

برآورد اکتیویته و جرم تولیدی رادیونوکلید کالیفرنیم-۲۵۲ با استفاده از نرم‌افزار

ORIGEN

INC29-1122

محمد فنادی مراغه^۱، احسان بوستانی^۲، امیر چرخ‌ی^۱، ساره عماری اله‌یاری^{۱*}، فاضل ضحاک‌فر^۱

۱. پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، ۸۳۶-۱۴۳۹۵، تهران- ایران

۲. پژوهشکده راکتور و ایمنی هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، صندوق پستی ۱۴۳۹۵۵۹۳۳، تهران، ایران

چکیده:

رادیونوکلید بارزش کالیفرنیم-۲۵۲ با نیمه‌عمر ۲/۶ سال یکی از عناصر ترانس اورانیوم است که کاربردهای فراوانی دارد. مهم‌ترین کاربرد صنعتی آن چشمه نوترون است. در این تحقیق با استفاده از نرم‌افزار ORIGEN میزان اکتیویته و جرم تولیدی آن از منابع مختلف برآورد شده است. منابع شامل، سوخت‌های پرتودیده راکتور تهران، پرتودهی هدف در راکتور تهران (اورانیوم تهی شده: ۹۹/۷٪ وزنی اورانیوم-۲۳۸)، پرتودهی هدف کوریمی در راکتور تهران و همچنین سوخت‌های پرتودیده در راکتورهای متداول ۳۶۰ و ۱۰۰۰ مگاواتی می‌باشند. نتایج نشان داد که اکتیویته و جرم تولیدی حاصل از سوخت‌های پرتودیده راکتورهای تهران، راکتور ۳۶۰ مگاواتی و همچنین هدف اورانیومی تهی شده بسیار ناچیز است. در این میان بهترین روش تولید کالیفرنیم-۲۵۲، استحصال آن از یک راکتور قدرت ۱۰۰۰ MW است، بطوریکه میزان کالیفرنیم تولیدی به حدود ۳۵ میکروگرم خواهد رسید. این در حالی است که پرتودهی کوریوم استحصال شده از سوخت پرتودیده راکتور ۱۰۰۰ مگاواتی در راکتور تحقیقاتی تهران منجر به تولید ۰/۱ میلی‌گرم از این رادیونوکلید می‌گردد.

کلیدواژه‌ها: اکتیویته، کالیفرنیم-۲۵۲، راکتور تحقیقاتی تهران، نرم‌افزار ORIGEN

Activity and mass estimation of ²⁵²Cf radionuclide using ORIGENMohammad Ghannadi¹, Ehsan boustani², Amir Charkhi¹, Sareh Ammari Allahyari^{1*},
Fazel Zahakifar¹1. Nuclear fuel cycle research school, Nuclear Science and Technology Research Institute, P.O.BOX:
1439955933, Tehran, Iran2. Reactor and nuclear safety research school, Nuclear Science and Technology Research Institute,
P.O.BOX: 1439955933, Tehran, Iran

Abstract:

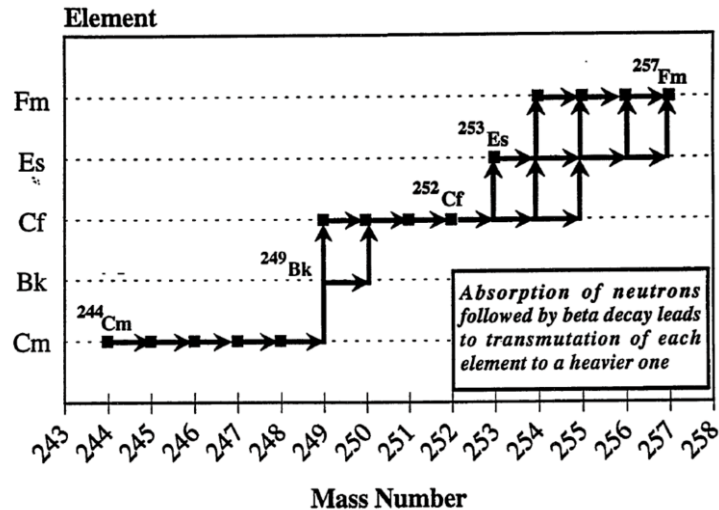
californium-252 as a valuable radionuclide of trans-uranium isotopes with a half-life of 2.6 has many applications which mostly used as a neutron source in industry. In study, the amount of activity and mass of ²⁵²Cf produced from different sources (irradiated fuels of the Tehran, typical 1000 and 360 MW reactors, uranium target (99.7% by weight of uranium-238) and Curium target in Tehran reactor) have been estimated using the ORIGEN software. The results showed that the activity and mass produced from the irradiated fuels of Tehran, typical 360 MW reactor, as well as the depleted uranium target, are very insignificant. The best way of californium-252 production among these sources, is to extract it from a typical 1000 MW reactor with the mass production of Cf about 35 microgram. However, the irradiation of Curium extracted from the typical 1000MW in the Tehran research reactor leads to the production of 0.1 mg of ²⁵²Cf.

