

امکان سنجی تولید رادیوایزوتوپ مولیبدن ۹۹ توسط پرتو دهی نمونه مایع سولفات اورانیل و سولفات توریم در راکتور تحقیقاتی ۵ MW تهران به روش محاسبات کد MCNPX2.7.0

غلامزاده، زهره* - داوری، امین - جزء وزیری، عطیه - میروکیلی، سید محمد

سازمان انرژی اتمی، پژوهشکده راکتور و ایمنی هسته ای

چکیده:

امروزه استفاده از روش های مختلف برای تولید رادیوایزوتوپ مولیبدن ۹۹ مورد توجه خاص کشورهای دارای فن-آوری هسته ای قرار گرفته است. در این پژوهش برای اولین بار امکان سنجی تولید مولیبدن ۹۹ با استفاده از تابش دهی هدف سولفات اورانیل طبیعی در راکتور تحقیقاتی تهران مورد بررسی قرار گرفته است. تاثیر غلظت های مختلف اورانیوم در محلول و استفاده از اورانیوم طبیعی، غنی شده و یا توریم بر بهره تولید مولیبدن ۹۹ بررسی شد. پروفایل دمای محلول محاسبه شد. نتایج حاصل از کد شبیه سازی MCNPX2.7.0 نشان می دهد بازده تولید پرتو دهی سولفات اورانیل طبیعی ^{235}U $176/5 \text{ Ci/g}$ است و بیک دمای محلول ضمن تابش دهی حدود 48°C است.

کلمات کلیدی: سولفات اورانیل، تولید رادیوایزوتوپ مولیبدن ۹۹، راکتور تحقیقاتی تهران، کد MCNPX2.7.0

مقدمه:

رادیوایزوتوپ ^{99}Mo نقش حیاتی در تصویربرداری پزشکی هسته ای دارد. تولید ^{99}Mo توسط شکافت ^{235}U دارای غنای بالا در راکتور تحقیقاتی صورت می پذیرد که به عنوان یک روش با بالاترین عملکرد تولید شناخته شده است. استفاده از تابش دهی این هدف های جامد دارای غنای بالا و یا کم (HEU یا LEU) در راکتور هر چند که مزیت تولید میزان زیاد رادیوایزوتوپ مورد نظر را دارد، به دلیل طولانی بودن فرایند انحلال هدف جامد پرتو دیده، هزینه زیاد بازآوری اورانیوم غنی شده از پسمان و هزینه بالای ساخت اینگونه هدف های جامد مورد بازبینی مجدد قرار گرفته است.

فکر طراحی یک راکتور هسته ای که سوخت با کندکننده آن کاملاً مخلوط است چندان سخت و ناآشنا نیست. از جمله این طرح ها اوایل سال ۱۹۴۰ در پروژه منهن در نظر گرفته شد. در راکتور همگن آبی (AHR) از ترکیبات اورانیوم که در آب محلول هستند، استفاده می شود. در سال های ۱۹۴۰ تا ۱۹۵۰، آزمایشگاه ملی لوس آلاموس (LANL) تحقیق در مورد استفاده از AHR را برای تولید برق با پنج راکتور تجربی شناخته شده به عنوان LOPO, HYPO, SUPO, LAPRE-1, و LAPRE-2 انجام داده است. راکتور LOPO یک راکتور با توان پایین بود که سوخت سولفات اورانیل را مورد استفاده قرار می داد، در حالی که راکتورهای HYPO و SUPO توان خروجی بالاتر داشتند و از سوخت نیترات اورانیل استفاده می کردند.

