امکان‌سنجی تولید Mo-99 به کمک شکافت محلول نیترات اورانیل در راکتور MNSR

ایوبیان، نوید *[۱]- خورسندی، جمشید [۲]- محمدی، زینب [۱]

۱- دانشگاه اصفهان، دانشکده‌ی علوم و فناوری‌های نوین، گروه مهندسی هسته‌ای

۲- سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده راکتور و ایمنی هسته‌ای

چکیده

در حوزه‌ی پزشکی، Tc-99m از رادیوداروهای پرکاربرد در تصویربرداری از بدن است، اما به‌دلیل نیمه‌عمر پایین آن رادیوایزوتوپ مادر (Mo-99) با نیمه‌عمر ۶۶ ساعت تولید و در ظروف خاص ذخیره و به مراکز درمانی ارسال می‌گردد. امروزه روش غالب تولید Mo-99 شکافت U-235 درون راکتورهای هسته‌ای است. در این پژوهش امکان‌سنجی تولید Mo-99 با پرتودهی محلول نیترات اورانیل در راکتور MNSR بررسی گردید. برای شبیه‌سازی تولید Mo-99 در غلظت‌ها و غناهای مختلف اورانیوم، از برنامه متلب و کد MCNPX استفاده شد. در ادامه محلول نیترات اورانیل (با غنای طبیعی) در راکتور MNSR پرتودهی گردید. نتایج حاکی از امکان تولید Mo-99 با پرتودهی نیترات اورانیل در راکتور MNSR است.

کلمات کلیدی: *راکتور MNSR (Miniature Neutron Source Reactor)، MO-99، شکافت، نیترات اورانیل*

The feasibility of Mo-99 production by fission of uranyl nitrate solution in the MNSR reactor

Ayoobian, Navid[*1]- Khorsandi, Jamshid[2]- Mohamadi, Zeinab[1]

1- University of Isfahan, Faculty of Science and Technology, Department of Nuclear Engineering

2- Nuclear Science and Technology Research Institute, Reactor and Nuclear Safety Research School

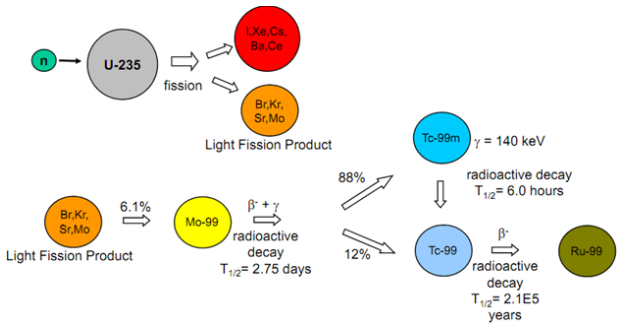
Abstract

In the medical field, Tc-99m is one of the most widely used radiopharmaceuticals for body Imaging. Due to its low half-life, its mother (Mo-99), with a half-life of 66 h, is generated and sent to health centers. The common production procedure for Mo-99 is the use of nuclear reactors (fission of U-235). In this research, the production feasibility of Mo-99 is investigated by irradiation of uranyl nitrate solution with the Miniature Neutron Source Reactor (MNSR). MCNPX code is used to simulate Mo-99 production, for various concentrations and enriched uranium. Also, one sample is irradiated in the MNSR reactor. The results indicate the possibility of Mo-99 production by irradiation of uranyl nitrate in the MNSR reactor.