Keywords: Activity, ²⁵²Cf, Tehran research reactor, ORIGEN.

۱. مقدمه

عناصر ترانس اورانیوم شامل عناصر با عدد اتمی بالاتر از ۹۲ هستند این عناصر نسبت به اورانیوم تعداد بیشتری پروتون در هسته خود دارند و همگی پرتوزا می‌باشند. نپتونیم و پلوتونیوم به‌طور طبیعی وجود دارند اما عناصر دیگر طی واکنش‌های هسته‌ای به دست می‌آیند. کالیفرنیم (Cf) با عدد اتمی ۹۸ یکی از چگال‌ترین عنصرهای جهان است. این عنصر برای اولین بار در سال ۱۹۵۰ در آزمایشگاه ملی لارنس برکلی (سپس آزمایشگاه کاربرد پرتو دانشگاه کالیفرنیا) با بمباران کوریم با ذرات آلفا ساخته شد. رادیونوکلید ^{252}Cf دارای نیمه‌عمر فروپاشی آلفا ۲/۶ سال و نیمه‌عمر شکافت خود به خودی ۸۵ ساله است که یک چشمه نوترون تلقی می‌شود که هر گرم آن تعداد $10^{12} \times 2/3$ نوترون در ثانیه گسیل می‌کند. این ایزوتوپ برای تأمین نوترون‌ها در کاربری‌های مختلف تحلیل فعال‌سازی نوترونی شامل اکتشاف معدنی و پایش چاه‌های نفت استفاده می‌شود. این ایزوتوپ همچنین در رادیوگرافی نوترون، آشکارسازی مواد نیتروژن‌دار (مواد منفجره) در فرودگاه‌ها و پرتودهی تومورهای که امکان استفاده از گاما برای آن‌ها خیلی مؤثر نیست، به کار می‌رود. مهمترین کاربرد صنعتی کالیفرنیم-۲۵۲، استفاده به‌عنوان چشمه در راکتورهای هسته‌ای است [۹-۱]. قیمت هر گرم کالیفرنیم-۲۵۲، ۲۷ میلیون دلار ذکر شده است و این عنصر دومین ماده گران‌قیمت دنیاست. این رادیونوکلید هنگام مطالعه مواد با استفاده از پراش نوترون و طیف‌سنجی نوترون به‌عنوان چشمه قوی نوترون استفاده شود [۹]. همچنین در سنتز هسته‌های عناصر دارای جرم بالاتر نیز مورد استفاده قرار می‌گیرد. بمباران تارگت ^{242}Cm در حد میکروگرم با یون هلیوم (با انرژی ۳۵ MeV) در سیکلوترون ۶۰ اینچی اولین روش تهیه کالیفرنیم بود. در این واکنش، ^{244}Cf توسط واکنش $(\alpha, 2n)$ تولید شده که عمدتاً با انتشار آلفا واپاشی می‌کند. از اواسط دهه ۱۹۶۰ کالیفرنیم در راکتورهای هسته‌ای مخصوص (به‌عنوان مثال HFIR در آزمایشگاه ملی اوک‌ریچ) تولید شده است. اخیراً هدف‌های داخلی عمدتاً از ایزوتوپ‌های کوریم-۲۴۴ تا کوریم-۲۴۸ تشکیل شده‌اند که با تابش نوترون در راکتور برای تولید ایزوتوپ‌های کالیفرنیم ^{249}Cf تا ^{255}Cf (به‌عنوان ایزوتوپ عمده) تولید می‌شوند. HFIR واقع شده در آزمایشگاه ملی اوک‌ریچ می‌تواند در حال حاضر حداکثر ۰/۵ گرم ^{252}Cf (همراه با سایر ایزوتوپ‌های کالیفرنیم) در سال تولید کند. با استفاده از راکتورهای بزرگ‌تر، می‌توان این مقدار را افزایش داده و چندین گرم ^{252}Cf در سال تولید کرد. راکتور ایزوتوپی با شار بالا^۱ با استفاده از پرتودهی اهداف اکسید کوریم، عناصر ترانس‌پلوتونیوم تا ^{257}Fm را تولید می‌کند. این تبدیل عنصری شامل دو فرآیند است: (۱) جذب نوترون، که جرم هسته‌ای را یک واحد افزایش می‌دهد و (۲) واپاشی بتا، که باعث افزایش یک واحدی عدد اتمی می‌شود. به‌عنوان مثال، ^{244}Cm با جذب یک نوترون به ^{245}Cm تبدیل می‌شود، سپس ^{245}Cm یک نوترون را جذب می‌کند تا به ^{246}Cm شود و به همین ترتیب با جذب نوترون تا ^{249}Cm تولید می‌شوند. جذب نوترون در این نقطه از زنجیره تا حد زیادی با واپاشی بتا جایگزین می‌شود، زیرا نیمه‌عمر ^{249}Cm به اندازه کافی کوتاه است (۶۴/۲ دقیقه) و این امر به اکثر هسته‌های ^{249}Cm اجازه می‌دهد تا قبل از جذب یک نوترون و تبدیل به ^{250}Cm ، یک ذره بتا آزاد کرده و تبدیل به ^{249}Bk شوند. ^{249}Bk تشکیل شده توسط فروپاشی بتا یک نوترون جذب کرده و به ^{250}Bk تبدیل می‌شود که نیمه‌عمر آن برای واپاشی بتا ۳/۲ ساعت است. واپاشی ^{250}Bk مطابق شکل ۱ منجر به تشکیل ^{250}Cf و دیگر ایزوتوپ‌ها می‌شود [۱۰]. در این مطالعه میزان تولید رادیونوکلید کالیفرنیم-۲۵۲ در سوخت پرتودیده راکتور تحقیقاتی تهران، راکتورهای متداول ۳۶۰ و ۱۰۰۰ مگاوات و همچنین تولید از کوریوم پرتودهی شده بررسی شده است و با توجه به بررسی‌های صورت گرفته بهترین روش تولید مدنظر قرار گرفته است.

