



بررسی بحرانیت در راکتور شیمیایی انحلال صفحات اورانیومی پرتودیده به منظور تولید ^{99}Mo

طیّبی، پونه^۱ - سالک، نفیسه^۲ - طبسی، محسن^{۱۲} - محمدی، اکبر^۳

^۱ سازمان انرژی اتمی ایران، مرکز نظام ایمنی هسته‌ای کشور

^۲ سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده مواد و سوخت هسته‌ای

^۳ سازمان انرژی اتمی ایران، شرکت پارس ایزوتوپ

چکیده:

برای تولید مولیبدن-۹۹ مورد نیاز کشور به میزان ۱۲۰ کوری در هفته مقرر است هدف‌های اکسید اورانیوم با غنای ۱۹/۷٪ به شکل مینی پلیت در راکتور تهران به مدت ۷ روز پرتودهی شوند. این هدف‌ها پس از یک روز خنک سازی، در راکتور شیمیایی انحلال حاوی اسید نیتریک ۶ مولار جهت انحلال و جداسازی مولیبدن-۹۹ از دیگر اجزای شکافت قرار می‌گیرند. راکتور شیمیایی انحلال باید به گونه ای طراحی شود که با وجود محلول اورانیومی دچار بحرانیت نشود. در این مقاله با استفاده از کد MCNPX2.7 سه پارامتر مختلف موثر بر بحرانی شدن محلول اورانیوم در راکتور انحلال مورد بررسی قرار گرفته است.

کلمات کلیدی: Criticality, Low Enriched Uranium, ^{99}Mo , Tehran Research Reactor

مقدمه:

بالغ بر ۸۰ درصد تصویربرداری‌های تشخیصی در پزشکی هسته‌ای با استفاده از رادیوداروهای $^{99\text{m}}\text{Tc}$ انجام می‌شود که مقدار آن بیش از ۳۰ میلیون مورد (حدود ۸۰۰,۰۰۰ کوری) در سال در سراسر جهان می‌باشد [۱]. در حال حاضر، در ایران میزان مصرف ^{99}Mo (رادیونوکلید مادر $^{99\text{m}}\text{Tc}$) بیش از ۱۰۰ کوری در هفته است که تقاضای آن رو به افزایش می‌باشد. تنها مسیر مناسب و مقرون به صرفه‌ای که منجر به تولید رادیوایزوتوپ $^{99\text{m}}\text{Tc}$ می‌شود، استفاده از ژنراتور مولیبدن-تکنسیوم ($^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$) بوده که در آن هسته رادیو اکتیو ^{99}Mo با نیمه عمر ۶۶ ساعت به هسته رادیواکتیو $^{99\text{m}}\text{Tc}$ با نیمه عمر ۶ ساعت و انرژی ۱۴۰keV (کیلو الکترون ولت) واپاشی کرده، سپس با روش‌های شیمیایی این دو از یکدیگر جدا شده و تکنسیوم آن به صورت رادیو دارو در شکل‌های شیمیایی و فیزیکی خاص در مراکز پزشکی هسته‌ای مورد استفاده قرار می‌گیرد. بیش از ۹۵٪ رادیونوکلید ^{99}Mo مورد نیاز برای تهیه ژنراتورهای $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ از طریق شکافت هسته‌ای ^{235}U تهیه می‌شوند. [۲۱] در اثر شکافت هسته‌های اورانیوم-۲۳۵ موجود در هدف اورانیومی، ^{99}Mo با بهره شکافت ۶/۱ درصد در راکتورهای تحقیقاتی تولید می‌شود. در ایران از سال ۷۴ پروژه تولید ^{99}Mo به روش‌های مختلف



