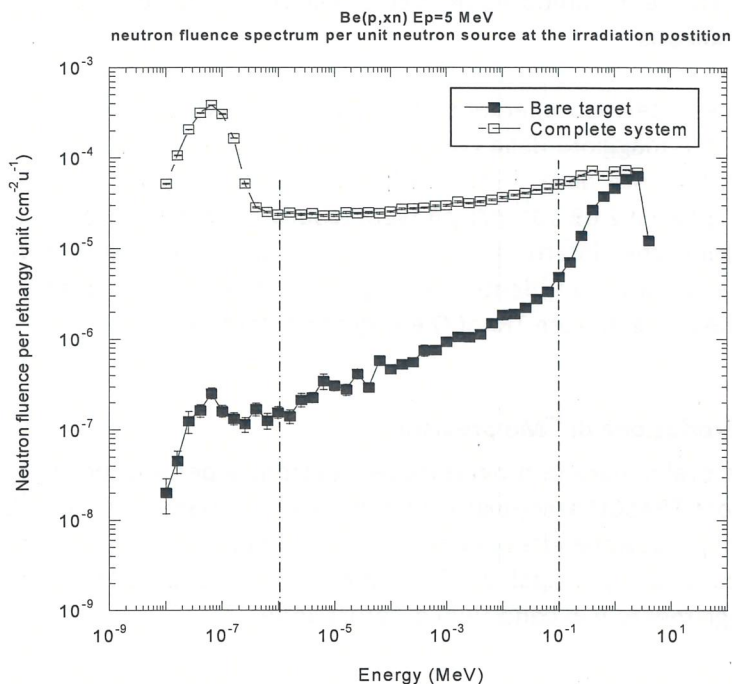


Fig. 18 Spettri di fluensa neutronica normalizzata, calcolati alla posizione d'irraggiamento, per i due casi del solo target in Be e del sistema di attivazione al completo.

Al fine di verificare la bontà del sistema attivatore proposto basato sull'acceleratore TRASCO, si è anche eseguito un confronto con del sistema attivatore realizzato presso il centro JRC di Ispra [15] prima menzionato, basato su un ciclotrone da 40 MeV (vedi pag. 9) le cui caratteristiche spettrali sono mostrate nella successiva Figura 19.

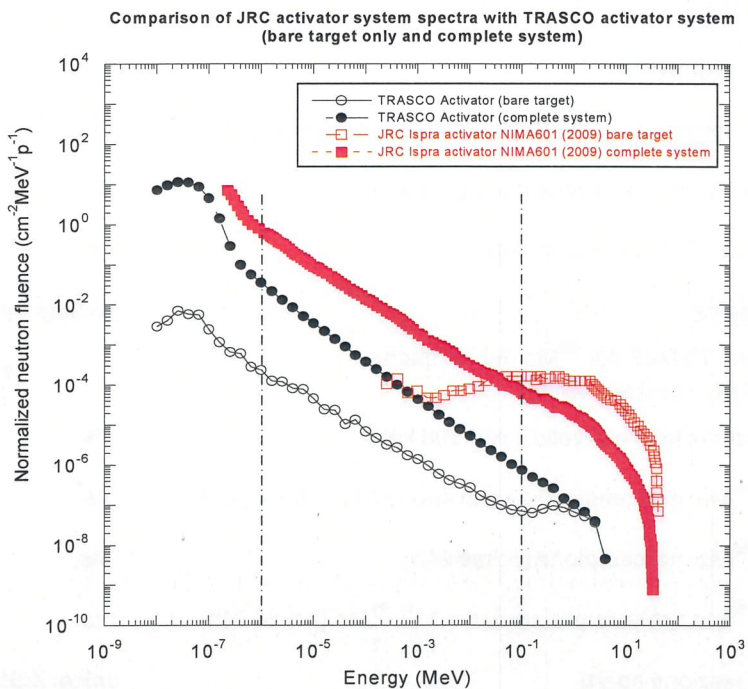


Fig. 19 Confronto degli spettri in fluensa, normalizzati per unità di energia e per protone incidente sul target, tra il sistema attivatore del JRC [15] e quello basato sull'acceleratore TRASCO.

L'analisi degli spettri normalizzati per il sistema completo mostra, in entrambi i casi, un andamento analogo. Ciò indica che l'attivatore basato su TRASCO produce, nella zona d'irraggiamento, la medesima qualità spettrale in campo epitermico (migliore alle basse energie) rispetto all'attivatore del JRC basato sul ciclotrone.

Integrando i grafici nell'intervallo energetico fra 1eV - 100 keV, la fluensa neutronica normalizzata per l'attivatore del JRC è maggiore della configurazione proposta per TRASCO di circa un fattore 70. Ciò dipende prevalentemente dalla migliore efficienza di conversione n/p per il target in berillio all'energia $E_p=40\text{MeV}$, pari a $2.09 \cdot 10^{11}$ n/s· μA (vedi tabella 1 ref. [15]) rispetto ai $3.5 \cdot 10^9$ n/s· μA [11], che si ha per $E_p=5\text{MeV}$ che, infatti, è minore circa di un fattore 60. Il deficit nella produzione neutronica per unità di carica incidente sul target è, comunque, ampiamente recuperato dalla maggiore corrente che l'acceleratore TRASCO è in grado di fornire.

2.2.2. Stima della produzione di ^{99}Mo prevista

Al termine della fase preliminare di progettazione neutronica per il dispositivo attivatore proposto, basato sull'acceleratore TRASCO accoppiato al target in Be, possiamo, con buon grado di accuratezza, stabilire l'efficienza di produzione attesa per il ^{99}Mo nei campioni di ^{98}Mo irraggiato. Riportiamo nella successiva tabella i parametri principali di riferimento e i valori di attività specifica finali calcolati per le prime 24 h di irraggiamento e in condizioni di saturazione.

Sistema attivatore basato su acceleratore TRASCO + target in Be (progetto TRASCO-BNCT)			
Energia fascio protoni in uscita RFQ	E_p	5	MeV
Corrente di fascio	I_p	30	mA
Potenza sul target	P	150	kW
Convertitore neutronico		Be	
Intensità di sorgente prevista	$S_{n \text{ tot}}$	$1.05 \cdot 10^{14}$	s^{-1}
Flusso neutronico epitermico (1eV-100 keV) nella zona d'irraggiamento	Φ_{epi}	$5.8 \cdot 10^{10}$	$\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$
Flusso neutronico TOTALE nella zona d'irraggiamento	Φ_{tot}	$3.05 \cdot 10^{11}$	$\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$
Campione irraggiato: ^{98}Mo (arricchimento)	%	100	
Metodo di produzione	Mo98(n, γ)Mo99		
Tasso di produzione TOTALE del ^{99}Mo nel campione (riflettore grafite- RG: spessore 40 cm)		$4.03 \cdot 10^9$	$\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$
Aliquota di produzione nell'intervallo (1eV-100 keV)	%	88.5	
Attività specifica ^{99}Mo nel campione a saturazione ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)	A_s^*	10.60	mCi/g
Attività specifica ^{99}Mo nel campione (prime 24h)	A_s	2.36	mCi/g
Massa campione ^{98}Mo richiesta per produrre 1 Ci ^{99}Mo (prime 24h)	m	423	g
Ulteriori canali di reazione aperti	unico: Zr95 \rightarrow Mo95 stabile		

Dai dati ottenuti mediante le simulazioni MCNPX possiamo ora stimare anche il valore della sezione d'urto microscopica *efficace* σ_{eff} nella zona delle risonanze che bisogna usare nei calcoli semplificati per stimare, correttamente, il tasso di produzione nell'intervallo epitermico. Infatti, il codice MCNPX utilizzando le librerie delle sezioni d'urto puntuali per il ^{98}Mo tiene conto dell'andamento risonante delle catture in quell'intervallo. Il valore calcolato del tasso di produzione del ^{99}Mo nel campione (nuclidi creati per unità di tempo e di volume) nell'intervallo 1eV-100 keV (vedi tabella) è:

$$Y^{99\text{Mo}} = \int_{1\text{eV}}^{100\text{keV}} n_{98\text{Mo}} \sigma(E) \Phi(E) dE = 4.03 \cdot 10^9 \cdot 0.885 = 3.57 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$$

con $n_{98\text{Mo}} = 6.45 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ densità atomica del ^{98}Mo ($\sim \text{natMo}$).

Essendo il valor medio (pesato sul flusso) della sezione d'urto microscopica nell'intervallo epitermico definita dalla:

$$\sigma_{\text{epi eff}} = \frac{\int_{1\text{eV}}^{100\text{keV}} \sigma(E) \cdot \Phi(E) dE}{\int_{1\text{eV}}^{100\text{keV}} \Phi(E) \cdot dE}$$

possiamo sempre formalmente scrivere la seguente relazione (invarianza del tasso di reazione):

$$Y^{99\text{Mo}} = \int_{1\text{eV}}^{100\text{keV}} n_{98\text{Mo}} \sigma(E) \Phi(E) dE = n_{98\text{Mo}} \sigma_{\text{epi eff}} \int_{1\text{eV}}^{100\text{keV}} \Phi(E) dE$$

con

$$\Phi_{\text{epi}} = \int_{1\text{eV}}^{100\text{keV}} \Phi(E) dE$$

Il valore medio della sezione d'urto, "pesato" sul flusso, nell'intervallo epitermico è dunque pari a:

$$\sigma_{\text{epi eff}} = \frac{\int_{1\text{eV}}^{100\text{keV}} n_{98\text{Mo}} \sigma(E) \Phi(E) dE}{n_{98\text{Mo}} \Phi_{\text{epi}}} = \frac{3.57 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}}{6.45 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3} \cdot 5.8 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}}$$

$$\sigma_{\text{epi eff}} = 0.095 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^2 \approx 0.95 \text{ b}$$

Tale valore è dunque molto minore dei 6.5 barn (vedi §1.2.1) cui solitamente si fa riferimento per indicare l'efficacia delle catture con il "metodo ARC".