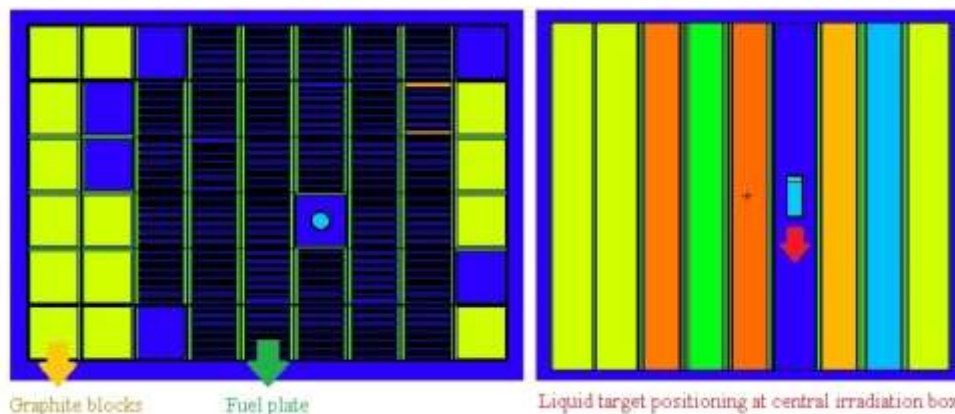
راکتورهای LAPRE-1 و LAPRE-2 اکسید اورانیوم مخلوط با اسید فسفریک غلظت بالا را استفاده می کردند [۱]. لذا با توجه به تجربه موفق این راکتورها روش پرتودهی هدف های مایع سولفات اورانیل و یا نیترات اورانیل در راکتور تحقیقاتی می تواند چندین مزیت را در مقایسه با هدف های جامد دربر داشته باشد که عبارتند از:

- ۱- هزینه کم ساخت هدف
- ۲- امکان برداشت همزمان چندین محصول (^{99}Mo و ^{89}Kr ، ^{133}Xe)
- ۳- امکان استفاده مجدد هدف مایع پس از اولین پرتودهی و برداشت محصول
- ۴- تولید پسمان رادیواکتیو بسیار کمتر

بنابراین در این کار امکان‌سنجی استفاده از پرتودهی هدف مایع در راکتور تحقیقاتی تهران به منظور تولید رادیوایزوتوپ های مختلف مورد بررسی قرار گرفته است.

روش کار :

هدف های مایع سولفات اورانیل طبیعی و غنی شده و نیز سولفات توریم توسط کد MCNPX 2.7.0 شبیه سازی شدند [۲]. به این منظور از یک قوطی آلومینیومی با ابعاد نمونه های مورد استفاده در راکتور تهران (استوانه: $2/5 \times 7 \text{ cm}$) استفاده شده است (شکل ۱). همچنین بررسی بهره تولید رادیوایزوتوپهای مختلف با استفاده از محلولهای مختلف سولفات اورانیل با غنای ۲۰٪، سولفات اورانیل طبیعی و سولفات توریم با استفاده از کد محاسباتی MCNP انجام شده است. در ابتدا فقط 1 cm از ارتفاع ظرف آلومینیوم هوا در نظر گرفته شد و بقیه ظرف با مایع مورد نظر پر گردید.



شکل ۱- سطح مقطع قرارگیری نمونه در کانال پرتودهی مرکزی TRR

سپس با استفاده از کد محاسباتی MCNPX گرمای تولید شده در هدف با استفاده از تالی F6 و بهره تولید رادیوایزوتوپهای مختلف با استفاده از کارت Burnup محاسبه شد. در بخش بعدی کار، نیمی از ظرف هوا

در نظر گرفته شد و علاوه بر محاسبات قبل میزان اکتیویته ظرف آلومینیوم و مایع پس از زمان معین پرتو دهی و خنک شونده‌گی محاسبه گردید. با توجه به طیف گامای محلول پرتو دیده و ظرف آلومینیوم و نیز اکتیویته آنها مقدار دز بدنه ظرف بدون حفاظ سربی و با حضور حفاظ سربی محاسبه گردید. با استفاده از کد FLUENT پروفایل دمایی نمونه مایع انتخاب شده محاسبه گردید.

نتایج :

طبق محاسبات انجام شده در مورد محلول سولفات اورانیل با غنای ۲۰٪، افزایش غلظت باعث افزایش خطی توان حاصل از شکافت خواهد شد (شکل ۲). استفاده از مقدار ۱۰ گرم بر لیتر منجر به تولید توان حاصل از شکافت حدود ۲۵۰ وات خواهد شد. طبیعی است که توان بیشتر به معنای بهره بیشتر تولید رادیوایزوتوپها است. در این پژوهش غلظتی که منجر به تولید توان کمتر از ۱۵ وات شود، مدنظر قرار گرفته است. زیرا در