کلید خورده و تولید آن در مقیاس آزمایشگاهی از روش شکافت با موفقیت انجام شده است. هم اکنون پروژه تولید آن در مقیاس نیمه صنعتی در حال اجرا می‌باشد که برای این منظور، هدف‌های اورانیومی شامل صفحات کوچک (مینی پلیت) با ترکیبی مشابه سوخت راکتور تهران بوده که ابعاد کوچکتری نسبت به صفحات سوخت دارند. برای حصول حدود ۱۲۰ کوری مولیبدن-۹۹، اکتیویته اولیه ده عدد از هدف‌های اورانیومی در انتهای ۷ روز پرتودهی و ۱ روز خنک شدن، حدود ده هزار کوری است. چون اورانیوم در غلافی مانند آلومینیوم ساندریج شده است، باید فرایند رادیوشیمی بر مبنای حذف یا حل اورانیوم همراه با غلاف مد نظر قرار گیرد. به این منظور، مینی پلیت‌ها در راکتور شیمیایی انحلال در محیط اسیدی قرار می‌گیرند. به دلیل استفاده از اورانیوم غنی شده در این هدف‌ها و انحلال آنها در اسید که حاوی آب و به خصوص هیدروژن (به عنوان کند کننده نوترون) است، ایجاد بحرانیت در راکتور انحلال، مسئله نگران کننده‌ای محسوب می‌شود. این تحقیق، موضوع بحرانیت در راکتور شیمیایی انحلال هدف‌های اورانیومی را به عنوان مهمترین تجهیز فرایندی به صورت تئوریک مورد بررسی قرار می‌دهد.

روش کار:

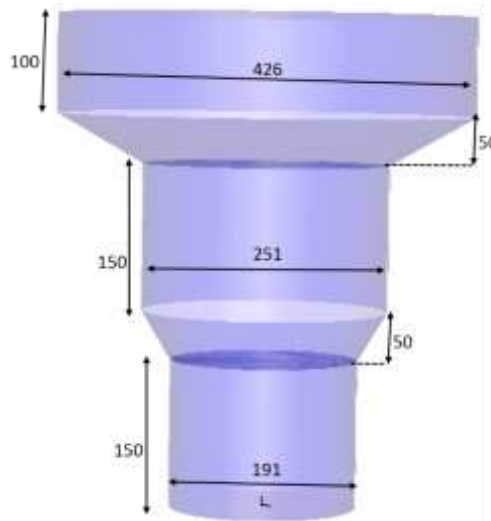
از کد محاسباتی MCNPX ویرایش ۲/۷ به عنوان ابزار محاسباتی قابل اتکاء و مبنای بررسی بحرانیت در این تحقیق استفاده شده است. مطالعه پارامتر مقدار ضریب تکثیر مؤثر (K_{eff}) نوترون در محلول حاوی اورانیوم، با استفاده از دستور KCODE انجام شده است. محاسبات نشان می‌دهد که پس از پرتودهی ۱۰ مینی پلیت اورانیومی LEU به مدت ۷ روز و یک روز خنک شدن، مقدار ۱۲۰ Ci از ^{99}Mo قابل استحصال است. در محاسبات مذکور بازده شیمیایی و واپاشی هسته‌های پرتوزا در نظر گرفته شده‌اند. مشخصات مینی پلیت‌ها در جدول ۱ آمده است.

جدول ۱: مشخصات مینی پلیت اورانیومی LEU

ویژگی	کمیت	ویژگی	کمیت
غناى اورانیوم (%)	۱۹/۷	جرم کل اکسید اورانیوم (g)	۱۵/۳۷
فرمول شیمیایی	U_3O_8	جرم کل آلومینیوم (g)	۳۴/۷۴
جرم ^{235}U (g)	۲/۵۹	جرم صفحه (g)	۵۰/۱۱

داده‌ی دیگر مورد استفاده در این تحقیق مقدار اسید نیتریک (با غلظت اولیه ۶ مولار) رقیق شده با آب به عنوان هضم کننده هدف‌ها به میزان استوکیومتریکی است. محول مذکور به صورت هموژن حاوی اورانیوم و آلومینیوم است. در محاسبات، اکسیژن موجود در اکسید اورانیوم نیز در نظر گرفته شده است.

راکتور انحلال مطابق شکل ۱ طراحی شده است. همواره در طراحی تجهیزات فرایندی باید تغییرات پارامترهای مؤثر در فرایند لحاظ شوند. لذا در این تحقیق پارامترهای مؤثر در بحرانیات راکتور شیمیایی انحلال بررسی شده‌اند.