Keywords: *Miniature Neutron Source Reactor (MNSR), Mo-99, Fission, Uranyl Nitrate*

مقدمه

در علم پزشکی هسته‌ای از رادیوایزوتوپ‌ها به‌منظور درمان و یا ردیاب برای اسکن بدن انسان استفاده می‌شود. Tc-99m در روش‌های تشخیص پزشکی هسته‌ای بیشتر از مواد دیگر مورد استفاده قرار گرفته و این استفاده با رشد ۳/۵ ٪ در هر سال افزایش می یابد؛ اما از آن‌جایی که نیمه‌عمر کوتاهی (۶/۰۰۵۸ ساعت) دارد، قابلیت ذخیره‌سازی آن وجود ندارد. ازاین‌رو رادیوایزوتوپ مادر آن (Mo-99) با نیمه‌عمری در حدود ۶۶ ساعت، به مراکز پزشکی و درمانی ارسال شده و Tc-99m مورد نیاز توسط مولی‌ژنراتور از آن جداسازی و استخراج می‌گردد. Mo-99 را می‌توان با روشهای گوناگون تولید کرد. برای مثال این ایزوتوپ با بهره ۶/۱ ٪ از شکافت اورانیوم تولید و ۸۷ ٪ آن به ایزوتوپ Tc-99m تبدیل می‌شود [۲-۱]. شکل ۱ شمای کلی تولید Mo-99 بوسیله شکافت U-235 و واپاشی آن به Tc-99m را نشان می‌دهد.



شکل ۱: شمای استحاله Mo-99

بالغ بر۹۵ ٪ Mo-99 مورد نیاز با استفاده از شکافت U-235 درون راکتورهای هسته‌ای تولید می‌شود. در حال حاضر پنج راکتور تحقیقاتی (NRU در کانادا، BR-2 در بلژیک، HFR در هلند، Osiris در فرانسه، Safari-I در آفریقای جنوبی) وجود دارند که بیشتر Mo-99 مورد نیاز جهان را تولید می‌کنند. همگی این راکتورها بیشتر از چهل سال عمر داشته و از اورانیوم با غنای بالا استفاده می‌کنند. علاوه بر این پنج راکتور، CNEA در آرژانتین از سال ۲۰۰۲ با استفاده از اورانیوم با غنای پایین، وظیفه تولید ۱/۵ ٪ مصرف جهانی Mo-99 را بر عهده دارد. در سال ۲۰۱۰ یک بخش جدید در راکتور OPAL استرالیا راه‌اندازی شد که اولین تولیدکننده Mo-99 از اهداف اورانیوم با غنای پایین در جهان بوده و ظرفیت آن تولید حدود ۱۲۰۰۰ کوری در هر هفته است [۳]. در ایران Mo-99 مورد نیاز با واردات از کشورهای روسیه و بلژیک تامین می‌شود. هدف اصلی این پژوهش، امکان‌سنجی تولید

Mo-99 با پرتودهی محلول نیترات اورانیل در راکتور MNSR اصفهان است. این راکتور یک چشمه برای تولید نوترون‌های گرمایی و تولید ایزوتوپ‌هایی با نیمه‌عمر کوتاه بوده و نتایج نشان داده‌اند که شار این راکتور در یک دوره زمانی پایدار است [۴].

روش کار

ابتدا به کمک برنامه مطلب، از فرمول تجربی زیر برای تخمین چگالی اورانیوم در محلول برای H/Uهای مختلف استفاده گردید [۵]:

$$\rho U(i) = \frac{238.0325174}{238.0325174 + (i-12)\times 9.0287} \qquad (۱)$$

در این رابطه i در محدوده‌ی صفر تا ۱۹۰ برای H/Uهای مختلف متغیر است. با تعیین چگالی اتمی اورانیوم، اکسیژن، هیدروژن و نیتروژن، به کمک رابطه تجربی زیر چگالی محلول قابل محاسبه است [۵]:

$$\rho S(i) = \frac{(NU\times(235.034458+8\times 15.999+2\times 14.007)+NH(1.008+0.5\times 15.999))}{0.6023} \qquad (۲)$$