¹ High Flux Isotope Reactor, HFIR



شکل ۱. مسیر تبدیل عنصری در راکتور ایزوتوپی با شار بالا

۲. روش کار

کدهای متعددی از جمله MCNPX، ORIGEN و CINDER برای محاسبات مصرف سوخت استفاده می‌گردد. در اینجا با استفاده از کد ORIGEN نسخه ۲/۱ محاسبات مربوط به محصولات شکافت انجام می‌شود. این کد مخصوص حل معادلات تولید و مصرف سوخت هسته‌ای، واپاشی و بررسی میزان مواد پرتوزا به صورت تابعی از زمان (معادله بیتمن^۲) است. در این کد از روش ماتریس نمایی برای حل دستگاه معادلات دیفرانسیل مرتبه اول خطی با ضرایب ثابت و از داده‌های کتابخانه‌های هسته‌ای استفاده می‌شود. مسائل در این کد، برخلاف کد MCNP، به صورت نقطه‌ای و دینامیک بررسی می‌شوند. به عبارتی، هندسه چینش قلب راکتور در این کد مدنظر قرار نگرفته و کل مجموعه جرم (سوخت و نمونه) به عنوان ورودی در آن تعریف می‌شود. فایل ورودی شامل مواردی چون اندازه توان راکتور، وزن سوخت و درصد انواع ترکیبات و زمان تحت تابش و نوع راکتور است و در فایل خروجی اطلاعات مذکور جهت محاسبه و تعیین جرم و اکتیویته اکتیویته‌ها و دختر هسته‌های آن‌ها، پاره‌های شکافت و محصولات فعال‌سازی به بکار گرفته می‌شود.