Analogamente Il valore $\sigma_{\text{epi eff}}$ pesato invece su tutto l'intervallo energetico è di appena $\sim 0.20 \text{ b}$.

2.3. Produzione di ^{99}Mo mediante neutroni generati col ciclotrone SPES

2.3.1. Caratteristiche principali del dispositivo attivatore

Analogamente a quanto realizzato al laboratorio JRC di Ispra [15] (vedi pag. 9) un'altra possibilità per produrre ^{99}Mo ai LNL sarebbe di costruire un dispositivo attivatore da acceleratore basato, tuttavia, sul più potente ciclotrone da 35-70 MeV di energia e 500 μA di corrente massima del futuro progetto SPES [31]. Tale soluzione avrebbe il vantaggio di sfruttare la migliore efficienza di conversione n/p a energie più elevate, rispetto a quella fornita dall'acceleratore RFQ TRASCO, per la generazione di una sorgente neutronica impiegando, al contempo, una corrente di fascio minore. Il sistema studiato, di concezione analoga sia all'attivatore del JRC, sia a quello realizzato presso il laboratorio di Louvain-la-Neuve [14], è schematicamente riportato nella seguente Figura 20.

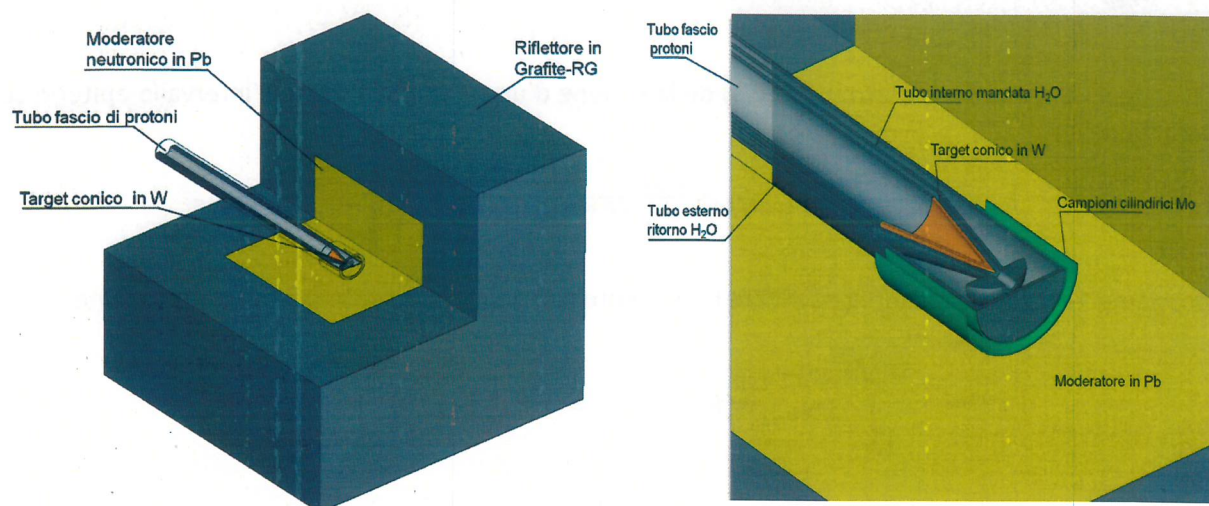


Fig. 20 Schema dell'attivatore neutronico proposto, che sfrutta il fascio del ciclotrone SPES, con la disposizione degli elementi principali (sinistra). Particolare della zona target con l'alloggiamento dei campioni (lamine cilindriche) di Mo da irraggiare (destra). Geometria 3D MCNPX.

Al fine di avere dei parametri rappresentativi per la produzione del ^{99}Mo , si è scelto di eseguire lo studio neutronico del dispositivo a un valore intermedio dell'ampio intervallo di energie che il ciclotrone è in grado di fornire. Inoltre, a differenza dei due sistemi menzionati, si è considerato nello studio un convertitore neutronico non in Be, ma in W per due ragioni fondamentali. La prima dovuta alla migliore efficienza di conversione n/p fornita dai materiali a più alto Z, circa il 20-50% superiore nell'intervallo 40-70 MeV, la seconda per un minor valor medio dell'energia dello spettro dei neutroni emessi, peraltro, in modo approssimativamente isotropo.

Essendo già disponibili dati sperimentali dettagliati di emissione neutronica per la reazione $\text{W}(p, xn)$ a 50 MeV [13], riportati in Figura 21, si è deciso di adottare questo livello di energia come riferimento per l'intero intervallo energetico. Ciò ha permesso, inoltre, nei calcoli MCNPX, di saltare il processo iniziale d'interazione del fascio di protoni sul target, simulando direttamente la distribuzione della sorgente neutronica. Come noto, i modelli di evaporazione nucleare inclusi negli attuali codici di calcolo, per energie ancora lontane dalla regione della spallazione, forniscono differenze anche di un fattore due nella stima dell'efficienza di produzione neutronica rispetto ai dati sperimentali di riferimento.

Il convertitore neutronico immaginato, similmente a quello sviluppato al JRC, ha forma conica ed è inserito all'interno di una regione moderante in Pb. Avendo un basso potere di rallentamento i neutroni, perdendo energia gradualmente nel Pb per il cosiddetto "effetto ARC" prima menzionato

(vedi pag. 8-9) riescono ad "attraversare" la zona delle risonanze del Mo con una maggiore probabilità di cattura.

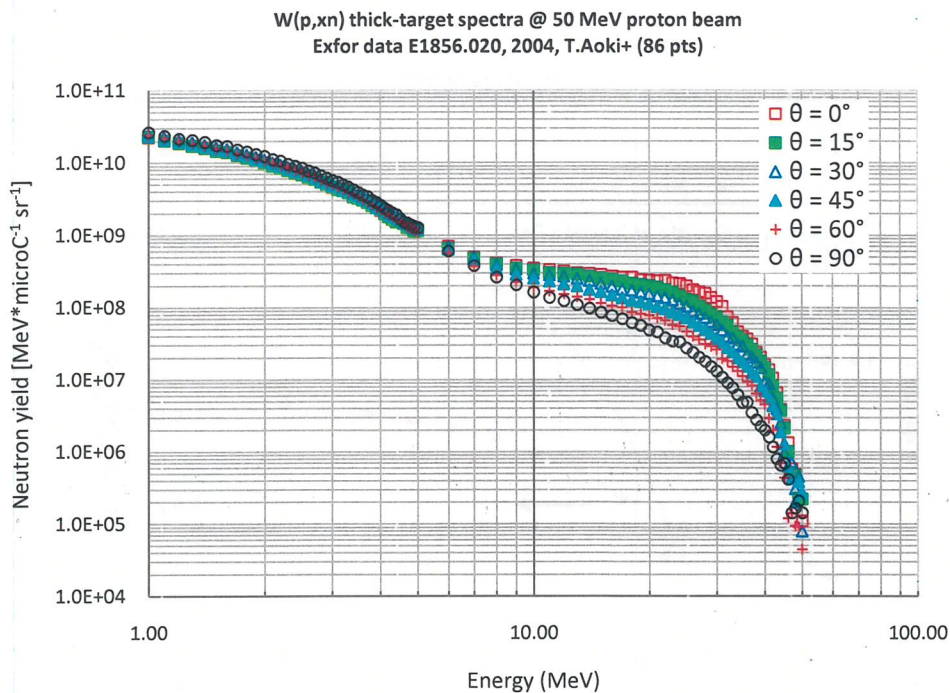


Fig. 21 Misure sperimentali degli spettri neutronici per la reazione $W(p,xn)$ per $E_p=50$ MeV. Per i particolari si veda l'articolo di Aoki et al.[13].

La scelta di un moderatore leggero in D_2O , come per l'attivatore basato sull'acceleratore TRASCO, in questo caso non sarebbe la soluzione ottimale. L'incremento letargico medio nell'acqua pesante ($\overline{\xi_{\text{D}_2\text{O}}} = 0.508$) in questo caso è circa 50 volte maggiore rispetto a quello nel Pb ($\overline{\xi_{\text{Pb}}} = 0.0095$). Ciò implica che il neutrone, dopo ogni urto, perde circa il 40% dell'energia che aveva prima della collisione, rispetto al 1% soltanto nel caso del moderatore in Pb. Dato il più alto valore dell'energia media dello spettro (circa 10 MeV) i neutroni sperimenterebbero quindi dei salti di energia tali da farli uscire dalla zona delle risonanze del Mo già dopo un numero limitato di collisioni.

Analogamente al caso precedente, si è fatto uno studio parametrico preliminare per valutare le dimensioni necessarie del moderatore in Pb nelle condizioni indicate. Dall'esperienza dello studio effettuato sull'attivatore per TRASCO, sappiamo che la miglior posizione dove collocare i campioni di molibdeno da irraggiare è all'esterno della superficie cilindrica che contiene il target ed il relativo circuito di refrigerazione in acqua leggera (vedi Figura 20). In questa posizione si è immaginato di collocare una (o più) lamine cilindriche di Mo.

In una regione volumetrica (guscio cilindrico) vuota, con raggio interno $r=5.5$ cm, lunghezza $h=11$ cm e spessore di $s=0.1$ cm si sono calcolati i valori medi delle fluenze, integrate nei tre intervalli di energia: termico ($E_n < 1\text{eV}$), epitermico ($1\text{eV} < E_n < 100\text{keV}$), di interesse per la zona delle risonanze, e veloce ($E_n > 100\text{keV}$). Nella Figura 22 riportiamo sia l'andamento della fluenza neutronica normalizzata, sia il rapporto spettrale, per la sola componente epitermica in funzione di metà lunghezza del lato del volume cubico del moderatore che, approssimativamente, è rappresentativo dello spessore nella direzione radiale.

I risultati indicano che il rapporto spettrale tende a raggiungere il valore asintotico di circa 0.26 per una dimensione di circa 1.5 m di lato del volume cubico del moderatore in Pb (in linea con le dimensioni dell'attivatore riportato nell'articolo di Froment et. al.[14], che comporterebbe tuttavia una massa richiesta di materiale di circa 38 t. Poiché gli ultimi 45 cm di spessore di Pb determinano

un incremento della selettività spettrale solo di circa un 8%, possiamo limitare le dimensioni del moderatore a 60 cm di lato riducendo notevolmente la massa richiesta a circa 2.5 t.