در مرحله دوم به‌کمک کد MCNPX، راکتور MNSR و کلیه اجزاء آن شبیه سازی شد و ضریب تکثیر راکتور محاسبه گردید. برای تعیین و انتخاب کانال مناسب پرتودهی، نیترات اورانیل در یک غلظت معین در کانال‌های مختلف راکتور قرار داده شد و ضریب تکثیر محاسبه گردید. در این تحقیق به‌منظور بررسی امکان‌سنجی تولید Mo-99 در غناهای مختلف، شبیه‌سازی در غناهای طبیعی، ۳ ٪، ۵ ٪، ۱۹/۷۵ ٪، ۴۰ ٪ و ۹۰ ٪ انجام گرفت. بر این اساس کانال شماره ۱ راکتور برای پرتودهی محلول نیترات اورانیل انتخاب شد. به منظور تعیین جرم و فعالیت پاره‌های حاصل از شکافت، از کارت Burn در کد MCNPX استفاده گردید. به دلیل تولید کم Mo-99 در غناهای پایین، متناسب با غنا زمان‌های پرتودهی متفاوتی تعریف شد (برای غناهای طبیعی، ۳ ٪ و ۵ ٪ دو مرحله‌ی ۱۲ ساعته و غناهای طبیعی، ۱۹/۷۵ ٪، ۴۰ ٪ و ۹۰ ٪ دو مرحله‌ی ۱ ساعته).

موضوع مورد اهمیت دیگر در این پژوهش، تخمین میزان شار نوترون و گرمای ایجاد شده در کپسول حاوی ماده نیترات اورانیل به‌علت قرارگیری نمونه در کانال پرتودهی بود. به این منظور از تالی‌های F4 و F7 استفاده گردید. با توجه به مقادیر گرمای آزاد شده، دمای نهایی کپسول حاوی نیترات اورانیل توسط رابطه $Q = mc\Delta T$ قابل محاسبه خواهد بود.

در آخر نیز به منظور بررسی تجربی تولید Mo-99 در راکتور MNSR، یک نمونه‌ی ۱۸ میلی‌گرمی از کریستال نیترات اورانیل (با غنای طبیعی و نسبت H/U برابر با صفر) در ۱۰ ٪ توان نامی راکتور (۳ کیلووات) به مدت زمان ۲ دقیقه پرتودهی شد. از آشکارساز HPGe برای آشکارسازی و طیف نگاری محصول استفاده گردید.

نتایج

جدول ۱ تغییرات ضریب تکثیر با افزایش غنای U-235 را برای H/U=90 و در دو مرحله پرتودهی ۱۲ ساعته برای غناهای طبیعی، ۳ ٪ و ۵ ٪ و ۱ ساعته برای غناهای ۱۹/۷۵ ٪، ۴۰ ٪ و ۹۰ ٪ با انحراف از معیار کمتر از ۰/۰۰۰۰۸ نشان می دهد. براساس این نتایج مشاهده می‌شود با قراردادن محلول نتیترات اورانیوم در کانال ۱ راکتور MNSR، ضریب تکثیر آن و درنتیجه ρ_{ex} راکتور تغییر محسوسی نمی‌کند. جدول ۲ بیانگر میزان تولید Mo-99 در غناهای طبیعی، ۳ ٪ ، ۵ ٪ ، ۱۹/۷۵ ٪، ۴۰ ٪ و ۹۰ ٪ در مراحل ذکر شده است. مشاهده می‌شود به جز در پایان مرحله اول برای غنای طبیعی، در تمامی حالات دیگر Mo-99 تولید شده است.

جدول ۱- میانگین ضریب تکثیر درغناهای مختلف U-235 برای H/U=90 در دو مرحله پرتودهی ۱۲ ساعته برای غناهای طبیعی، ۳ ٪ و ۵ ٪ و ۱ ساعته برای غناهای ۱۹/۷۵ ٪، ۴۰ ٪ و ۹۰ ٪

غنا	٪ ۹۰	٪ ۴۰	٪ ۱۹/۷۵	٪ ۵	٪ ۳	طبیعی
مرحله اول	۱/۰۰۴۴۳	۱/۰۰۴۲۵	۱/۰۰۴۲۵	۱/۰۰۳۶۰	۱/۰۰۳۸۱	۱/۰۰۳۹۵
مرحله دوم	۱/۰۰۳۷۹	۱/۰۰۳۷۰	۱/۰۰۳۸۹	۱/۰۰۴۱۸	۱/۰۰۳۶۲	۱/۰۰۳۸۲