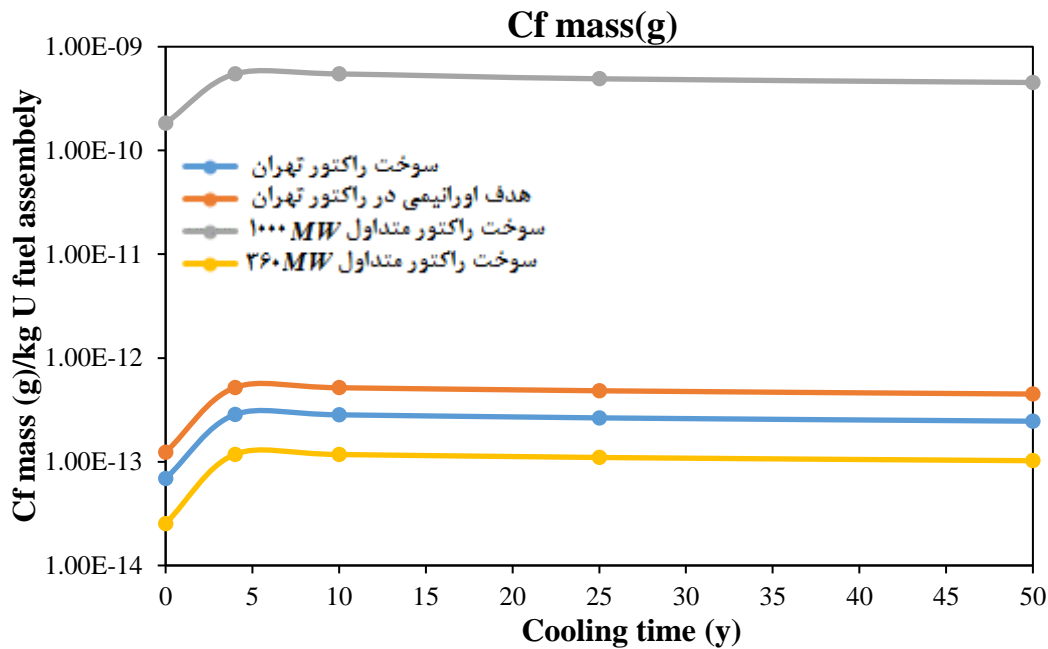
تولید رادیونوکلید ترانس اورانیوم کالیفرنیم-۲۵۲ با استفاده از سوخت‌های پرتودیده راکتورها یا پرتودهی اهدافی درون قلب راکتورها انجام می‌شود. محاسبات تولید این نوکلیدها با استفاده از سوخت‌های پرتودیده راکتور تهران، پرتودهی اورانیوم تهی شده (شامل ۹۹/۷٪ وزنی اورانیوم-۲۳۸) و هدف کوریومی در راکتور تهران و همچنین سوخت‌های پرتودیده راکتورهای متداول ۱۰۰۰ و ۳۶۰ مگاوات، تا ۵۰ سال خنک‌سازی در این مطالعه انجام شده است. لازم به ذکر است که راکتور تهران، یک راکتور تحقیقاتی استخری با توان ۵ مگاوات است.

یکی از اصلی‌ترین روش‌های تولید رادیونوکلید کالیفرنیم-۲۵۲ استحصال کوریوم از سوخت پرتودیده راکتورهای قدرت و سپس پرتودهی کوریوم به دست‌آمده از راکتورهای قدرت با استفاده از نوترون حرارتی است. در این مطالعه مقدار کوریوم به دست‌آمده از راکتور متداول ۱۰۰۰ برای پرتودهی ۱۰۹۱ روز و خنک‌سازی به مدت ۴ سال با استفاده از کد محاسبه شده است.