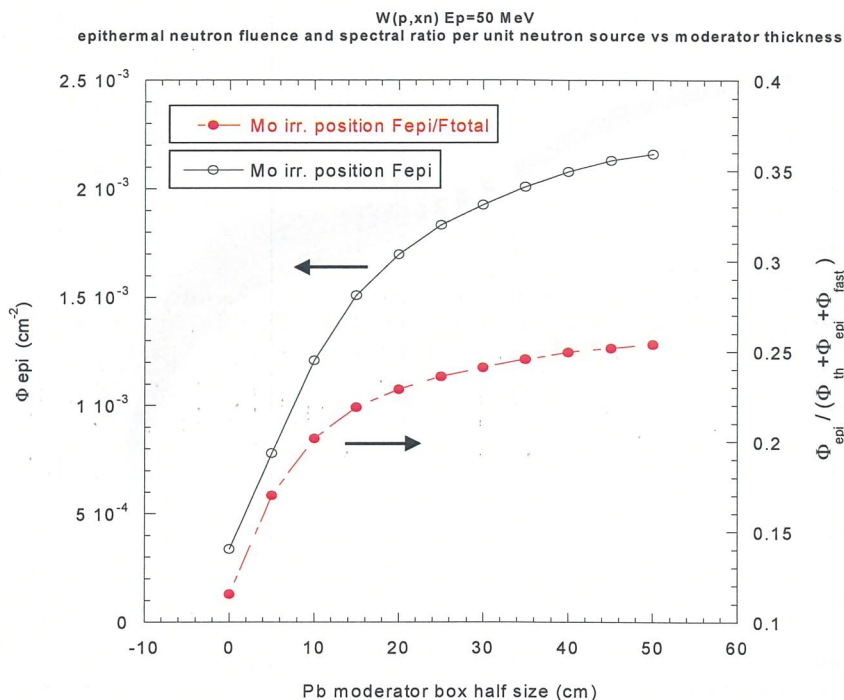


Fig. 22 Andamento della fluenza neutronica normalizzata (nero) e rapporto spettrale (rosso) nella regione d'irraggiamento, nell'intervallo energetico $1 \text{ eV} < E_n < 100 \text{ keV}$. La variabile indipendente in ascissa rappresenta metà lunghezza del lato del volume cubico del moderatore in Pb intorno al target. Gli errori statistici di calcolo sono minori dello 0.1%.

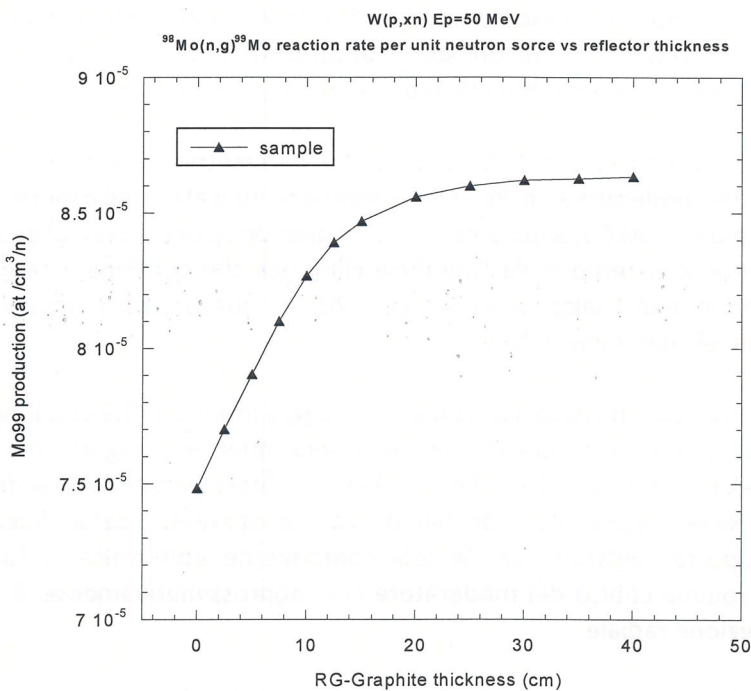


Fig. 23 Produzione di ^{99}Mo attesa per il dispositivo attivatore proposto basato sul ciclotrone SPES ed un convertitore in W a partire dal ^{98}Mo (arricchito al 100%) in funzione dello spessore del riflettore in RG-grafite. Gli errori statistici di calcolo, non visibili in figura, sono minori dello 0.1%.

Stabilite le dimensioni di compromesso ottimale per il moderatore, anche in questo caso si è considerato un riflettore in Grafite-RG, come per l'attivatore del JRC di Ispra. Analogamente al sistema studiato per TRASCO, per determinare il valore ottimale dello spessore del riflettore si è calcolato, per il campione cilindrico di ^{98}Mo posto nella regione volumetrica vuota prima descritta, il tasso di produzione medio (pesato sul volume) del ^{99}Mo , corrispondente alle condizioni di saturazione. I risultati sono mostrati nella successiva Figura 23, normalizzati per unità di volume e per neutrone sorgente, al variare dello spessore di grafite che circonda il moderatore in Pb. L'aggiunta del riflettore al sistema, anche considerando uno spessore asintotico di 40 cm, in questo caso contribuisce per appena il 15%, all'incremento del tasso di produzione del ^{99}Mo . Considerando che per gli ultimi 20 cm di spessore del riflettore il guadagno è solo di circa l'1%, il valore minimo necessario di grafite è dunque di 20 cm. Le dimensioni d'ingombro totali stimate sono (L,P,H) $(100 \times 100 \times 100) \text{ cm}^3$.

Nella successiva Figura 24 sono riportati gli spettri in fluensa, normalizzati per neutrone sorgente, nella zona corrispondente alla posizione d'irraggiamento della lamina, nei due casi in cui si abbia sia il solo target in W (senza moderatore e riflettore in grafite di 20 cm di spessore), sia il sistema completo. La configurazione spettrale risultante è, anche in questo caso, ottimale con un andamento della fluensa praticamente piatta nell'intervallo energetico 1eV-100 keV, il cui integrale è di $2.19 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-2}$. Sapendo che il ciclotrone SPES con un convertitore in W può generare, alle condizioni operative (vedi pag. 8) una sorgente neutronica d'intensità $2.3 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$, nella posizione d'irraggiamento indicata si avrebbe pertanto un flusso epitermico $\Phi_{\text{epi}} \sim 5.0 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

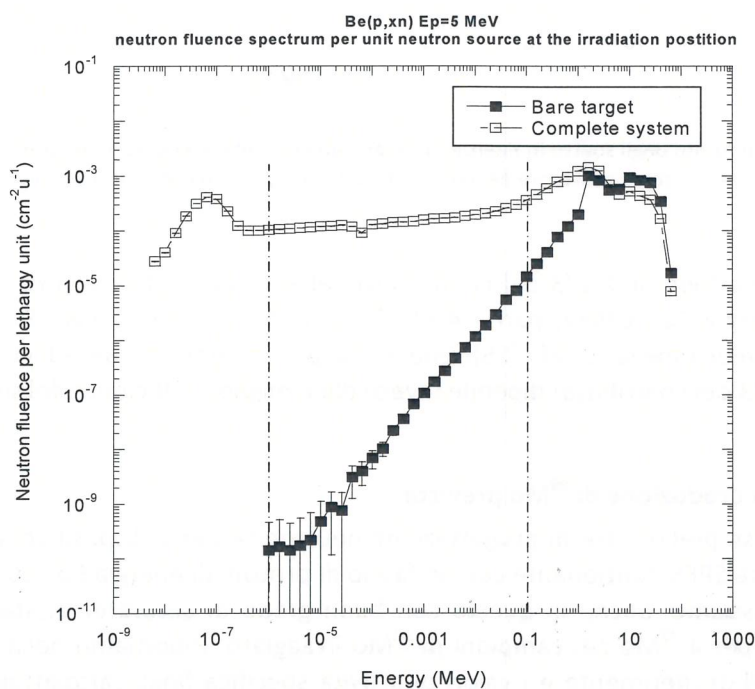


Fig. 24 Spettri di fluensa neutronica normalizzata del dispositivo attivatore, calcolati alla posizione d'irraggiamento, per i due casi del solo target in Be e del sistema completo.

Infine, per verificare l'efficacia del sistema proposto basato sul ciclotrone SPES si è eseguito, anche in questo caso, un confronto con il sistema attivatore del JRC di Ispra [15] prima menzionato, basato su un ciclotrone da 40 MeV (vedi pag. 9) le cui caratteristiche spettrali sono mostrate nella successiva Figura 25.

Come ci si attendeva, l'analisi degli spettri normalizzati per il sistema attivatore completo mostra, in entrambi i casi, un andamento analogo. Ciò indica che l'attivatore proposto, basato sul ciclotrone

SPES produce, nella zona d'irraggiamento, la medesima qualità spettrale in campo epitermico (migliore alle basse energie) rispetto all'attivatore del JRC. Integrando i grafici nell'intervallo energetico fra 1eV - 100 keV, la fluensa neutronica normalizzata si ha che la configurazione proposta per l'attivatore SPES è migliore dell'attivatore del JRC di circa un fattore 3.

