



امکان‌سنجی تولید هیبریدی رادیوایزوتوپ ^{99}Mo با استفاده از شتاب‌دهنده الکترون پرتوان

تعقیبی خطبه‌سرا، علی*^۱ - رحمانی، فائزه^۱ - محسنی کجانی، مسعود^۲ - خلفی، حسین^۲ - قاسمی، فرشاد^۲

^۱ دانشگاه صنعتی خواجه نصیرالدین طوسی، دانشکده فیزیک، گروه هسته‌ای

^۲ سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده فیزیک و شتابگرها

چکیده:

در این پژوهش به تشریح روش نوینی برای تولید رادیوایزوتوپ ^{99}Mo (مادر هسته رادیوداروی پرکاربرد $^{99\text{m}}\text{Tc}$) به وسیله شتاب‌دهنده پرتوان الکترون و با در نظر گرفتن همزمان دو کانال تولید مختلف (روش هیبریدی)، یعنی اندرکنش‌های $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ و $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ پرداخته شده است. در روش مورد نظر، باریکه الکترونی پس از برخورد با یک مبدل فلزی با چگالی بالا، فوتون‌های تابش ترمزی پر انرژی ایجاد می‌کند. برخورد فوتون‌ها با هدف ^{100}Mo ، طی اندرکنش فتونوترون منجر به تولید ^{99}Mo می‌شود. میزان اکتیویته هسته‌های تولید شده از کانال اندرکنش فتونوترونی به ازای ۲۴ ساعت تابش باریکه روی هدف طراحی شده، در حدود 10 Ci پیش‌بینی می‌شود. بخش زیادی از طیف فوتون‌های تابش ترمزی دارای انرژی کمتر از آستانه اندرکنش فتونوترون، یعنی 8 MeV هستند. بنابراین با استفاده از چینش مناسب محفظه آب سنگین و صفحات ^{98}Mo در اطراف هدف ^{100}Mo ، بهره تولید ^{99}Mo به واسطه اضافه شدن کانال جذب نوترون افزایش داده شد. نتایج نشان داد شار نوترون‌های حرارتی ایجاد شده در آب سنگین، در اندرکنش جذب نوترون در ^{98}Mo و در نتیجه تولید ^{99}Mo قابل استفاده هستند. طبق شبیه‌سازی‌های انجام گرفته برای این قسمت، افزایش اکتیویته در حدود 0.23 Ci/day پیش‌بینی می‌شود.

کلمات کلیدی: شتاب‌دهنده خطی الکترون، ^{98}Mo ، ^{100}Mo ، ^{99}Mo ، $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ، اندرکنش فتوهسته‌ای، اندرکنش جذب نوترون

Feasibility study of the hybrid production of ^{99}Mo radioisotope using high power electron accelerator

Taghibi Khotbeh-sara, Ali¹; Rahmani, Faezeh¹; Mohseni Kejani², Masoud; Khalafi, Hosein²; Ghasemi, Farshad²

¹ K. N. Toosi University of Technology, Faculty of Physics, Department of Nuclear Physics

² Atomic Energy Organization of Iran (AEOI), Nuclear Science and Technology Research Institute

Abstract:

In this study, the idea of hybrid production of ^{99}Mo radioisotope using high power electron Linac and simultaneous two different production channels including $^{100}\text{Mo}(\gamma, n)^{99}\text{Mo}$ and $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ has been described. In this method,



electron beam impinges on the metallic converter with high density and bremsstrahlung photons produces. Interaction of photons with ^{100}Mo , photoneutron interaction produces ^{99}Mo . It is predicted that about 10 Ci of ^{99}Mo per 24-hour irradiation will be achieved. Threshold energy of this reaction is about 8 MeV, so a large part of bremsstrahlung photons cannot participate in this reaction. Appropriate arrangement of Heavy water and ^{98}Mo around the ^{100}Mo , increases the ^{99}Mo production yield because of the increase of neutron absorption.

Results showed that produced thermal neutron in heavy water can be used in neutron absorption in ^{98}Mo and ^{99}Mo production. According to the simulation, the increased activity up to 0.23 Ci/day is predicted.