۳. نتایج

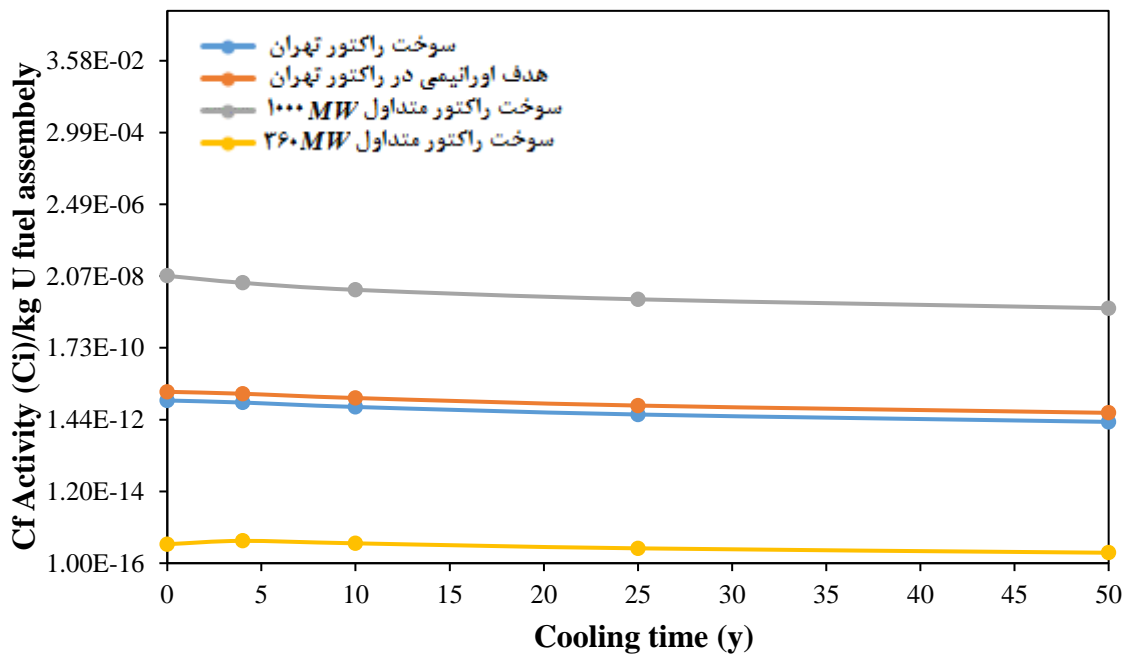
² Bateman

مقایسه میزان اکتیویته و جرم تولیدی رادیونوکلید کالیفرنیوم-۲۵۲ به ازای یک کیلوگرم اورانیوم مصرفی از راکتور تحقیقاتی تهران، هدف اورانیومی پرتودیده، راکتورهای متداول ۳۶۰ و ۱۰۰۰ مگاواتی در شکل‌های ۲ و ۳ آورده شده است.



شکل ۳. جرم کالیفرنیوم-۲۵۲ به ازای جرم ۱ کیلوگرم اورانیوم

Cf Activity (Ci)



شکل ۴. اکتیویته کالیفرنیوم-۲۵۲ به ازای جرم ۱ کیلوگرم اورانیوم

همان‌طور که از نمودارها پیداست، میزان جرم تولیدی این رادیونوکلید در بهترین حالت، کمتر از 10^{-9} گرم است که مقدار بسیار کمی است لذا برای تولید این رادیونوکلید با ارزش باید از روش کوریوم پرتودیده در راکتور تحقیقاتی تهران استفاده نمود که به شرح ذیل است.

مشخصات کوریم به دست آمده پس از پرتو دهی $^{107/3}\text{Cm}$ گرم اکسید کوریم (Cm_2O_3) یک مجتمع سوخت راکتور ۱۰۰۰ مگاواتی و بعد از ۴ سال خنک سازی به شرح جدول ۱ است. اکسید کوریم حاوی ۹/۷۸ گرم کوریم خالص است.