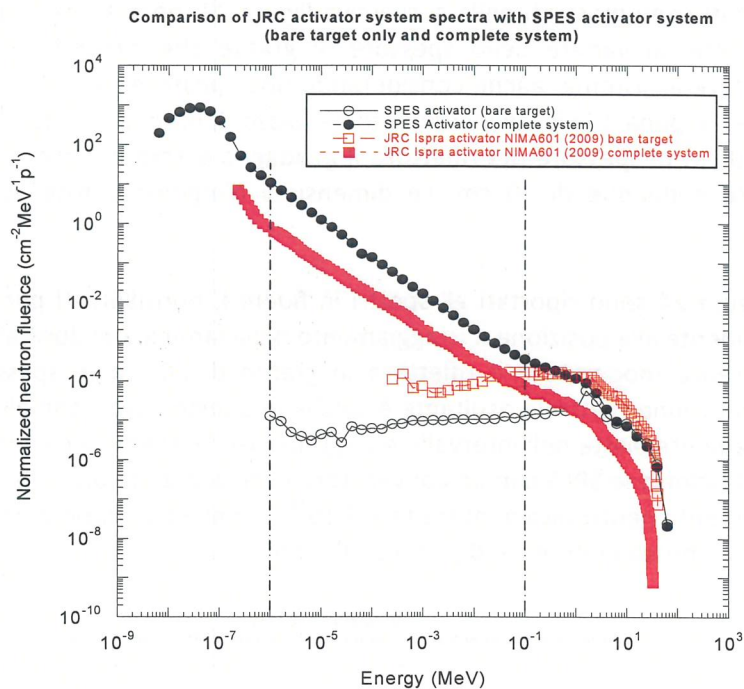


Fig. 25 Confronto degli spettri in fluensa, normalizzati per unità di energia e per protone incidente sul target, tra il sistema attivatore del JRC [15] e quello proposto basato sul ciclotrone SPES.

Ciò in parte dipende (per circa 2/3 del contributo) dalla migliore efficienza di conversione n/p del target in W all'energia $E_p=50\text{MeV}$, pari a $4.51 \cdot 10^{11}$ n/s· μA (vedi dati a pag. 8 ref. [13]) rispetto ai $2.09 \cdot 10^{11}$ n/s· μA (vedi tabella 1 ref. [15]) che si ha per il target in Be ad $E_p=40$ MeV. La parte rimanente (circa 1/3 del contributo) dipende invece dalla migliore efficienza del sistema.

2.3.2. Stima della produzione di ^{99}Mo prevista

Al termine della fase preliminare di progettazione neutronica per il dispositivo attivatore proposto, basato sul ciclotrone SPES, funzionante con un fascio di protoni di energia $E_p= 50$ MeV accoppiato ad un target in W possiamo, anche in questo con buon grado di accuratezza, stabilire l'efficienza di produzione attesa per il ^{99}Mo nei campioni di ^{98}Mo irraggiato. Riportiamo nella successiva tabella i parametri principali di riferimento e i valori di attività specifica finali calcolati per le prime 24 h di irraggiamento e in condizioni di saturazione.

Come si nota, confrontando i valori ottenuti, rispetto alla precedente soluzione proposta basata sul RFQ TRASCO, si ha un aumento dei tassi di reazione (quindi della capacità produttiva nel campione irraggiato) di solo un fattore 5. Considerando che, nel passaggio dai 50 ai 70 MeV (vedi pag.8), l'intensità di emissione neutronica prevista raddoppia, la produzione di ^{99}Mo dovrebbe essere all'incirca superiore di un ordine di grandezza. Per contro, come noto (vedi § 1.2.1), lo svantaggio è di produrre ^{99}Mo con un maggior livello di radionuclidi inquinanti.

Inoltre, coprendo lo spettro energetico di interesse, si è anche stimata la produzione di ^{99}Mo che si avrebbe sfruttando l'altro possibile canale di reazione (n,2n) su un campione di ^{100}Mo (vedi § 1.2.3), i cui risultati sono riportati nella medesima tabella. 27

Sistema attivatore basato sul ciclotrone SPES (Ep=50 MeV) + target in W		
Energia fascio protoni in uscita ciclotrone	Ep	50 MeV
Corrente di fascio max.	Ip	0.5 mA
Potenza sul target	P	25 kW
Convertitore neutronico		W
Intensità di sorgente prevista	S_{n tot}	2.3·10¹⁴ s⁻¹
Flusso neutronico epitermico (1eV-100 keV) nella zona d'irraggiamento	Φ_{epi}	5.0·10¹¹ cm⁻² s⁻¹
Flusso neutronico TOTALE nella zona d'irraggiamento	Φ_{tot}	1.9·10¹² cm⁻² s⁻¹
Campione irraggiato: $^{98}\text{Mo}/^{100}\text{Mo}$ (arricchimento)	%	100
Metodo di produzione Mo98(n,γ)Mo99		
Tasso di produzione TOTALE del ^{99}Mo nel campione: moderatore in Pb (60x60x60)cm ³ ; riflettore grafite-RG 20 cm spessore)		1.93·10¹⁰ cm⁻³ s⁻¹
Aliquota di produzione nell'intervallo (1eV-100 keV)	%	81.3
Attività specifica ^{99}Mo nel campione a saturazione ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)	As*	50.8 mCi/g
Attività specifica ^{99}Mo nel campione (prime 24h di fascio)	As	11.3 mCi/g
Massa campione ^{98}Mo richiesta per produrre 1 Ci ^{99}Mo (prime 24h)	m	~90 g
Metodo di produzione Mo100(n,2n)Mo99		
Tasso di produzione TOTALE di ^{99}Mo nel campione: moderatore in Pb (60x60x60)cm ³ ; riflettore grafite-RG 20 cm spessore)		1.31·10¹⁰ cm⁻³ s⁻¹
Aliquota di produzione nell'intervallo (E>100 keV)	%	100.0
Attività specifica ^{99}Mo nel campione a saturazione ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)	As*	34.5 mCi/g
Attività specifica ^{99}Mo nel campione (prime 24h di fascio)	As	7.7 mCi/g
Massa campione ^{98}Mo richiesta per produrre 1 Ci ^{99}Mo (prime 24h)	m	~130 g
Ulteriori canali di reazione aperti	molti, anche a lunga vita media, es: Sr90 (β-) T1/2 =28y -> Y90	

Dai dati ottenuti mediante le simulazioni MCNPX possiamo anche in questo caso calcolare il valore della sezione d'urto microscopica *efficace* σ_{eff} per la zona delle risonanze che occorre utilizzare nei calcoli semplificati per stimare, correttamente, il tasso di produzione nell'intervallo epitermico. Analogamente a quanto fatto nello studio del attivatore basato sul RFQ TRASCO svolgendo i calcoli si ottiene, per le reazioni (n,γ) un valore :

$$Y^{99\text{Mo}} = \int_{1\text{eV}}^{100\text{keV}} n_{98\text{Mo}} \sigma(E) \Phi(E) dE = 1.93 \cdot 10^{10} \cdot 0.813 = 1.57 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$$

$$\sigma_{\text{epi eff}} = 0.049 \cdot 10^{-23} \text{cm}^2 \approx 0.5 \text{b}$$

Il valore $\sigma_{\text{epi eff}}$ pesato invece su tutto l'intervallo energetico è di appena $\sim 0.16 \text{b}$. Valori così bassi della sezione d'urto non richiedono, quindi, campioni di spessore molto sottile da irraggiare. Anche con valori relativamente elevati (1 mm) non si producono diminuzioni locali del flusso scalare, garantendo un'attivazione omogenea all'interno del campione.

2.4. Produzione del ^{99}Mo e $^{99\text{m}}\text{Tc}$ con i protoni del ciclotrone SPES

Come riportato nella I parte del presente documento, la produzione di ^{99}Mo ai LNL potrebbe ottenersi, oltre che per attivazione, anche mediante reazione diretta con protoni accelerati dal ciclotrone SPES, in grado di fornire un fascio variabile in energia da 40 a 70 MeV. Nel seguito si riportano pertanto le stime di produzione previste, secondo il canale di reazione $^{100}\text{Mo}(p,pn)^{99}\text{Mo}$, nelle due configurazioni limite di funzionamento su un bersaglio (campione) di ^{100}Mo con arricchimento pari al 100%.

Per energie superiori ai 10 MeV (vedi § 1.3.1), sullo stesso campione di ^{100}Mo si apre anche l'altro canale di reazione, $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$, per la produzione diretta del $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Una produzione di qualità di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ sarebbe, tuttavia, ottimale solo se l'energia del fascio di protoni disponibile fosse di $E_p=22-24 \text{MeV}$. In tal modo, rallentando nello spessore del bersaglio, i protoni sfrutterebbero interamente l'intervallo di energie dove probabilità di reazione sarebbe favorita (picco della sezione d'urto di $\sim 250-300 \text{mb}$ ai 15 MeV). Anche se non in condizioni ottimali si fornisce, infine, una stima dell'aliquota di produzione diretta di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ attesa con un fascio di 40 MeV.

2.4.1. Caratteristiche principali del fascio di protoni nel bersaglio

La produzione dei nuclidi in oggetto è schematicamente riconducibile alla seguente Figura 26.

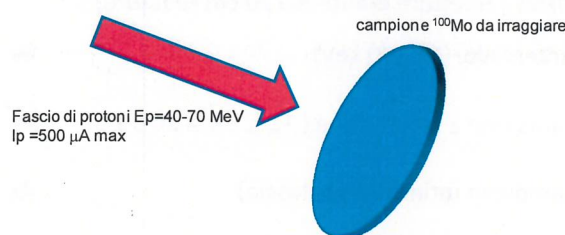


Fig. 26 Schema di produzione diretta del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ su bersaglio di ^{100}Mo .

Per determinare le condizioni ottimali d'irraggiamento, riducendone la quantità (quindi i costi), occorre calcolare lo spessore minimo necessario del materiale arricchito nell'ipotesi che il fascio si arresti completamente nel bersaglio stesso (condizione di target spesso). Dai database PSTAR del sito web del National Institute for Standard and Technology (NIST) possiamo scaricare i valori tabulati sia degli stopping power totali, sia degli spessori di arresto, per i protoni nel molibdeno, calcolati secondo il metodo descritto nei report ICRU-37 [32] e ICRU-49[33]. I valori, normalizzati alla densità

di massa del molibdeno metallico naturale, pari a $\rho = 10.28 \text{ g cm}^{-3}$, sono mostrati nel grafico della successiva Figura 27.