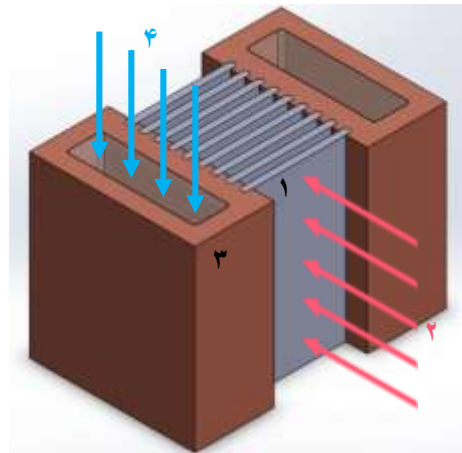
Keywords: Linear electron accelerator (Linac), ^{98}Mo , ^{100}Mo , ^{99}Mo / $^{99\text{m}}\text{Tc}$, Photo-nuclear reaction, Neutron capture reaction

مقدمه:

پیشگیری، تشخیص و درمان، اساس فرآیندهای پزشکی است. یکی از روش‌های تشخیص پزشکی هسته‌ای استفاده از رادیوداروها برای تصویربرداری از عملکرد اندام و ساختار بدن به عنوان ابزاری تشخیصی است. در حال حاضر رادیوداروی $^{99\text{m}}\text{Tc}$ پرکاربردترین رادیودارو در زمینه پزشکی هسته‌ای تشخیصی است و تقریباً ۸۰ درصد مصرف جهانی در این زمینه مربوط به این رادیودارو است [۱]. نیمه عمر کوتاه $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (حدوداً ۶ ساعت)، موجب محدودیت توزیع آن به مناطق دوردست است، از این رو معمولاً مادر هسته آن یعنی ^{99}Mo تولید می‌شود که طی واپاشی بتا و با نیمه عمر حدوداً ۶۶ ساعت به $^{99\text{m}}\text{Tc}$ تبدیل می‌شود و فرصت کافی را در اختیار توزیع کنندگان قرار می‌دهد. از جمله منابع اصلی تامین کننده این رادیوایزوتوپ می‌توان به راکتورهایی مانند راکتور تحقیقاتی ملی کانادا اشاره کرد. با توقف ناگهانی این راکتور در سال ۲۰۰۸ و سپس تعطیلی آن در سال ۲۰۱۸ و احتمال کمبود رادیودارو، کشورهای پیشرو در این زمینه، علیرغم حصول اکتیویته بالا در راکتورها، در پی یافت روش‌های جایگزین برآمدند [۲ و ۳]. یکی از روش‌های جایگزین استفاده از شتاب‌دهنده‌های ذرات است [۳-۵]. نیاز به ^{99}Mo در ایران حدوداً ۱۰۰ Ci در هفته است [۶]. در این پژوهش با توجه به شرایط کنونی ایران، از میان روش‌های موجود برای تولید ^{99}Mo / $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ، روش تولید بر پایه شتاب‌دهنده خطی الکترون مورد بررسی قرار گرفته است. با توجه به مطالعات انجام شده شتاب‌دهنده‌هایی با انرژی بین ۳۰ MeV تا ۴۵ MeV و همچنین با توان بیش از ۳۰ kW برای تولید مناسب هستند [۷]. یکی از مزایای این روش، ایمنی بیشتر (به علت عدم استفاده از اورانیم) و همچنین هزینه کمتر تجهیزات تولید در مقایسه با هزینه‌های مربوط به ساخت و نگهداری یک راکتور است. ایده استفاده همزمان از دو کانال مختلف جهت تولید ^{99}Mo به عنوان یک رهیافت می‌تواند تا حدودی بهره‌نمایی تولید در این روش را افزایش دهد.

تولید ^{99}Mo با استفاده از اندرکنش فتوهسته‌ای:

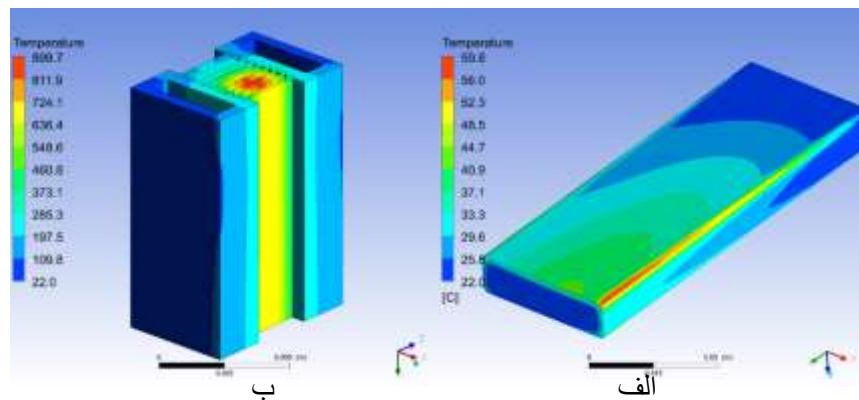
در مرحله اول، تولید رادیوایزوتوپ ^{99}Mo طی اندرکنش فتونوترون مورد مطالعه و بررسی قرار گرفت [۷-۹]. در این بررسی‌ها که شامل محاسبات هسته‌ای مونت کارلو برای یافتن ابعاد بهینه هدف و پیش بینی بهره تولید با استفاده از کد MCNPX 2.6 و همچنین تحلیل‌های حرارتی توسط نرم‌افزار ANSYS 18 بوده است. در این روش، از هدف مولیدن به عنوان مبدل و نیز هدف فتونوترونی استفاده شد (رهیافت یک-مرحله‌ای) که در آن برخورد باریکه الکترونی با انرژی ۳۰ MeV و جریان متوسط ۱ mA به هدف ^{100}Mo (با فراوانی حدودا ۹/۷٪ در $^{\text{nat}}\text{Mo}$) شبیه‌سازی شد. علت این انتخاب به چگالی نسبتا بالای مولیدن باز می‌گردد که ساختار را از وجود یک مبدل الکترون به فوتون جداگانه بی‌نیاز می‌سازد [۱۰]. طی برخورد باریکه الکترونی با هدف مولیدنی، انرژی و حرارت قابل توجهی در هدف به‌جا می‌ماند که به سرعت هدف را ذوب می‌کند. اولین پیشنهاد، استفاده از باریکه الکترون روبشی روی یک هدف طویل است تا از ذوب نقطه‌ای ممانعت شود. سپس با تقسیم هدف به صفحات نواری نازکتر و نیز قرار دادن آنها بین دو لوله مسی که همانند گیره این صفحات را از طرفین در بر گرفته‌اند، محاسبات برداشت حرارت برای طراحی سیستم خنک‌کننده با عبور سیال از میان این لوله‌ها انجام شد. انتخاب این نوع خنک‌کاری به دلیل ممانعت از تماس مستقیم آب با صفحات مولیدنی است تا از خوردگی و فرسایش اجتناب شود. طرحی ساده از هدف توصیف شده در شکل (۱) نمایش داده شده است.



شکل (۱) نمایی ساده از ساختار هدف. ۱: صفحات مولیدن، ۲: جهت تابش باریکه الکترونی، ۳: لوله‌های مسی به عنوان نگهدارنده و خنک‌کننده صفحات و ۴: مسیر سیال خنک‌کننده در داخل لوله‌های مسی.

معیار انتخاب افزایش دمای مجاز، اجتناب از پدیده بازبلورسازی است که در دماهای بیش از نصف دمای ذوب رخ می‌دهد [۱۱]. طی فرآیند بازبلورسازی ممکن است ترک، زبر شدن سطح و یا تورم رخ دهد و خواص مکانیکی و حرارتی ماده تحت تأثیر قرار گیرد [۱۲]. با توجه به دمای نقطه ذوب مولیدن (2623°C)، دمای 1300°C برای حد باز بلورسازی مولیدن در نظر گرفته شد. ابعاد ساختار هدف تولید رادیوایزوتوپ ^{99}Mo مبتنی بر اندرکنش $^{99}\text{Mo}(\gamma, n)^{100}\text{Mo}$ ، بر اساس محاسبات هسته‌ای جهت یافتن ابعاد بهینه هدف ^{100}Mo و همچنین با در نظر گرفتن ملاحظات مکانیکی-حرارتی در محدودیت‌های ساخت و خنک‌کاری برآورد