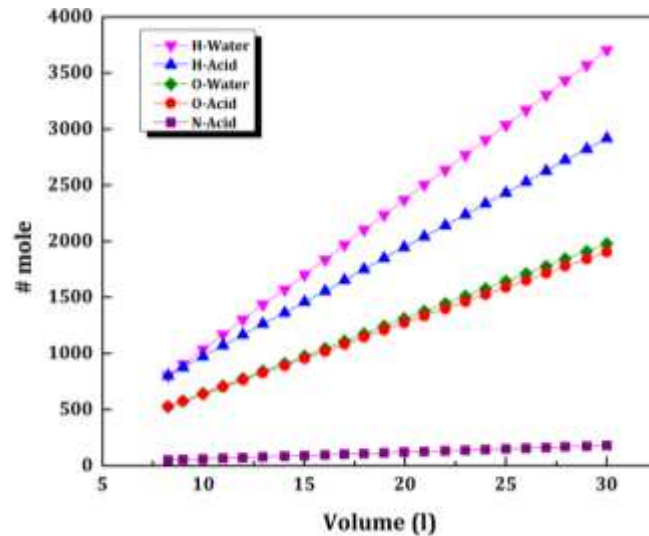


شکل شماره (۱). راکتور شیمیایی انحلال.

سه سناریوی مورد بررسی برای بحرانیات عبارتند از:

۱- تغییرات در میزان حلال (اسید نیتریک ۶ مولار): از آنجائیکه احتمال افزایش حجم محلول اسیدی در اثر خطای انسانی یا دستگاهی وجود دارد یکی از فرضیات مسئله اضافه شدن گام به گام اسید نیتریک با غلظت ۶ مولار به حجم اولیه تا رسیدن به حجم ۳۰ لیتر می‌باشد. گام اضافه شدن محلول برابر یک لیتر است. روند تغییرات مقدار مول اضافه شده برای هسته‌های هیدروژن، اکسیژن و نیتروژن در شکل شماره (۲) آمده‌است. حجم اولیه محلول استوکیومتریک برابر ۸/۲ لیتر است.

۲- تغییرات در میزان آب محلول: به دلیل اینکه هسته هیدروژن در کندشدن نوترون تأثیر بیشتری نسبت به سایر هسته‌های موجود در محلول دارد، افزودن آب (تا حجم ۳۰ لیتر) به صورت مجزا و بررسی آن در تغییرات ضریب مؤثر تکثیر مورد مطالعه قرار گرفت. به لحاظ فرایندی نیز شرایط به گونه‌ای است که احتمال سرریز شدن آب از سایر تجهیزات فرایندی به داخل راکتور انحلال وجود دارد. مقدار مول اضافه شده برای هسته‌های هیدروژن و اکسیژن در شکل شماره (۲) آمده‌است.

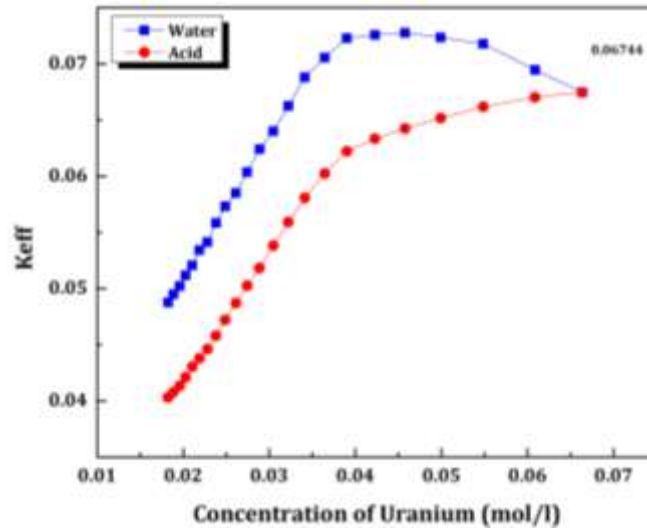


شکل شماره (۲). روند تغییرات مول‌های هیدروژن، اکسیژن و نیتروژن در اسید و آب.