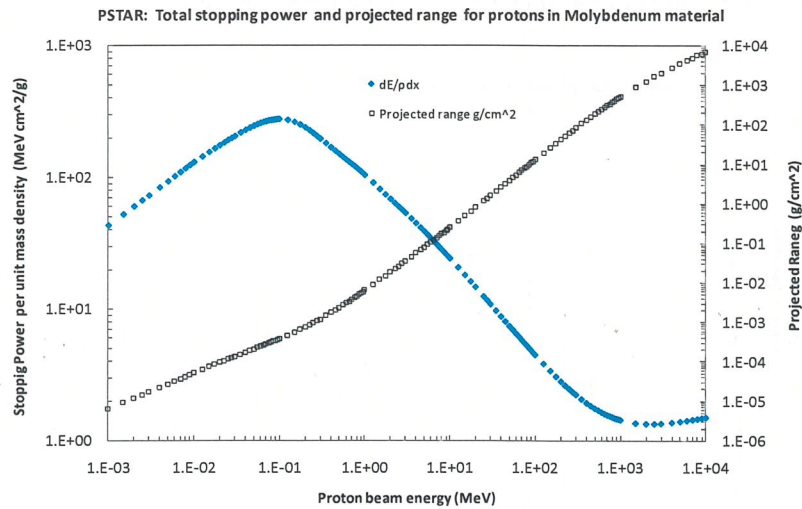


Fig. 27 Andamento degli stopping power e degli spessori di arresto normalizzati nel molibdeno metallico in funzione dell'energia dei protoni. Fonte database PSTAR (NIST) ICRU-37-49[32,33].

Come si può stimare dai valori riportati, un fascio di protoni di 70 MeV si arresta in circa 7 mm di spessore, mentre uno di energia pari a 40 MeV si arresta in poco meno di 3 mm. Inoltre gli andamenti delle perdite di energia per unità di lunghezza ed i corrispondenti valori di energia dei protoni calcolati, in funzione dello spessore di penetrazione del fascio nel bersaglio, sono riportati nella seguente Figura 28 per i due casi di irraggiamento, con energia minima e massima, possibili con il ciclotrone SPES. Il comportamento in entrambi i casi è analogo: una perdita di energia praticamente lineari nei primi millimetri di penetrazione, cui segue una brusca diminuzione in corrispondenza del picco di Bragg.

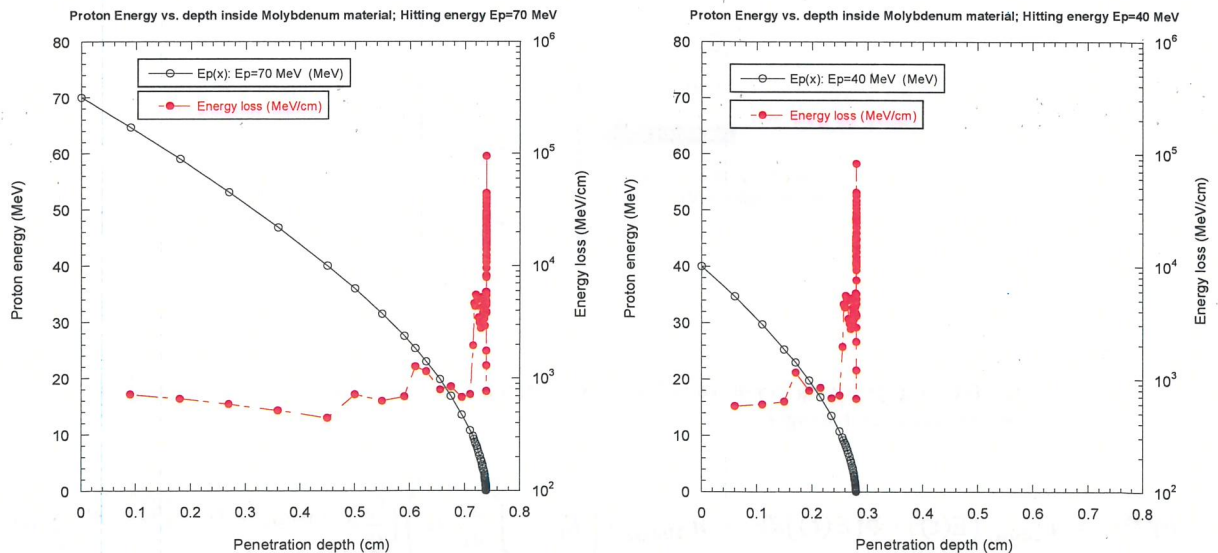


Fig. 28 Perdita di energia per unità di lunghezza (rosso) e corrispondente diminuzione dell'energia del fascio di protoni incidente (nero), in funzione dello spessore del bersaglio nei due configurazioni di irraggiamento sul campione di Mo: $E_p=70 \text{ MeV}$ (sinistra) ed $E_p=40 \text{ MeV}$ (destra). Si noti il picco di Bragg molto stretto in entrambi i casi.

Per il calcolo dei tassi di reazione di produzione del ^{99}Mo all'interno dello spessore del bersaglio si sono utilizzati i dati delle sezioni d'urto misurati da Scholen et al. [3,34]. Tra quelli più recenti ed

affidabili, facilmente disponibili dai database internazionali dei dati sperimentali sulle reazioni nucleari nel formato EXFOR, sono gli unici che coprono tutto l'intervallo di energia d'interesse fino ai 70 MeV, i cui valori sono riportati nel successivo grafico della Figura 29.

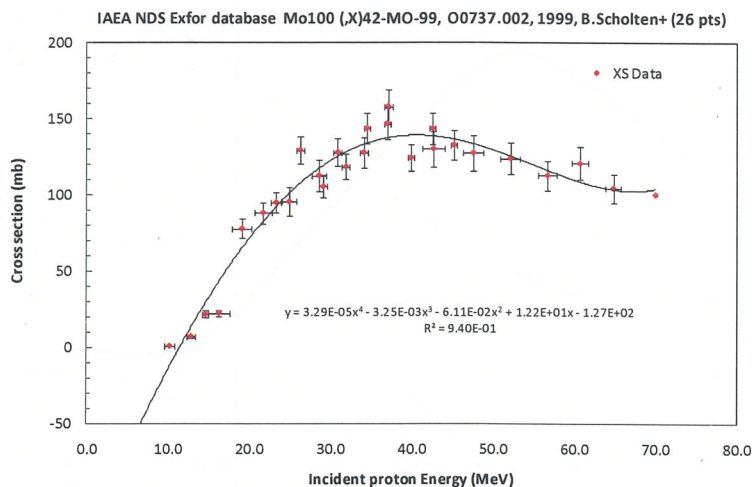


Fig. 29 Sezioni d'urto sperimentali per la reazione $^{100}\text{Mo}(p,x)^{99}\text{Mo}$: formato EXFOR, IAEA-Nuclear Data System [34].

Essendo lo spessore richiesto per fermare il fascio, in entrambi i casi, molto minore della massima dimensione lineare (raggio) per il bersaglio (vedi oltre) si può usare, con buona approssimazione, un approccio di calcolo a slab, come riprodotto schematicamente in Figura 30. Dato uno spessore infinitesimo dt , posto alla generica profondità t dalla superficie d'impatto ortogonale al fascio di protoni incidente, dove possiamo ritenere costante il valore dell'energia (vedi fig.28), il contributo locale al tasso di reazione complessivo è descritto dalla relazione di seguito riportata:

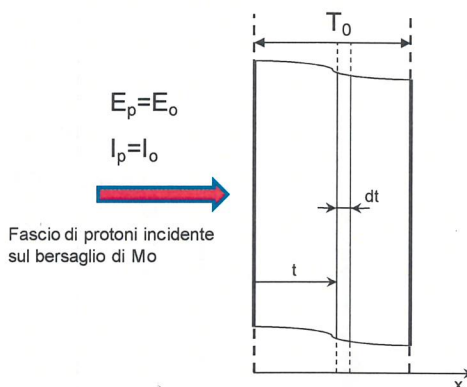


Fig. 30 Configurazione geometrica nell'approssimazione a slab per il calcolo dei tassi di reazione nello spessore del bersaglio.

$$dY^{99\text{Mo}} = \Sigma_{100\text{Mo}}(E(t)) \cdot \Phi(E(t)) dV = n_{100\text{Mo}} \sigma \left(E_0 - \int_0^t \frac{dE}{dx} dx \right) \left(\frac{I_0}{Q} e^{-n_{100\text{Mo}} \sigma_R (E_0 - \int_0^t \frac{dE}{dx} dx)} dt' \right) dt$$

- dove:
- I_0 = corrente di fascio di protoni incidente;
 - Q = unità di carica;
 - σ = sezione d'urto microscopica per la reazione $^{100}\text{Mo}(p,pn)^{99}\text{Mo}$
 - σ_R = sezione d'urto microscopica di rimozione (tutti i canali di reazione che rimuovono protoni dal fascio; le due reazioni di produzione de ^{99}Mo e $^{99\text{m}}\text{Tc}$).

L'espressione entro parentesi rappresenta il flusso di protoni alla generica profondità t , il cui contributo dato dall'esponenziale tiene conto dell'attenuazione del fascio al variare della profondità. Tuttavia, dato l'ordine di grandezza della sezione d'urto in gioco (vedi Figura 29), il contributo dell'esponenziale, per ogni spessore infinitesimo nel bersaglio, è praticamente costante, pari all'unità. Pertanto possiamo scrivere la seguente relazione semplificata senza commettere apprezzabili errori:

$$dY^{99\text{Mo}} = \Sigma_{100\text{Mo}}(E(t)) \cdot \Phi(E(t)) dV = n_{100\text{Mo}} \sigma \left(E_0 - \int_0^t \frac{dE}{dx} dx \right) \cdot \frac{I_0}{Q} dt$$

Integrando su tutto lo spessore del bersaglio e dividendo per $n_p = I_0/Q$, si ottiene il tasso di reazione complessivo di produzione normalizzato per protone incidente:

$$\frac{Y^{99\text{Mo}}}{n_p} = n_{100\text{Mo}} \int_0^{T_0} \sigma \left(E_0 - \int_0^t \frac{dE}{dx} dx \right) \cdot dt$$

Gli andamenti della produzione a 40 e 70 MeV, normalizzati per protone incidente sono riportati nella successiva Figura 31.