جدول ۱ میزان تولید رادیونوکلیدها پس از پرتو دهی هدف توریمی

| کمیت | مقدار (گرم) | کمیت | مقدار (گرم) | کمیت | مقدار (گرم) |
|-------------------|-------------|-------------------|-------------|-------------------|-------------|
| ^{242}Cm | 1.38E-02 | ^{246}Cm | 4.77E-02 | ^{250}Cm | 1.27E-13 |
| ^{243}Cm | 1.64E-01 | ^{247}Cm | 4.35E-04 | ^{251}Cm | 0.00E+00 |
| ^{244}Cm | 9.25E+00 | ^{248}Cm | 2.17E-05 | O | 0.86 |
| ^{245}Cm | 3.90E-01 | ^{249}Cm | 2.58E-41 | | |

اگر فرض کنیم که کل کوریم سوخت راکتور ۱۰۰۰ مگاواتی را برای تولید کالیفرنیوم-۲۵۲ مورد استفاده قرار دهیم، مقادیر به دست آمده را در تعداد مجتمع‌های سوخت ضرب می‌کنیم تا مقادیر کل کوریم تولیدی به دست آید. همچنین، برای معقول بودن محاسبات فرض می‌کنیم کوریم با بازده جداسازی ۸۰٪ استخراج شده‌اند. جدول ۲ و جدول ۳ به ترتیب مقادیر محاسبات اولیه برای جرم و پرتوزایی کالیفرنیوم-۲۵۲ و برکلیم را برای بازه زمانی پرتو دهی ۷۳۰ روز و خنک سازی تا ۴۸۰ روز نشان می‌دهد. دلیل انتخاب این بازه زمانی به دلیل نیمه عمر حدود ۳ سال ^{252}Cf جهت دستیابی به مقدار بهینه است.

جدول ۲. میزان تولید رادیونوکلیدها بر حسب گرم برای پرتو دهی هدف کوریمی در راکتور تهران

| رادیونوکلید | پرتو دهی در راکتور (روز) | | | | | | | | خنک سازی (روز) | | | | | | | |
|-------------------|--------------------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|----------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|--|
| | ۱۸۰ | ۳۶۵ | ۵۴۵ | ۷۳۰ | ۱۲۰ | ۲۴۰ | ۳۶۰ | ۴۸۰ | ۱۸۰ | ۳۶۰ | ۲۴۰ | ۱۲۰ | ۲۴۰ | ۳۶۰ | ۴۸۰ | |
| ^{249}Bk | 9.379E-05 | 6.291E-05 | 4.260E-05 | 2.853E-05 | 2.200E-05 | 1.697E-05 | 1.308E-05 | 1.009E-05 | 9.389E-05 | 6.291E-05 | 4.260E-05 | 2.853E-05 | 2.200E-05 | 1.697E-05 | 1.308E-05 | |
| Bk | 9.389E-05 | 6.291E-05 | 4.260E-05 | 2.853E-05 | 2.200E-05 | 1.697E-05 | 1.308E-05 | 1.009E-05 | 2.360E-06 | 2.066E-06 | 1.815E-06 | 1.589E-06 | 1.458E-06 | 1.337E-06 | 1.226E-06 | |
| ^{252}Cf | 2.360E-06 | 2.066E-06 | 1.815E-06 | 1.589E-06 | 1.458E-06 | 1.337E-06 | 1.226E-06 | 1.125E-06 | 4.160E-05 | 7.185E-05 | 9.137E-05 | 1.046E-04 | 1.107E-04 | 1.152E-04 | 1.186E-04 | |
| Cf | 4.160E-05 | 7.185E-05 | 9.137E-05 | 1.046E-04 | 1.107E-04 | 1.152E-04 | 1.186E-04 | 1.212E-04 | | | | | | | | |

جدول ۳. میزان پرتوزایی رادیونوکلیدها بر حسب کوری برای پرتو دهی هدف کوریمی در راکتور تهران

| رادیونوکلید | پرتو دهی در راکتور (روز) | | | | | | | | خنک سازی (روز) | | | | | | | |
|-------------------|--------------------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|----------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|--|
| | ۱۸۰ | ۳۶۵ | ۵۴۵ | ۷۳۰ | ۱۲۰ | ۲۴۰ | ۳۶۰ | ۴۸۰ | ۱۸۰ | ۳۶۰ | ۲۴۰ | ۱۲۰ | ۲۴۰ | ۳۶۰ | ۴۸۰ | |
| ^{249}Bk | 9.379E-05 | 6.291E-05 | 4.260E-05 | 2.853E-05 | 2.200E-05 | 1.697E-05 | 1.308E-05 | 1.009E-05 | 9.379E-05 | 6.291E-05 | 4.260E-05 | 2.853E-05 | 2.200E-05 | 1.697E-05 | 1.308E-05 | |
| Bk | 5.449E-01 | 1.031E-01 | 6.983E-02 | 4.678E-02 | 3.607E-02 | 2.782E-02 | 2.145E-02 | 1.654E-02 | | | | | | | | |