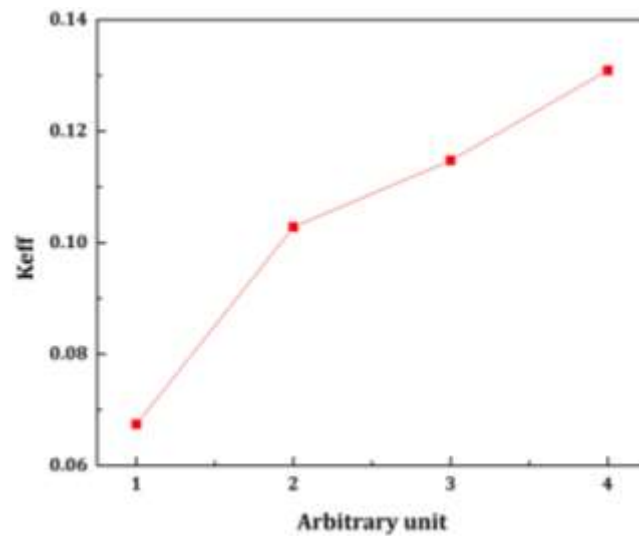
۳- افزایش مقدار ماده قابل شکافت در راکتور انحلال: علی‌رغم اینکه محاسبات حاکی از کافی بودن ۱۰ عدد صفحه کوچک پرتودیده، برای رفع نیاز کشور دارد، لیکن به دلایلی مانند باقی ماندن صفحات اورانیومی یا محلول حاوی اورانیوم از فرایندهای شیمیایی نوبت‌های پیشین تولید یا ظروف میانی احتمالی متصل به ظرف انحلال و افزایش صفحات به دلیل مشکلات در پرتودهی در راکتور یا افزایش تقاضای بازار، ممکن است تعداد صفحات بیشتری در راکتور شیمیایی مورد هضم اسیدی قرار گیرند. لذا در این مطالعه صفحات به صورت بچ‌های ده تایی با نسبت استوکیومتری اسید و قلیا به ظرف انحلال اضافه می‌شوند. این افزایش تا جایی انجام شده که ظرفیت حجمی راکتور انحلال تکمیل شود.

نتایج:

شکل شماره (۳)، رفتار K_{eff} را برحسب تغییر غلظت محلول اورانیوم در اثر افزایش مقدار آب و اسید (سناریوی ۱ و ۲)، نشان می‌دهد. رفتار K_{eff} برحسب افزایش مقدار محلول اورانیوم (سناریوی ۳) در شکل شماره (۴) نشان داده شده است. محور افقی نشان دهنده چند برابر بودن مقدار اولیه محلول است.



شکل شماره (۳). تغییرات K_{eff} برحسب تغییر مقدار غلظت اورانیوم.



شکل شماره (۴). تغییرات K_{eff} برحسب تغییر مقدار غلظت اورانیوم در اثر تغییر حجم اسید.

بحث و نتیجه گیری:

مقدار ضریب تکثیر نوترونی در محلول استوکیومتریک برابر 0.00012 ± 0.06744 می‌باشد که از مقدار 0.95 طبق معیار مرجع [۳] بسیار کمتر است. در شکل شماره (۲) مشاهده می‌شود که با افزایش مقدار اسید و در نتیجه کاهش غلظت محلول اورانیومی، مقدار ضریب تکثیر نوترون روند کاهشی دارد.



همچنین مشاهده می‌شود که با افزایش مقدار آب و در نتیجه کاهش غلظت محلول اورانیوم، مقدار ضریب تکثیر ابتدا از $0/06744$ به $0/07275$ افزایش می‌یابد. افزایش اولیه K مربوط به زیاد شدن تعداد اتم‌های هیدروژن به عنوان کند کننده نوترون است. در این صورت تعداد نوترون‌های حرارتی که منجر به شکافت می‌شوند افزایش یافته بنابراین مقدار K زیاد می‌شود. این نوترون‌ها در واقع نوترون‌های تاخیری هستند که در محلول تولید و منجر به شکافت می‌شوند. با افزایش بیشتر مقدار آب، محلول رقیق‌تر شده و فواصل اتمی بیشتر می‌شود و K تا $0/04877$ کاهش می‌یابد. در شکل شماره (۴) مشاهده می‌شود که با وجود زیاد شدن مقدار ضریب تکثیر با افزایش مقدار محلول اورانیومی تا زمان پر شدن کامل، راکتور انحلال همچنان از حالت بحرانی به دور است. بنابراین با بررسی این سه سناریو مشخص شد طراحی این راکتور شرایط مناسب جهت انحلال مینی پلیت‌های مورد نظر را به دور از بحرانی شدن دارد.

مراجع:

- [1] Kevin Charlton, "The Supply of Medical Radioisotopes-2017 Medical Isotope Supply Review", NEA/SEN/HLGMR (2017) 2, April 2017, www.oecd-nea.org.
- [2] Henry N. Wagner, Jr. M.D., "Technetium-99m Pharmaceuticals- Preparation and Quality Control In Nuclear Medicine", Ilse Zole Editor-Springer, 2007, ISBN -10 -3-540-33989-2.
- [3] Dennis Mennerdahl, "Review of the Nuclear Criticality Safety of SKB's Licensing 2012. Application for a Spent Nuclear Fuel Repository in Sweden",