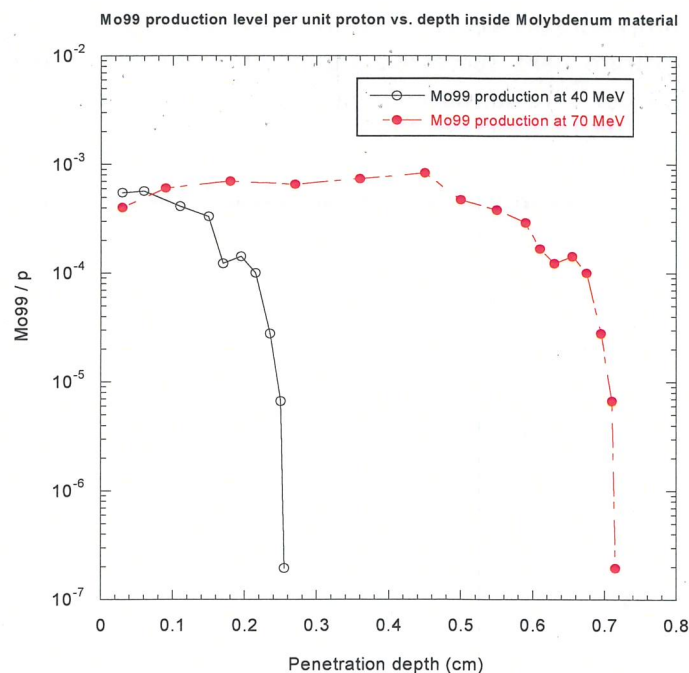


Fig. 31 Distribuzione della produzione normalizzata di ^{99}Mo nello spessore del bersaglio di ^{100}Mo per i due casi di irraggiamento con fascio di protoni da 40 e 70 MeV.

I valori integrati del rendimento di produzione del ^{99}Mo nel bersaglio, calcolati nei due casi, sono riportati nella tabella sottostante:

Energia di fascio	$^{99}\text{Mo}/p$
$E_p = 40 \text{ MeV}$	$1.71 \cdot 10^{-3}$
$E_p = 70 \text{ MeV}$	$5.24 \cdot 10^{-3}$

Se invece si volesse produrre direttamente ^{99m}Tc partendo dal fascio con la minima energia di 40 MeV fornita dal ciclotrone, ed utilizzando i dati di sezioni d'urto sperimentali misurati sia da Scholten et al. [3,35], sia da Tackas et al. [4,36] riportati in Figura 32

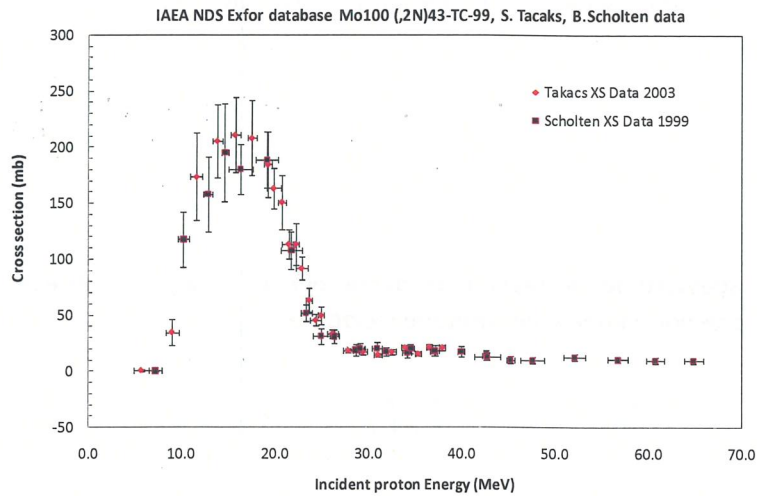


Fig. 32 Sezioni d'urto sperimentali per la reazione $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99m}\text{Tc}$: formato EXFOR, IAEA-Nuclear Data System [35,36].

si ottiene, con analoga procedura di calcolo, la distribuzione della produzione del ^{99m}Tc nello spessore del bersaglio, come mostrato nella successiva Figura 33. In questo caso il valore integrato del rendimento di produzione del ^{99m}Tc normalizzato per protone incidente, stimato nel bersaglio, è pari a $1.24 \cdot 10^{-3}$.

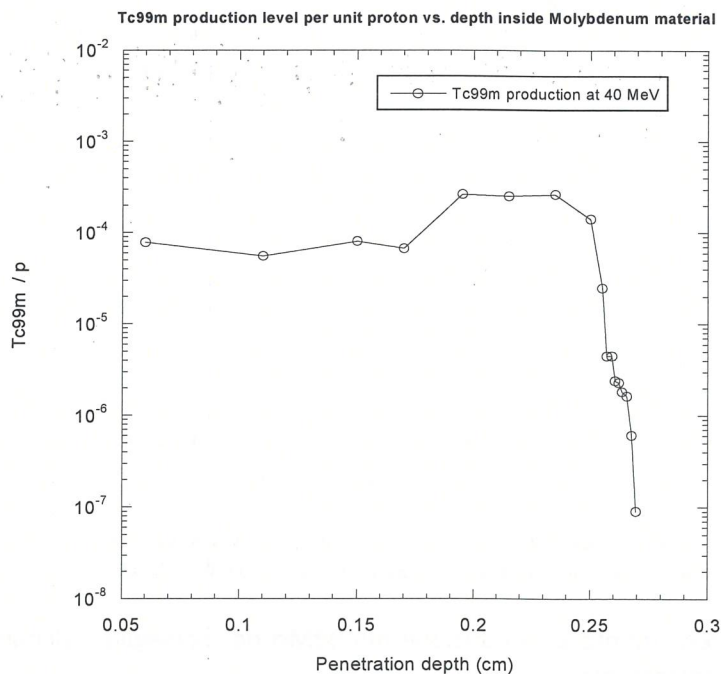


Fig. 33 Distribuzione della produzione di ^{99m}Tc nello spessore del bersaglio di ^{100}Mo per il caso di irraggiamento con un fascio di protoni da 40 MeV.

2.4.2. Stima della produzione di $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ prevista

Similmente ai casi trattati in precedenza, possiamo stabilire, anche nel caso dell'irraggiamento diretto su un bersaglio di ^{100}Mo l'efficienza di produzione attesa, sia per il ^{99}Mo alle due energie di riferimento, sia per il $^{99\text{m}}\text{Tc}$ all'energia minima di 40 MeV, considerando singolarmente i due contributi di produzione. Poiché sul bersaglio di molibdeno incide una potenza affatto trascurabile, che fonderebbe il bersaglio se non fosse refrigerato, consideriamo in questo studio preliminare una densità di potenza media di progetto di 500 W/cm^2 . Tale valore stabilisce univocamente le dimensioni e la massa del campione da irraggiare, nonché le attività specifiche attese.

Riportiamo nella successive tabelle i parametri principali di riferimento e i valori di attività specifica finali calcolati, sia per le prime 24 h di irraggiamento, sia e in condizioni di saturazione.

Caso1: produzione ^{99}Mo

$E_p = 40 \text{ MeV}$, $I_p = 500 \mu\text{A}$

Ipotesi : densità di potenza superficiale media 500 W/cm^2

produzione diretta ^{99}Mo mediante protoni da ciclotrone SPES ($E_p = 40 \text{ MeV}$)		
Energia fascio protoni in uscita RFQ	E_p	40 MeV
Corrente di fascio max	I_p	0.5 mA
Potenza sul campione in Mo	P	20 kW
Campione irraggiato: ^{100}Mo (arricchimento)	%	100
Metodo di produzione		$\text{Mo}100(p,pn)\text{Mo}99$
Tasso di produzione dei nuclidi di ^{99}Mo nel campione		$5.34 \cdot 10^{12} \text{ s}^{-1}$
Attività ^{99}Mo nel campione per unità di corrente a saturazione ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)	\bar{A}_s	288.8 mCi/ μA
Rateo di attività ^{99}Mo per unità di corrente nel campione (prime 24h di fascio)	\bar{A}'	$\sim 2.7 \text{ mCi}/\mu\text{Ah}$
Dimensioni del campione (disco) Mo irraggiato (target) alla densità di potenza indicata		$R=3.57 \text{ cm}$, $s=0.28 \text{ cm}$ $V=11.18 \text{ cm}^3$, $M=114.9 \text{ g}$
Attività disponibile (prime 24 h)	A	32.2 Ci
Attività specifica ^{99}Mo nel campione a saturazione ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)	A_s^*	1256.1 mCi/g
Attività specifica ^{99}Mo nel campione (prime 24h)	A_s	280.0 mCi/g
Ulteriori canali di reazione aperti	molti, anche a lunga vita media, es: $\text{Sr}90 (\beta^-) T_{1/2} = 28\text{y} \rightarrow \text{Y}90$	

Caso2: produzione ^{99}Mo

$E_p = 70 \text{ MeV}$, $I_p = 500 \mu\text{A}$

Ipotesi : densità di potenza superficiale media $500 \text{ W}/\text{cm}^2$

produzione diretta ^{99}Mo mediante protoni da ciclotrone SPES ($E_p = 70 \text{ MeV}$)			
Energia fascio protoni in uscita RFQ	E_p	70	MeV
Corrente di fascio max	I_p	0.5	mA
Potenza sul campione in Mo	P	35	kW
Campione irraggiato: ^{100}Mo (arricchimento)	%	100	
Metodo di produzione		Mo100(p,pn)Mo99	
Tasso di produzione dei nuclidi di ^{99}Mo nel campione		$1.64 \cdot 10^{13}$	s^{-1}
Attività ^{99}Mo nel campione per unità di corrente a saturazione ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)	\bar{A}_s	884.3	mCi/ μA
Rateo di attività ^{99}Mo per unità di corrente nel campione (prime 24h di fascio)	\bar{A}'	~8.2	mCi/ μAh
Dimensioni del campione (disco) Mo irraggiato (target) alla densità di potenza indicata		R=4.72 cm, s= 0.74 cm V=51.73 cm^3 , M =532.2 g	
Attività disponibile (prime 24 h)	A	98.6	Ci
Attività specifica ^{99}Mo nel campione a saturazione ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)	A_s^*	830.8	mCi/g
Attività specifica ^{99}Mo nel campione (prime 24h)	A_s	185.2	mCi/g
Ulteriori canali di reazione aperti	molti, anche a lunga vita media, es: Sr90 (β^-) $T_{1/2} = 28\text{y}$ \rightarrow Y90		