شد. از این رو ۹ صفحه مولیدنی با ضخامت و طول و عرض به ترتیب ۰/۲ و ۱۰ و ۳ سانتی‌متر به موازات و در فاصله ۰/۲ سانتی‌متری از یکدیگر در نظر گرفته شد که توسط دو قطعه مسی لوله‌ای به ابعاد داخلی ۳/۶ در ۱ سانتی‌متر مربع احاطه شده‌اند. میزان انرژی به‌جا مانده در صفحات هدف توسط کد MCNP محاسبه شد. سپس طبق شبیه‌سازی انجام شده با استفاده از نرم‌افزار FLUENT، با اعمال جریان ناآرام (آشفته) برای آب با سرعت و دمای اولیه به ترتیب ۲/۵ m/s و ۲۲ °C در ابتدای مسیر لوله، دمای صفحات مولیدنی از ۹۰۰ °C فراتر نخواهد رفت [۷]. تحلیل حرارتی این شبیه‌سازی در شکل (۲) نمایش داده شده است. همچنین بیشینه دمای آب نیز از ۶۰ °C تجاوز نخواهد کرد و از این رو جریان دو فاز نیز در آب ایجاد نخواهد شد.



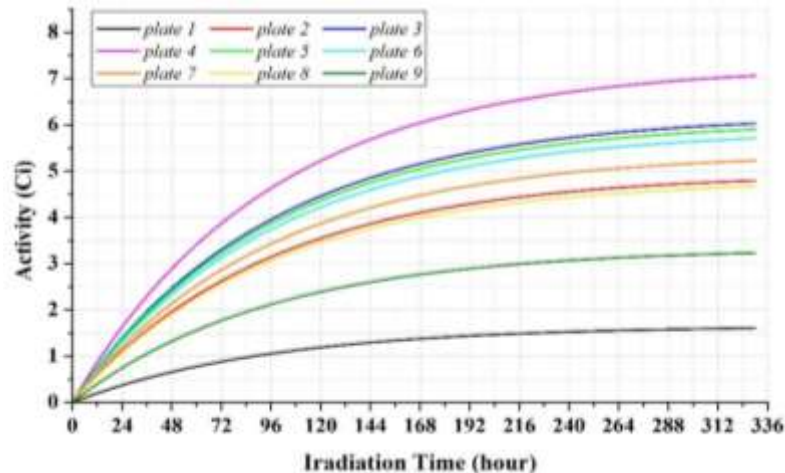
شکل (۲) توزیع دمایی هدف نواری به ارتفاع ۱۰ cm. الف) دمای آب درون لوله. ب) دمای ساختار هدف [۶].

در شکل (۳) اکتیویته پیش‌بینی شده برای صفحات هدف مشاهده می‌شود. باریکه ابتدا با صفحه ۱ برخورد می‌کند و بیشترین اکتیویته در عمق حدوداً ۰/۷ cm (متناظر با صفحه ۴) حاصل شود، که با نتایج و همچنین روش محاسباتی گزارش شده در مرجع [۱۳] همخوانی دارد. مجموع اکتیویته تمامی صفحات بعد از ۲۴ ساعت تابش باریکه روی هدف کمی بیش از ۱۰ Ci و اکتیویته اشباع نیز حدوداً ۴۵ Ci خواهد بود. برای محاسبه فعالیت ^{99}Mo طبق معادله (۱):

$$A(t) = R (1 - e^{-\lambda t}) \quad \text{معادله (۱)}$$

که در آن $A(t)$ اکتیویته هسته مورد نظر در مدت زمان تابش دهی t و λ ثابت واپاشی است [۱۴]، ابتدا باید نرخ اندرکنش (R) را بدست آورد. بدین منظور شار فوتون‌های تابش ترمزی تولید شده ϕ (#/cm².s) در صفحات هدف توسط کد MCNP محاسبه و سپس طبق معادله (۲) با داشتن تغییرات سطح مقطع اندرکنش σ (1/barn) در انرژی‌های مختلف و دانستن چگالی اتمی ρ (#/barn.cm)، می‌توان نرخ اندرکنش را محاسبه نمود [۱۴].