کانال مرکزی

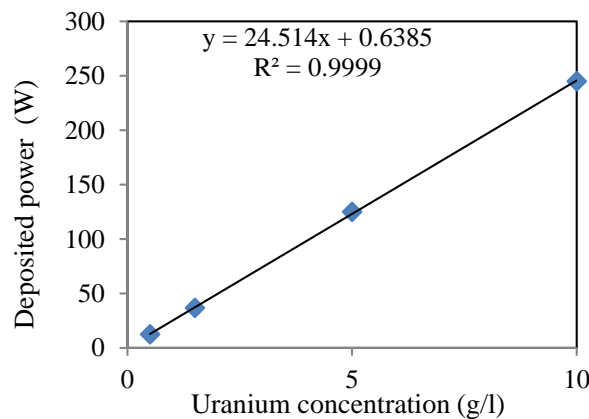
سیستم

ترموهیدرولیک و

یا دبی خنک کننده

خاصی وجود

ندارد.



شکل ۲- بررسی وابستگی توان تولید شده حاصل از شکافت به غلظت اورانیوم محلول در مایع سولفات اورانیل با غنای ۲۰٪

محاسبات نشان می دهد تنها با استفاده از ۰/۵ گرم بر لیتر اورانیوم دارای ۲۰٪ غنا می توان محلول سولفات اورانیلی تهیه کرد که توان حاصل از شکافت محلول حدود ۱۲/۵ وات شود. با استفاده از قوطی آلومینیومی مخصوص تابش دهی، محلول با حجم حدود ۳۰ cm³ به تنها ۰/۰۲۳ گرم نمک سولفات اورانیل نیاز دارد. در

صورت استفاده از اورانیوم طبیعی، ۰/۴۵۳ گرم نمک سولفات اورانیل می تواند توان ۹/۵۸ وات را در محلول ایجاد کند یعنی تنها ۰/۳ گرم اورانیوم طبیعی به این منظور لازم است (جدول ۱).

جدول ۱- بررسی توان تولید شده حاصل از شکافت در محلولهای سولفاتی مختلف

Fuel type	Dissolved salt (g)	U (g/l)	²³⁵ U (g/l)	Solution deposited heat (W)	Error (%)	Clad deposited heat (W)	Error (%)	²³⁵ U (g)
20%-Enriched UO_2SO_4	0.023	0.5	0.1	12.5	1.2	0.81	0.9	0.003
Nat UO_2SO_4	0.270	5.0	1.0	4.75	0.6	0.75	0.6	0.030
	0.453	10.0	2.0	9.58	0.5	0.76	0.5	0.060
Nat $Th(SO_4)_2$	0.538	10.0	—	0.10	0.5	0.74	0.5	—
	10.76	200.0	—	1.34	0.5	0.76	0.5	—

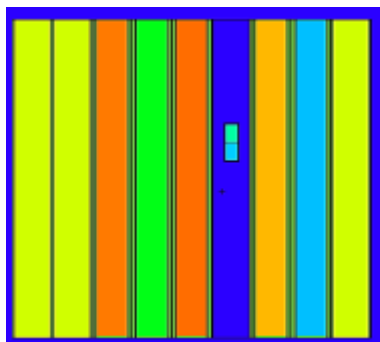
محاسبات مصرف سوخت موارد بررسی شده در جدول ۲ ارائه شده است. محاسبات نشان می دهد که پس از ۷ روز تابش دهی محلولهای مختلف حدود ۵۰۰ میلی کوری مولیبدن ۹۹ در محلول سولفات اورانیل با غنای ۲۰٪ تولید می شود، با تابش دهی محلول سولفات اورانیل طبیعی، این مقدار به حدود ۳۵۰ میلی کوری می رسد. استفاده از سولفات توریم طبیعی نیازمند حضور توریم با غلظت بسیار زیاد در محلول است که تنها ۲۵ میلی کوری مولیبدن ۹۹ در پایان سیکل تولید خواهد شد.

جدول ۲- مقایسه میزان تولید رادیوایزوتوپهای مختلف در محلولهای سولفاتی پس از ۷ روز تابش دهی

	⁹⁹ Mo (Ci)	¹³¹ I (Ci)	¹³³ Xe (Ci)
U: 0.5 g/l, 20%-Enriched UO_2SO_4	0.508	0.127	0.348
U: 10 g/l, Nat UO_2SO_4	0.353	0.091	0.246
Th: 200 g/l, Nat $Th(SO_4)_2$	0.025	0.010	0.027

در پایان سیکل ۷ روز کاری راکتور تحقیقاتی تهران در توان ۴ MW، بازده تولید ⁹⁹Mo با پرتو دهی سولفات اورانیل طبیعی ²³⁵U Ci/g-۱۷۶/۵، با استفاده از محلول دارای اورانیوم-۲۳۵ با غنای ۲۰٪ بازده تولید Ci/g-²³⁵U ۱۷۳/۹۲ و با استفاده از محلول سولفات توریم طبیعی بازده تولید Ci/g-²³⁵U ۳/۰۵ خواهد بود.