Caso3: produzione $^{99\text{m}}\text{Tc}$

$E_p = 40 \text{ MeV}$, $I_p = 500 \mu\text{A}$

Ipotesi : densità di potenza superficiale media 500 W/cm^2

produzione diretta $^{99\text{m}}\text{Tc}$ mediante protoni da ciclotrone SPES ($E_p = 40 \text{ MeV}$)			
Energia fascio protoni in uscita RFQ	E_p	40	MeV
Corrente di fascio max	I_p	0.5	mA
Potenza sul campione in Mo	P	20	kW
Campione irraggiato: ^{100}Mo (arricchimento)	%	100	
Metodo di produzione		Mo100(p,2n)Tc99m	
Tasso di produzione dei nuclidi di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ nel campione		$3.88 \cdot 10^{12}$	s^{-1}
Attività $^{99\text{m}}\text{Tc}$ nel campione per unità di corrente a saturazione ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 45 \text{ h}$)	\overline{A}_S	209.8	mCi/μA
Rateo di attività ^{99}Mo per unità di corrente nel campione (prime 4h di fascio)	\overline{A}'	19.4	mCi/μAh
Dimensioni del campione (disco) Mo irraggiato (target) alla densità di potenza indicata		$R=3.57 \text{ cm}$, $s=0.28 \text{ cm}$ $V=11.18 \text{ cm}^3$, $M=114.9 \text{ g}$	
Attività disponibile (prime 24 h)	A	98.3	Ci
Attività specifica ^{99}Mo nel campione a saturazione ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 45 \text{ h}$)	A_{S^*}	199.4	mCi/g
Attività specifica ^{99}Mo nel campione (prime 24h)	A_S	186.9	mCi/g
Ulteriori canali di reazione aperti		molti, anche a lunga vita media, es: Sr90 (β^-) $T_{1/2} = 28\text{y}$ \rightarrow Y90	

2.5. Riassunto dei risultati ottenuti e confronto con i valori riportati in letteratura

Riportiamo nel seguente paragrafo uno schema riassuntivo di confronto tra i valori delle efficienze di produzione del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, misurati in prove sperimentali e riportate in letteratura, con quelli stimati nel presente studio per una possibile produzione ai LNL con le differenti configurazioni analizzate. I risultati sono infine elencati nella tabella finale.

36

Metodo di produzione	$^{100}\text{Mo}(p,x)^{99}\text{Mo}$		$^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$		$^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$		$^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$	
	rif [3,4] sperimentale	ciclotrone SPES calcolato	rif [3,4] sperimentale	ciclotrone SPES calcolato	rif [10,14,15] sperimentale	TRASCO SPES calcolato	rif [20,23] sperimentale	ciclotrone SPES calcolato
\overline{A}_S [mCi/ μA] ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)	Ep = 40 MeV ?	Ep = 40 MeV 289						
	Ep = 65 MeV 750	Ep = 70 MeV 884						
\overline{A}^{\dagger} [mCi/ μAh] (24h di fascio)	Ep = 40 MeV 3 - 4	Ep = 40 MeV 2.7						
	Ep = 65 MeV 7.5	Ep = 70 MeV 8.2						
\overline{A}_S [mCi/ μA] ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 45 \text{ h}$)			Ep = 40 MeV ?	Ep = 40 MeV 209.8				
			Ep = 40 MeV 20.6	Ep = 40 MeV 19.4				
A_S^* [mCi/g] ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)					20 - 40	Attivatore TRASCO 10.6		
						Attivatore SPES 50.8		
A_S [mCi/g] (24h di fascio)					?	Attivatore TRASCO 2.4		
						Attivatore SPES 11.3		
A_S^* [mCi/g] ($T_{\text{irr}} \cong 5 \tau \cong 20 \text{ d}$)							0.2 - 20	Attivatore SPES 34.5
A_S [mCi/g] (24h di fascio)								Attivatore SPES 7.7

Nella successiva tabella riassuntiva finale si riporta una previsione della stima di produzione attesa, per le varie configurazioni studiate, ipotizzando una disponibilità di funzionamento degli acceleratori, in condivisione con altri apparati sperimentali ai LNL, per 12 ore/giorno, sempre considerando la massima corrente di fascio.

Metodo di produzione	Produzione mediante protoni		Produzione mediante neutroni	
	$^{100}\text{Mo}(p,x)^{99}\text{Mo}$	$^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$	$^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$	$^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$
	100% ^{100}Mo	100% ^{100}Mo	100% ^{98}Mo	100% ^{100}Mo
Acceleratore	SPES Ciclotrone Ip= 500 μA 500 W/cm ² su campione	SPES Ciclotrone Ip= 500 μA 500 W/cm ² su campione	TRASCO RFQ Ip=30 mA Ep=5 MeV <hr/> SPES Ciclotrone Ip= 500 μA Ep=50 MeV	SPES Ciclotrone Ip= 500 μA Ep=50 MeV
Attività in target (EOB) [Ci]	(Ep = 40 MeV) 16	(Ep = 40 MeV) 78	Attivatore TRASCO 1.0	Attivatore SPES
(12 h fascio/giorno)	(Ep = 70 MeV) 49		Attivatore SPES 1.0	1.0
Massa del campione richiesta	(Ep = 40 MeV) 115 gr	115 gr	795 gr	245 gr
	(Ep = 70 MeV) 532 gr		165 gr	

2.6. Conclusione

Al termine del presente studio di fattibilità sui possibili metodi di produzione del $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ ai LNL, possiamo stabilire quanto segue:

- il sistema attivatore proposto, basato sull'acceleratore RFQ TRASCO sarebbe quello con la miglior qualità di produzione del precursore ^{99}Mo e con la migliore "purezza", avendo una contaminazione trascurabile, se non nulla, da altri radionuclidi. Tuttavia il flusso neutronico nell'intervallo (1eV - 100 keV) dove avviene una frazione molto elevata, circa il 90 %, degli eventi di cattura, è tuttavia basso. Le attività specifiche, risultanti sia a saturazione, sia nelle prime 24 h di irraggiamento sono basse per immaginare una produzione massiva. Dipendio di materiale:
 - M= ~400gr di ^{98}Mo arricchito per produrre nel bersaglio 1 Ci di ^{99}Mo in 24 h di irraggiamento.
 - M= ~800gr di ^{98}Mo arricchito per produrre nel bersaglio 1 Ci di ^{99}Mo in 12 h di irraggiamento.

- b. il sistema attivatore proposto basato sul ciclotrone SPES, pur avendo una qualità relativamente inferiore a quella proposta con l'acceleratore TRASCO, è in grado produrre un'attività specifica nel campione irraggiato più elevata, grazie al contributo alle catture dovuto alla parte dello spettro neutronico con energia superiore alla zona delle risonanze. Le attività specifiche stimate a 50 MeV sarebbero migliori di circa un 25% rispetto a quelle di altri dispositivi analoghi sperimentali. Possibile una produzione massiva:
- $M \sim 90$ gr di ^{98}Mo arricchito (oppure 130 gr di ^{100}Mo sfruttando le reazioni $n,2n$) per produrre 1 Ci di ^{99}Mo in 24 h di irraggiamento.
 - $M \sim 165$ gr di ^{98}Mo arricchito (oppure 245 gr di ^{100}Mo sfruttando le reazioni $n,2n$) per produrre 1 Ci di ^{99}Mo in 12 h di irraggiamento.
- c. l'irraggiamento diretto con protoni su un bersaglio di ^{100}Mo permetterebbe produzioni di ^{99}Mo interessanti. I valori stimati delle attività, normalizzate per unità di corrente, sono paragonabili a quelli misurati sperimentalmente. Anche ipotizzando una densità di potenza relativamente bassa sul bersaglio-campione da irraggiare (500 W/cm^2) si avrebbero:
- $E_p = 40 \text{ MeV}$, $I = 500 \mu\text{A}$ $M = 115 \text{ gr } ^{100}\text{Mo}$, $A \sim 32 \text{ Ci di } ^{99}\text{Mo}$ in 24 h di irraggiamento;
 $M = 115 \text{ gr } ^{100}\text{Mo}$, $A \sim 16 \text{ Ci di } ^{99}\text{Mo}$ in 12 h di irraggiamento;
 - $E_p = 70 \text{ MeV}$, $I = 500 \mu\text{A}$ $M = 532 \text{ gr } ^{100}\text{Mo}$, $A \sim 99 \text{ Ci di } ^{99}\text{Mo}$ in 24 h di irraggiamento;
 $M = 532 \text{ gr } ^{100}\text{Mo}$, $A \sim 49 \text{ Ci di } ^{99}\text{Mo}$ in 12 h di irraggiamento;
- d. l'irraggiamento diretto con protoni, sempre sul medesimo bersaglio di ^{100}Mo , consentirebbe produzioni dirette di $^{99\text{m}}\text{Tc}$ anch'esse molto interessanti. Una produzione diretta di qualità, evitando la contemporanea presenza del ^{99}Mo prodotto, richiederebbe un'energia del fascio di protoni di 22-24 MeV. Tuttavia anche con un fascio di 40 MeV, sfruttando il processo di rallentamento nello spessore del bersaglio, i tassi di produzione sono paragonabili a quelli per la produzione del ^{99}Mo . Ipotizzando, anche in questo caso, una densità di potenza relativamente bassa sul bersaglio-campione da irraggiare (500 W/cm^2) si avrebbe:
- $E_p = 40 \text{ MeV}$, $I = 500 \mu\text{A}$ $M = 115 \text{ gr } ^{100}\text{Mo}$, $A \sim 98 \text{ Ci di } ^{99\text{m}}\text{Tc}$ in 24 h di irraggiamento;
 $M = 115 \text{ gr } ^{100}\text{Mo}$, $A \sim 78 \text{ Ci di } ^{99\text{m}}\text{Tc}$ in 12 h di irraggiamento;

In conclusione, sia nel caso della produzione indiretta del ^{99}Mo , sia di quella diretta del $^{99\text{m}}\text{Tc}$, l'irraggiamento con protoni sul bersaglio è la modalità migliore per l'elevata attività prodotta.