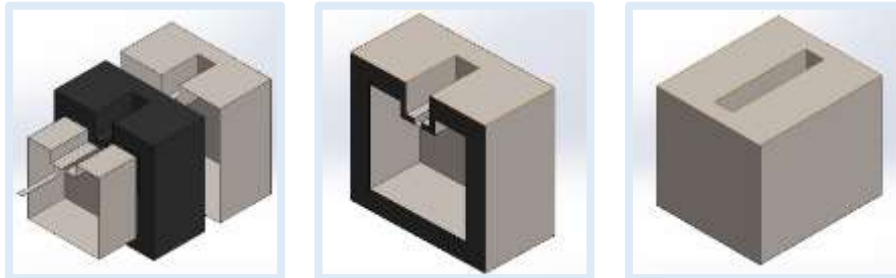
$$R = \rho \phi \sigma \quad \text{معادله (۲)}$$



شکل (۳) فعالیت ^{99}Mo تولید شده در صفحات هدف ^{100}Mo به ازای مدت زمان تابش دهی (از صفر تا ۵ برابر نیمه عمر - حدوداً برابر با فعالیت اشباع)، برای باریکه الکترونی با انرژی ۳۰ MeV و توان ۳۰ kW.

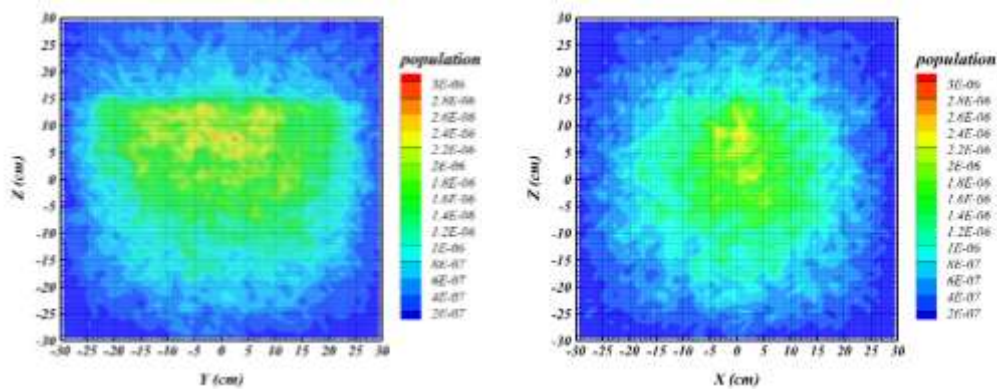
تولید رادیوایزوتوپ ^{99}Mo با استفاده از اندرکنش جذب نوترون (طراحی مفهومی و امکان سنجی با توجه به امکانات داخلی):

برای افزایش بهره تولید می‌توان همزمان از کانال اندرکنش $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ سود برد [۶]. با جایگذاری مناسب صفحات مولیدن طبیعی (شامل ۲/۲۴٪ ^{98}Mo) یا صفحات ^{98}Mo غنی شده در داخل محفظه‌ای شامل آب سنگین می‌توان به این مهم دست یافت. همچنین هدف مورد استفاده در این روش به مراتب ارزانتر از هدف ^{100}Mo غنی شده است. شتاب‌دهنده رودترون ۱۰ MeV یزد، پر قدرت‌ترین شتاب‌دهنده الکترونی فعال کشور می‌باشد [۱۵] و به طور اسمی توانایی تولید باریکه‌ای تا توان ۱۰۰ kW را دارد. انرژی این شتاب‌دهنده برای تولید به روش مبتنی بر اندرکنش فتونوترون در هدف ^{100}Mo مناسب نیست، ولی برای اثبات فناوری تولید با استفاده از کانال جذب نوترون و نیز ارزیابی محاسبات انجام شده کارآمد است. از طرفی با کوشش‌های به عمل آمده در صنعت هسته‌ای کشور دسترسی به آب سنگین مقدور است. می‌توان از این امکانات در تولید ^{99}Mo به روش مبتنی بر اندرکنش جذب نوترون در ^{98}Mo بهره برد. جهت بررسی این ایده، ابتدا نحوه پراکندگی نوترون‌ها در یک تانک آب سنگین به ابعاد داخلی $40 \times 40 \times 50 \text{ cm}^3$ بررسی شد (شکل (۴)) که در آن یک هدف تنگستنی به عنوان مبدل الکترون- فوتون به طول عرض ۴۸ cm و ضخامت بهینه ۰/۱۵ cm (بدست آمده از طریق محاسبات MCNP) در انتهای یک کانال به عمق ۱۰ cm در بالای تانک قرار گرفته است. انتخاب طول‌های در نظر گرفته شده برای مبدل و تانکر، در وهله اول به طول هورن شتاب‌دهنده و در وهله بعدی به اختصاص فضای کافی جهت مطالعه و بررسی توزیع مکانی نوترون‌ها ارتباط دارد. جنس بدنه نیز از دو لایه نازک استیل و یک لایه میانی ضخیم از جنس کربن (به عنوان بازتابنده نوترون) تشکیل شده است. باریکه الکترون نیز در راستای طولی مبدل را اسکن می‌کند.