محاسبات نشان می دهد در صورتیکه از محلول سولفات اورانیل طبیعی استفاده شود و فقط نیمی از قوطی آلومینیومی با محلول پر شود (شکل ۳)، با جابجایی نمونه در راستای محوری توان جایگزیده در محلول سولفات اورانیل طبیعی در بردارنده ۱۰ گرم بر لیتر اورانیوم از ۴/۸۷ تا ۵/۳۷ وات تغییر می کند (جدول ۳).



شکل ۳- قرارگیری محلول سولفات اورانیل در کانال پرتودهی مرکزی

جدول ۳- مقایسه شار نوترون در محلول سولفات اورانیل طبیعی قرار گرفته در مکان های مختلف محوری کانال پرتودهی مرکزی

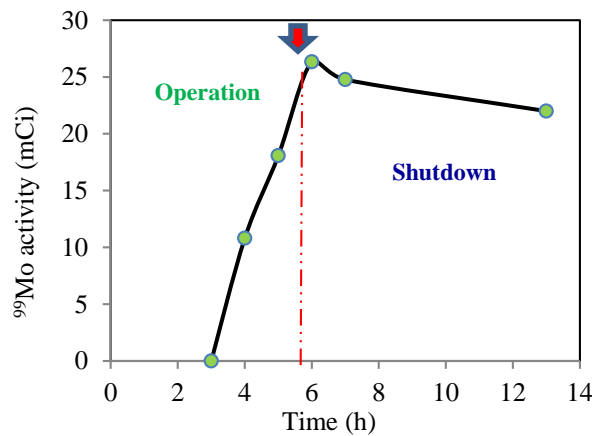
Center of liquid sample of core center (cm)	Deposited power (W)	Thermal flux	Fast flux
5.25	4.87	5.89E+13	3.41E+13
3.5	5.37	6.50E+13	3.65E+13
1.75	5.12	6.72E+13	3.87E+13
-1.75	5.21	6.96E+13	3.93E+13
-3.5	5.11	6.83E+13	3.83E+13

محاسبات مصرف سوخت نمونه سولفات اورانیل طبیعی شکل ۳ در توان ۴ MW قلب راکتور تهران نشان می دهد پس از ۶ ساعت پرتودهی و ۶ ساعت خنک شوندگی، بهره تولید مولیبدن ۹۹ حدود ۲۲ میلی کوری است. همچنین دز ظرف محتوی محلول بدون حفاظ سربی ۱/۰۳ Sv/h خواهد بود (جدول ۴).

جدول ۴- بررسی بهره مولیبدن ۹۹ در محلول سولفات اورانیل طبیعی با توان ۵/۳۷ وات حاصل از شکافت

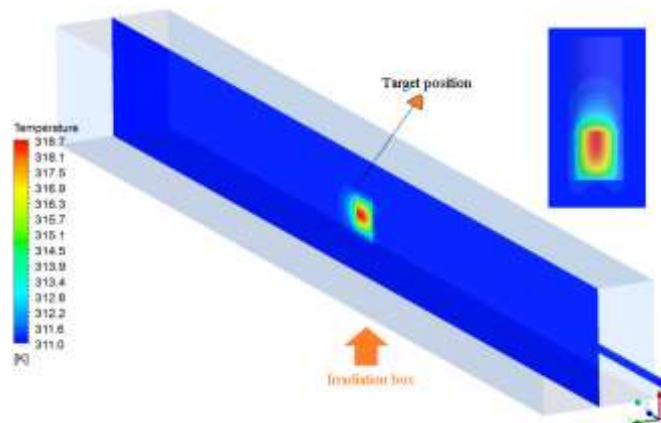
جایگزیده در محلول

Time (h)	irradiation			cooling	
	1	2	6	1	6
⁹⁹ Mo activity (Ci)	ND	ND	2.42E-02	2.40E-02	2.26E-02
Total activity of sample + aluminum can (Ci)	3.19E+02	3.18E+02	3.19E+02	4.06E+00	1.68E+00
Total activity of aluminum can (Ci)	3.10E+02	3.06E+02	3.06E+02	6.73E-01	4.86E-01
Dose rate without shield (Sv/h)					1.03E+00
Dose rate with lead shield (Sv/h)					2.31E-01