1.125E-06 1.226E-06 1.337E-06 1.458E-06 1.589E-06 1.815E-06 2.066E-06 2.360E-06 ²⁵²Cf

2.861E-03 2.936E-03 3.013E-03 3.091E-03 3.169E-03 3.288E-03 3.394E-03 3.583E-03 Cf

۵. نتیجه‌گیری

بررسی‌ها نشان می‌دهد مقدار تولید کالیفرنیم-۲۵۲ با استفاده از راکتور تحقیقاتی تهران، هدف تهی شده اورانیم، سوخت پرتودیده راکتور متداول ۳۶۰ مگاواتی بسیار ناچیز است و در بهترین حالت (راکتور ۱۰۰۰ مگاواتی) مقادیری کم حدود میکروگرم به دست می‌آید. لذا بهترین روش تولید کالیفرنیم-۲۵۲، پرتودهی نوترونی هدف کوریمی به‌دست‌آمده از راکتور ۱۰۰۰ مگاواتی در راکتور تحقیقاتی تهران است که مقادیر در حدود ۰/۱ میلی‌گرم از این رادیونوکلید قابل‌دستیابی است. همچنین میزان تولید عناصر ترانس اورانیم به ازای هر کیلوگرم سوخت اورانیم در قلب راکتور ۱۰۰۰ مگاواتی بیشتر از بقیه گزینه‌ها است. میزان تولید در هدف اورانیمی راکتور تهران پس از ۱۰۰۰ مگاوات دارای بیشترین مقدار است و سوخت راکتور تهران و ۳۶۰ مگاوات در رده‌های بعدی قرار دارند.

۶. تشکر و قدردانی

از آنجاکه کار حاضر نتیجه انجام پروژه برون پژوهشگاهی با شرکت پارس ایزوتوپ است بر خود لازم می‌دانیم از همکاری صمیمانه همکاران آن مجموعه جهت پیشبرد پروژه حاضر تقدیر و تشکر نماییم.

۷. مراجع

- [1] <https://www.britannica.com/science/transuranium-element/Practical-applications-of-transuranium-isotopes>
- [2] Katz, J.J., 2007. The Chemistry of the Actinide and Transactinide Elements (Volumes 1-5) (Vol. 1). Springer Science & Business Media.
- [3] Miguiriditchian, M., Vanel, V., Marie, C., Pacary, V., Charbonnel, M.C., Berthon, L., Hérès, X., Montuir, M., Sorel, C., Bollesteros, M.J. and Costenoble, S., 2020. americium recovery from highly active PUREX raffinate by solvent extraction: the EXAm process. A review of 10 years of R&D. Solvent Extraction and Ion Exchange, 38(4), pp.365-387.
- [4] R. G. Haire, in The Chemistry of the Actinide Elements, Springer, 1986, 1025-1070.
- [5] H. Diamond, L. Magnusson, J. Mech, C. Stevens, A. Friedman, M. Studier, P. Fields, J. Huizenga, Physical Review, 1954, 94 (4), 1083 .
- [6] Y. A. Karelin, Y. N. Gordeev, V. I. Karasev, V. M. Radchenko, Y. V. Schimbarev, R. A. Kuznetsov, Applied radiation and isotopes, 1997, 48 (10-12), 1563-1566 .
- [7] J. John, in Practical Applications of Neutron Radiography and Gaging, ASTM International, 1976.
- [8] Y. Oganessian, Pure and applied chemistry, 2006, 78 (5), 889-904 .
- [9] K. Sanderson. Heaviest element made-again, Nature Publishing Group, 2006
- [10]. Osborne-Lee, Irvin W., and C. W. Alexander. Californium-252: a remarkable versatile radioisotope. No. ORNL/TM--12706. Oak Ridge National Lab., 1995