جدول ۲ – تولیدات Mo-99 برحسب میلی کوری (در غناهای طبیعی،۳ ٪ و ۵ ٪ پس از دو مرحله‌ی ۱۲ ساعته و غناهای ۱۹/۷۵ ٪، ۴۰ ٪ و ۹۰ ٪ پس از دو مرحله‌ی ۱ ساعته)

غنا	٪ ۹۰	٪ ۴۰	٪ ۱۹/۷۵	٪ ۵	٪ ۳	طبیعی
مرحله اول	۱۲/۳۷۳۳۰۸	۵/۵۶۵۶۳۶	۲/۴۸۳۳۸۵	۱۸/۲۸۶۴۲۹	۶/۴۱۴۴۲۹	–
مرحله دوم	۲۴/۸۵۰۷۶۹	۱۱/۱۹۲۸۱۸	۶/۵۱۹۱۵۴	۹/۷۲۰۶۴۳	۱۱/۱۸۹۶۴۳	۳/۳۶۱۸

مقادیر میانگین شار و انرژی در نمونه‌ی پرتودهی شده پس از هر مرحله پرتودهی با خطای نسبی در حد ۰/۰۰۲۵ در جدول‌های ۳ و ۴ آورده شده است.

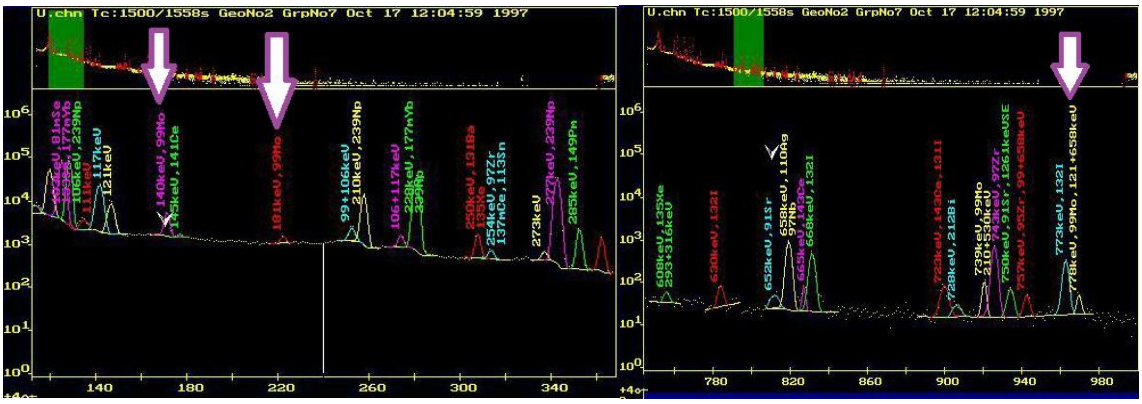
جدول ۳ – مقادیر میانگین شار و انرژی آزاد شده در نمونه پرتودهی شده (مرحله اول پرتودهی)

غنا	٪ ۹۰	٪ ۴۰	٪ ۱۹/۷۵	٪ ۵	٪ ۳	طبیعی
میانگین شار $(n/cm^2.s)$	$۲/۵۹\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۵۴\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۵۱\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۴۹\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۴۹\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۴۸\times۱۰^{۱۲}$
میانگین انرژی آزاد شده (MeV/gr)	$۱/۲۵\times۱۰^{-۲}$	$۶/۱۰\times۱۰^{-۳}$	$۳/۳۸\times۱۰^{-۳}$	$۸/۹۸\times۱۰^{-۴}$	$۵/۴۷\times۱۰^{-۴}$	$۲/۴۴\times۱۰^{-۳}$

جدول۴ – مقادیر میانگین شار و انرژی آزاد شده در نمونه پرتودهی شده (مرحله دوم پرتودهی)