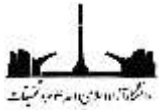
شکل ۴- نمودار تغییر اکتیویته مولیبدن ۹۹ تولید شده در محلول سولفات اورانیل در طی زمان تابش دهی و خاموشی راکتور

نتایج کد FLUENT نشان داد داغ ترین نقطه هدف مایع ضمن تابش دهی دارای دمای حدود 48°C است.



شکل ۵- پروفایل دمای هدف مایع ضمن پرتو دهی در کانال مرکزی راکتور

از آنجاییکه طیف نوترون راکتور آب سبک استخری مورد بررسی قرار گرفته بیشتر حرارتی است، استفاده از سولفات توریوم نمی تواند به صورت موثر برای تولید رادیوایزوتوپهای مختلف بکار گرفته شود. استفاده از غلظت بالاتر اورانیوم محلول در هدف مایع نیاز به استفاده از اورانیوم غنی شده را حذف می کند. استفاده همزمان از چندین هدف مایع و استفاده از ۴ کانال پرتو دهی بدون طراحی سیستم انتقال حرارت در کانال ها می تواند منجر به تولید حدود 6 Ci مولیبدن ۹۹ در پایان سیکل کاری راکتور گردد. تغییر شکل ظرف دربردارنده مایع و افزایش نسبت سطح به حجم منجر به بهبود انتقال حرارت و بهره تولید خواهد شد. با این روش می توان به بهره حدود 60 Ci تنها با استفاده از یک کانال پرتو دهی نائل گردید [۳]. طراحی ترموهیدرولیک کانال پرتو دهی می تواند امکان استفاده از غلظت بالاتر اورانیوم محلول و در نتیجه افزایش بهره تولید را تنها با استفاده از یک کانال و یک ظرف محتوی نمونه مایع فراهم آورد. استفاده از این روش



بازده بسیار بالاتری را نسبت به روش $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ با بازده $2\text{ Ci/g-}^{98}\text{Mo}$ در شار 10^{14} n/s.cm^2 ایجاد خواهد کرد [۴]. همچنین این بازده بیشتر از استفاده از هدف های جامد (^{235}U Ci/g-۱۰۰-۸۰) است [۵].

بحث و نتیجه گیری :

جایگزینی هدف سولفات اورانیل و یا نیترات اورانیل بجای هدف های LEU جامد متداول می تواند به دلیل مزایای خاصی از جمله ارزان تر بودن قیمت هدف، امکان استفاده مجدد پس از برداشت محصول، تولید پسمان کمتر و امکان برداشت همزمان چندین رادیوایزوتوپ به صورت جذابی دنبال شود. نتایج این کار پیش بینی کرده است استفاده از سولفات اورانیل طبیعی به خوبی می تواند بخشی از نیاز کشور را برای تولید مولیدن ۹۹ برآورده سازد. بهبود ترموهیدرولیک و هندسه هدف مایع می تواند بهره تولید را تا حد قابل قبولی افزایش دهد که در کارهای آینده هدف بررسی قرار گرفته است.

مراجع :

1. Vega R, Design of a subcritical aqueous target system for medical isotope production an undergraduate research scholars thesis submitted to honors and undergraduate research Texas A&M university, 2014.
2. Pelowitz DB (2008) Users' manual versión of MCNPX2.6.0, LANL, LA-CP-07-1473
3. Gholamzadeh Z, Mirvakili SM, Davari A, Alizadeh M, Joz-Vaziri A Potentially investigation of ^{99}Mo production via UO_2SO_4 liquid target irradiation in a 5 MW research reactor, NUKLEONIKA, 2016, under publication
4. Ulli Köster, Present day production of ^{99}Mo and alternatives, Institut Laue Langevin, Grenoble, (2011)
5. Juan Esposito, Proposal for a new experimental project APOTEMA Accelerator-driven Production Of Technetium/Molybdenum for medical Applications, (2011)