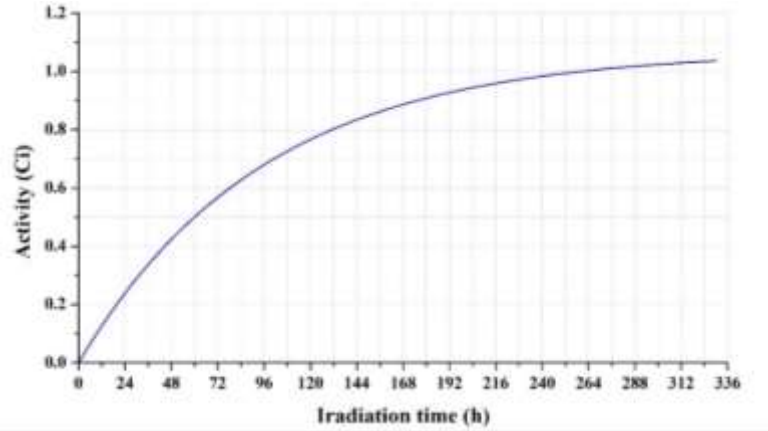
شکل (۴) بدنه تانک آب سنگین از نماهای متفاوت.

نتایج مربوط به این شبیه‌سازی در پربندهای شکل (۵) مشاهده می‌شود. این نتایج فقط به ازای یک الکترون باریکه است و در واحد حجم هر مش تعریف شده است، از این رو می‌توان امیدوار بود که با بهینه‌سازی ابعاد تانکر، شار مناسبی از نوترون‌ها را برای استفاده در اندرکنش جذب نوترون را تامین کرد.



شکل (۵) مقایسه پراکندگی مکانی نوترون‌ها در راستای طولی و عرضی تانک آب سنگین (مطابق با هندسه طراحی شد در شکل (۴))، با مش‌بندی $1 \times 1 \text{ cm}^2$.

جهت بررسی بهره تولید، اکتیویته تولید شده در 32 صفحه فلزی ^{98}Mo به طول و عرض 8 cm و 9 cm و ضخامت 0.2 cm واقع در پر جمعیت‌ترین ناحیه نوترونی تانک مورد نظر (مطابق با نواحی زرد و قرمز رنگ در شکل (۵)) محاسبه شد. اکتیویته پیش‌بینی شده برای مجموع صفحات، با فرض توان 100 kW شتاب‌دهنده در شکل (۶) نمایش داده شده است. برای 24 ساعت تابش مداوم می‌توان اکتیویته معادل با 0.23 Ci و در حالت اشباع نیز اکتیویته کمی بیش از 1 Ci را انتظار داشت.



شکل (۶) فعالیت ^{99}Mo تولید شده در صفحات هدف ^{98}Mo به ازای مدت زمان تابش دهی (از صفر تا ۵ برابر نیمه‌عمر - حدوداً برابر با فعالیت اشباع)، برای باریکه الکترونی با انرژی ۱۰ MeV و توان ۱۰۰ kW.

بحث و نتیجه‌گیری:

در این پژوهش ابتدا شتاب‌دهنده خطی الکترون ۳۰ MeV با توان ۳۰ kW جهت تولید رادیوایزوتوپ پرکاربرد $^{99}\text{Mo} / ^{99m}\text{Tc}$ ملاک قرار است. پس از محاسبات و شبیه‌سازی‌های هسته‌ای و مکانیکی-حرارتی، هدفی شامل ۹ صفحه نازک ^{100}Mo و به همراه الزامات خنک‌کاری به عنوان سیستم تولید ^{99}Mo با استفاده از کانال اندرکنش فتونوترون انتخاب گردید. در این مرحله می‌توان تا حدود ^{99}Mo ۱۰ Ci را در انتهای ۲۴ ساعت تابش مداوم باریکه انتظار داشت. همچنین می‌توان از اندرکنش جذب نوترون در هسته ^{98}Mo به عنوان یک کانال تولید دیگر به صورت هم‌زمان با کانال فتونوترون جهت افزایش نرخ تولید بهره برد. هرچند چشم‌انداز اصلی این پژوهش استفاده از شتاب‌دهنده ای با انرژی بالای ۳۰ MeV است، ولی با توجه به امکانات داخلی (رودترونی با انرژی ۱۰ MeV و توان ۱۰۰ kW است) ادامه شبیه‌سازی‌ها بر پایه این شتاب‌دهنده انجام گرفت تا در صورت آزمایش عملی و اثبات فناوری، بتوان سیستمی متشکل از هر دو کانال تولید را طراحی کرد. طبق شبیه‌سازی‌های اولیه برای کانال جذب نوترون، با قرار دادن ۳۲ صفحه نازک ^{98}Mo در نواحی پرتراکم نوترونی تانک آب سنگین، فعالیت حدوداً ^{99}Mo ۰/۲۳ Ci با ۲۴ ساعت تابش مداوم باریکه قابل حصول است.

مراجع:

- [1] I.A.E.A, "Non-HEU Production Technologies for Molybdenum-99 and Technetium-99m". IAEA Nuclear Energy Series. 2013, Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.
- [2] Charlton Kevin, "The Supply of Medical Radioisotopes: 2018 Medical Isotope Demand and Capacity Projection for the 2018-2023 Period". (NEA-SEN-HLGMR--2018-3), Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA), 2018.



- [3] W. Diamond, "The production of medical and industrial isotopes with an electron accelerator". 2015, Chalk River Laboratories: Canada.
- [4] Ross, C. and W. Diamond, "Predictions regarding the supply of ^{99}Mo and $^{99\text{m}}\text{Tc}$ when NRU ceases production in 2018". arXiv preprint arXiv:1506.08065
- [5] Bennett, R.G., et al., *A System of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ Production Based on Distributed Electron Accelerators and Thermal Separation*. Nuclear Technology, 1999. **126**(1): p. 102-121.
- [6] M. Ansari, et al, "New approach of Technetium- $^{99\text{m}}$ production, Iran's status and offering a new ideas. Second Iranian Particle Accelerator Conference (Iranpac2015), 2015: Tehran, Institute for Research in Fundamental Sciences (IPM).
- [7] H. Khalafi, Khotbeh-Sara, F. Rahmani, M. M. Kejani and F. Ghasemi. "Nuclear and Mechanical Basic Design of Target for Mo-99 Production Using High Power Electron LINAC", in 29th Linear Accelerator Conference-LINAC18. 2018: Beijing, China.
- [8] A.T. Khotbeh-Sara, F. Rahmani, and F. Ghasemi, "Optimization Study on Production of Mo-99 as a Nuclear Medicine Based on High Power Electron Accelerator LINAC", in Annual Physics Conference of Iran 2017. 2017, Physics Society of Iran: Iran, Yazd. p. 1979-1982.
- [9] A.T. Khotbeh-Sara, F. Rahmani, and F. Ghasemi, "Nuclear and Mechanical Design of Target in High Power electron Linac for the Optimized Production of $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ ", in Third Iranian Particle Accelerator Conference (Iranpac2017). 2017: Isfahan University of Technology.
- [10] A. Tsechanski, et al., "Electron accelerator-based production of molybdenum-99: Bremsstrahlung and photoneutron generation from molybdenum vs. tungsten". Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2016. 366: p. 124-139.
- [11] R. D. Doherty, et al., "Current issues in recrystallization: a review", Mater. Sci. Eng. 238, 219-274 (1997).
- [12] I. Uytendhouwen, et al., "Influence of recrystallization on thermal shock resistance of various tungsten grades", J. Nucl. Mater. 363, 1099-1103 (2007).
- [13] Danon, Y., R. Block, and J. Harvey, *Production of Mo-99 using 30 MeV electrons and a Mo-100 target*. Transactions of the American Nuclear Society, 2010. **103**: p. 1081-1082.
- [14] Krane, K.S. and D. Halliday, *Introductory nuclear physics*. 1987.
- [15] Poursaleh, A., et al., Design and construction of the first Iranian powerful industrial electron accelerator. Iranian Journal of Physics Research, 2015. 15(2): p. 137-144.