Tuttavia, in tutti i casi analizzati, eccetto quello che fa uso del RFQ TRASCO, insieme agli isotopi di interesse medico, vengono prodotti anche altri nuclidi. Tra di essi in particolare lo ^{90}Sr , emettitore beta puro a lunga vita media, sebbene non riportato in letteratura, merita una valutazione sperimentale più accurata per valutarne il rischio.

Bibliografia

1. J.R. Zeevaarta, S. Olsenb, *Recent trends in the concept of specific activity: Impact on radiochemical and radiopharmaceutical producers*, Applied Radiation and Isotopes 64 (2006) 812–814;
2. M.S. Uddin, M. Hagiwara, F. Tarkanyi, F. Ditroi, M. Baba, *Experimental Studies on the Proton-induced Activation Reactions of Molybdenum in the Energy Range 22–67 MeV*, Applied Radiation and Isotopes 60 (2004) 911–920;
3. B. Scholten, R.M. Lambrecht, M. Cogneau, H. Vera Ruiz, S. M. Qaim, *Excitation functions for the cyclotron production of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ and ^{99}Mo* , Applied Radiation and Isotopes 51 (1999) 69-80;
4. S. Takacs, Z. Szucs, F. Tarkanyi, A. Hermanne, M. Sonck, *Evaluation of proton-induced reactions on ^{100}Mo : New cross sections for the production of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ and ^{99}Mo* , Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 257, 1, (2003) 195-201;
5. M.C. Lagunas-Solar, P.M. Kiefer, O.F. Carvacho, C.A. Lagunas Y.P. Chaf, *Cyclotron Production of NCA $^{99\text{m}}\text{Tc}$ and ^{99}Mo . An Alternative Non-reactor Supply Source of Instant $^{99\text{m}}\text{Tc}$ and ^{99}Mo + $^{99\text{m}}\text{Tc}$ Generators*, Applied Radiation and Isotopes 42, 7, (1991) 643-651, International. Journal of Radiation Applications and Instruments Part A;
6. R.M. Lambrecht, T. Sekineb, H.V. Ruizc, *Alice predictions on the accelerator production of molybdenum-99*, Applied Radiation and Isotopes 51 (1999) 69-80;
7. IAEA Exfor Nuclear Database;
8. C. Rubbia, *Resonance enhanced neutron captures for element activation and waste transmutation* CERN/LHC/97-0040EET, 1997;
9. TARC collaboration, *Neutron-driven nuclear transmutation by Adiabatic Resonance Crossing*, CERN-SL-99-036EET, 1999;
10. C. Rubbia, *Neutron-Driven Element Transmuter*, PCT/EP97/03218 (1997);
11. S. Agosteo, P. Colautti, J. Esposito, A. Fazzi, M.V. Introini, A. Pola, *Characterization of the Energy Distribution of Neutrons Generated by 5 MeV Protons on a Thick Beryllium Target at Different Emission Angles*, Accepted for the 14th World Congress on Neutron Capture Therapy, to be issued;
12. I. Tilquin, P. Froment, M. Cogneau, Th. Delbar, J. Vervier, G. Ryckewaert, *Experimental measurements of neutron fluxes produced by proton beams (23–80 MeV) on Be and Pb targets*, Nuclear Instruments and Methods A 545 (2005) 339–343;
13. T. Aoki, M. Baba, S. Yonai, N. Kawata, M. Hagiwara, T. Miura, T. Nakamura, *Measurement of Differential Thick-Target Neutron Yields of C, Al, Ta, W(p,xn) for 50 MeV Protons*; Nuclear Science and Engineering, 146, (2004) 200-208;
14. P. Froment, I. Tilquin, M. Cogneau, Th. Delbar, J. Vervier, G. Ryckewaert, *The production of radioisotopes for medical applications by the adiabatic resonance crossing (ARC) technique*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 493, 3, (2002) 165-175;
15. K. Abbas, S. Buono, N. Burgio, G. Cotogno, N. Gibson, L. Maciocco, G. Mercurio, A. Santagata, F. Simonelli, H. Tagziria, *Development of an accelerator driven neutron activator for medical radioisotope production*, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, 601, (2009) 165-175;
16. J. V. Evans, P. W. Moore, M. E. Shying, J. M. Sodeau, *Zirconium Molybdate Gel as a Generator for Technetium- $^{99\text{m}}\text{Tc}$. The Concept and its Evaluation*, Applied Radiation and Isotopes 38, 1, (1987) 19-23, International. Journal of Radiation Applications and Instruments Part A;
17. F.F Knapp, S. Mirzadeh, *The continuing important role of radionuclide generator systems for nuclear medicine*, European Journal of Nuclear Medicine Vol. 21, No. 10, October 1994;
18. S. Chattopadhyay, S. Saha Das, M.K. Das, N.C. Goomer, *Recovery of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ from $\text{Na}_2[^{99}\text{Mo}]\text{MoO}_4$ solution obtained from reactor-produced (n,g) ^{99}Mo using a tiny Dowex-1 column in tandem with a small alumina column*, Applied Radiation and Isotopes 66 (2008) 1814–1817;
19. S. Chattopadhyay, S. Saha Das, L. Barua, *A simple and rapid technique for recovery of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ from low specific activity (n,g) ^{99}Mo based on solvent extraction and column chromatography*, Applied Radiation and Isotopes 68 (2010) 1-4;

20. **Y. Nagai Y. Hatsukawa**, Production of ^{99}Mo for Nuclear Medicine by $^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$, *Journal of the Physical Society of Japan*, 78, 3, (2009);
21. **C.M. Logan, D.W. Heikkinen**, RTNS-II - A Fusion Materials Research Tool, *Nuclear Instruments and Methods* 200 (1982) 105-111;
22. **D.W. Heikkinen, J.C. Davis, D.J. Massoletti, D.W. Short, D.B. Tuckerman**, The RTNS-II Fusion Materials Irradiation Facility, *Journal of Nuclear Materials* 141-143 (1986) 1061-1063;
23. **J. Reijonen, F. Gicquel, S.K. Hahto, M. King, T.-P. Lou, K.-N. Leung**, D-D neutron generator development at LBNL, *Applied Radiation and Isotopes* 63 (2005) 757-763;
24. **N. Levkovskii**, *Middle Mass Nuclides ($A=40\pm 100$) Activation Cross Sections by Medium Energy ($E=10\pm 50$ MeV) Protons and α -Particles (Experiment and Systematics)*, Inter-Vesti, Moscow, (1991) 215;
25. **B. Guerin S. Tremblay, S. Rodrigue, J. A. Rousseau, V. Dumulon-Perreault, R. Lecomte, J. E. van Lier, A. Zyuzin, E. J. van Lier**, Cyclotron Production of $^{99\text{m}}\text{Tc}$: An Approach to the Medical Isotope Crisis, *The Journal of Nuclear Medicine*, Vol. 51(4), 2010;
26. **P. Möller, J. R. Nix, W. D. Myers, and W. J. Swiatecki**, *Atomic Data Nucl. Data Tables* 59, 185-381 (1995).
27. **A. Pisent, M. Comunian, A. Palmieri, E. Fagotti, G.V. Lamanna, S. Mathot**, *The TRASCO SPES-RFQ*. Proceedings of LINAC 04 Conference, Lubeck, Germany, 2004, 69-71;
28. **E. Fagotti, M. Comunian, A. Palmieri, A. Pisent, C. Roncolato, F. Grespan**, *Fabrication and Testing of TRASCO*, Proceedings of LINAC 08, Victoria BC, Canada, 2008, 151-153;
29. **C. Ceballos, J. Esposito**, *The BSA modeling for the accelerator-based BNCT facility at INFN LNL for treating shallow skin melanoma*, *Applied Radiation and Isotopes* 67 (2009) S274-S277;
30. **J. Esposito, P. Colautti, S. Fabritsiev, A. Gervash, R. Giniyatulin, V.N. Lomasov, A. Makhankov, Mazul, A. Pisent, A. Pokrovsky M. Rumyantsev, V. Tanchuk, L. Tecchio**, *Be target development for the accelerator-based SPES-BNCT facility at INFN Legnaro*, *Applied Radiation and Isotopes* 67 (2009) S270-S273;
31. **G. Prete** Edt, *SPES advanced exotic ion beam facility at LNL*. Technical Design Report, (2008) INFN-LNL-223.
32. **International Commission on Radiation Units and Measurements**. *ICRU Report 37, Stopping Powers for Electrons and Positrons* (1984).
33. **International Commission on Radiation Units and Measurements**. *ICRU Report 49, Stopping Powers and Ranges for Protons and Alpha Particles* (1993).
34. **B. Scholten et al.**, Data file EXFOR-O0737.002 dated 1989, compare App. Rad. Iso. 51,69, (1999). EXFOR data retrieved from the IAEA Nuclear Data Section (NDS), Vienna.
35. **B. Scholten et al.**, Data file EXFOR-O0737.003 dated 1989, compare App. Rad. Iso. 51,69, (1999). EXFOR data retrieved from the IAEA Nuclear Data Section (NDS), Vienna.
36. **S. Takacs et. al.**, Data file EXFOR-D4115.002.2 dated 2003, compare J. Rad. Nucl. Chem. 257, 1, (2003). EXFOR data retrieved from the IAEA Nuclear Data Section (NDS), Vienna.