غنا	٪ ۹۰	٪ ۴۰	٪ ۱۹/۷۵	٪ ۵	٪ ۳	طبیعی
میانگین شار $(n/cm^2.s)$	$۲/۵۹\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۵۴\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۵۲\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۴۸\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۴۹\times۱۰^{۱۲}$	$۲/۴۸\times۱۰^{۱۲}$
میانگین انرژی آزاد شده (MeV/gr)	$۱/۲۵\times۱۰^{-۲}$	$۶/۰۹\times۱۰^{-۳}$	$۳/۳۹\times۱۰^{-۳}$	$۸/۹۳\times۱۰^{-۴}$	$۵/۴۶\times۱۰^{-۴}$	$۲/۴۵\times۱۰^{-۳}$

مدت زمانی که راکتور MNSR می‌تواند روشن باشد، بسته به شرایط کاری آن بین نیم تا یک ساعت است؛ اما به دلیل مسایل ایمنی (برای اینکه پرتوزایی نمونه برای تحلیل در حد مجاز باشد) تیم فیزیک بهداشت راکتور مجوز پرتودهی کریستال نیترات اورانیل را فقط در ۲ دقیقه صادر کرد. پس از پرتودهی نمونه، با توجه به مقدار بسیار کم انرژی آزاد شده، افزایش دمای نمونه بسیار جزیی و غیر قابل اندازه‌گیری بود؛ همچنین دوز معادل آن حدود ۹ میکروسیورت اندازه‌گیری شد. نمونه پس از خروج از راکتور به‌منظور کاهش پرتوزایی محصولات شکافت با نیمه‌عمر کوتاه، ۴۸ ساعت نگهداری و سپس طیف نمونه به کمک آشکارساز HPGe و نرم افزار span در طی دو روز متوالی گرفته شد (شکل شماره ۲). در این شکل پیک‌های انرژی مربوط به Mo-99 با فلش مشخص شده‌اند.



ب الف

شکل ۲– طیف‌نگاری نیترات اورانیل پرتودهی شده در راکتور MNSR

الف) انرژی 140Kev و 181Kev ب) انرژی 778Kev

بحث و نتیجه‌گیری

با وجود اینکه راکتور MNSR برای اهدافی چون آنالیز به روش فعال‌سازی نوترون‌ها (NAA) و تولید رادیوایزوتوپ‌هایی با نیمه‌عمر کوتاه طراحی شده است، اما نتایج حاصل از شبیه‌سازی و پرتودهی نمونه نشان می‌دهد که این راکتور قابلیت تولید Mo-99 در ظرفیت محدود را داراست. با توجه به نتایج حاصله، پرتودهی نمونه خللی در عملکرد راکتور به وجود نمی‌آورد، و راکتور در حین پرتودهی به طور ایمن کار می‌کند. به دلیل پرتوزایی بالای نمونه‌ها، نیاز به تجهیزات مختلفی نظیر سلول‌های داغ (Hot Cell) و تجهیزات جداسازی است که با صرف هزینه‌ی معقول قابل تهیه و نصب و راه‌اندازی است.

سپاسگزاری

با سپاس فراوان از آقایان فرشاد مجیدی و رامین شیرینی، به دلیل کمک‌های ارزشمندشان در پیشبرد این پژوهش.

مراجع

[1] ANS, The Supply of the Medical Radioisotope Tc- 99m/Mo-99 Recent Shortages Call for Action in Developing a Domestic Developing a Domestic Production Capability presented to the American Nuclear Society Trinity Section, November 6, 2009.

[2] IAEA, Fission Molybdenum for Medical Use, A Technical Document Issued by The International Atomic Energy Agency, Vienna, 1989.

[3] IAEA, Advantages of Solution Reactors for the Production of Medical Isotops, Printed by the IAEA in Austria, September 2008.

[4] X. Song, W. Niu, Optimization of 200 kw Medical Isotope Production Reactor Design, Nuclear Power Institute of China, Sichuan Nuclear Society, China, September 2008.

[5] N. Ayoobian, M. Rayarmanesh, Criticality Calculation of a Aqueous Homogeneous Solution Reactor (AHSR) Core at Steady State, University of Isfahan, M.S. thesis, October 2016.