



## امکان سنجی تولید رادیوایزوتوپ مولیبدن-۹۹ با استفاده از تابش دهی هدف نمک

### مذاب اورانیوم توسط شتابدهنده پروتونی سیکلوترون ۳۰ MeV

زهرة غلامزاده<sup>۱\*</sup> فرخ خوش احوال<sup>۱</sup>

<sup>۱</sup>سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده راکتور و ایمنی هسته‌ای

تاریخ دریافت: ۱۳۹۹/۳/۱۲

تاریخ پذیرش: ۱۳۹۹/۴/۲۴

#### مکیده

استفاده از نمک‌های مذاب فلوراید اورانیوم-توریم در ترکیبات مختلف به طور گسترده‌ای در راکتورهای نمک مذاب انجام شده است. در واقع یکی از مهمترین مزیت این نمک‌های مذاب، دمای ذوب و جوش بسیار بالای آنها است. لذا استفاده از هدف‌های نمک مذاب فلوراید اورانیوم می‌تواند نیاز به انتقال حرارت را در سیستم‌های تولید رادیوایزوتوپ توسط شتابدهنده برطرف سازد. لذا در این کار، بررسی اولیه استفاده از این نمک مذاب به عنوان ماده هدف در شتابدهنده سیکلوترون به منظور تولید رادیوایزوتوپها مختلف انجام گردید. از کد محاسباتی MCNPX و ALICE/ASH جهت محاسبات استفاده شد. نتایج حاصل از این کار نشان می‌دهد. استفاده از این نمک‌های مذاب می‌تواند معضلات انتقال حرارت هدف و محدودیت اعمال جریان باریکه پروتونی بر ماده هدف را برطرف سازد. ضمن اینکه تولید و برداشت محصولات مختلف رادیوایزوتوپ را به طور همزمان فراهم می‌سازد. با بهینه کردن هندسه هدف می‌توان بهره تولید محصولات مختلف شکافت را در ماده نمک مذاب افزایش داد. همچنین استفاده از شتابدهنده می‌تواند وابستگی تولید رادیوایزوتوپهای مورد استفاده پزشکی و صنعت را به راکتورهای هسته‌ای کاهش دهد.

**واژه‌های کلیدی:** کد MCNPX، کد ALICE/ASH، رادیوایزوتوپ، تابش دهی پروتونی، هدف نمک مذاب اورانیوم-فلوراید

#### ۱- مقدمه

مورد استفاده قرار گیرند. مواد شکافت‌پذیر و محصولات شکافت در یک درجه حرارت بالا در نمک فلوراید مذاب با دمای جوش بسیار بالا ( $1400^{\circ}\text{C}$ ) حل می‌شوند. واکنش شکافت Se، Xe، Kr، I<sub>2</sub> و Br<sub>2</sub> را تولید می‌کند که تمام آنها در دمای راکتور نمک مذاب گازی هستند. همچنین تزریق حباب هلیوم درون نمک مذاب می‌تواند گازها، ذرات مه کوچک فلزات بی‌اثر (Pd، Tc، Ru، Rh و Te) و برخی از کلریدهای فرار را جذب کند. سه ترکیب سه تایی NaLiBe<sub>2</sub>F<sub>6</sub> (نقطه

استفاده از راکتورهای نمک مذاب<sup>۱</sup> دارای سابقه طولانی است و مطالعات طراحی اولیه آنها در دهه ۱۹۵۰ در آزمایشگاه ملی اوک ریج صورت پذیرفته است. به لحاظ سنتی این راکتورها به عنوان راکتورهای زاینده حرارتی دارای چرخه سوخت توریم و <sup>233</sup>U و به لحاظ تاریخی رقیب راکتورهای زاینده سریع در نظر گرفته شده‌اند. راکتورهای نمک مذاب، راکتور سوخت مایع هستند که می‌توانند برای سوزاندن اکتینیدها، تولید برق، تولید هیدروژن و تولید سوخت شکافت‌پذیر

پروتونی CYCLONE30 مورد هدف واقع شده است. از آنجائیکه تولید رادیوایزوتوپهای مختلف برای بخش های مختلف پزشکی هسته ای حائز اهمیت است، در این کار به بررسی امکان تولید این رادیوایزوتوپها با استفاده از تابش دهی هدف نمک مذاب فلوراید اورانیوم پرداخته خواهد شد. به جهت کاهش وابستگی ها به راکتورهای هسته ای که هزینه های ساخت و تامین و نگهداری و نیز سوخت آن بسیار بالا است امروزه استفاده از شتابدهنده ها مورد توجه قرار گرفته است. روش های مختلف تولید مولیبدن با استفاده از شتابدهنده ها وجود دارد در جدول ۳ مروری بر این روش ها انجام شده است.

از آنجائیکه سیکلوترون موجود در پژوهشگاه کشاورزی و پزشکی هسته ای کرج دارای قدرت باریکه حداکثر ۶ kW است (جریان حداکثر ۲۰۰  $\mu$ A و انرژی حداکثر ۳۰ MeV) به خوبی می تواند برای تولید مولیبدن-۹۹ بر پایه شتابدهنده مورد استفاده قرار گیرد. همچنین محاسبات انجام شده در مورد هدف های مایع نیترات اورانیل نشان داد اعمال جریان ۱  $\mu$ A باعث دمای  $50^{\circ}\text{C}$  در زمان تابش دهی می گردد. پرواضح است استفاده از جریان ۲ الی ۳ برابر می تواند دمای ماده هدف را تا  $100^{\circ}\text{C}$  (دمای جوش) بالا ببرد (Gholamzadeh, 2016). لذا به جهت افزایش بهره تولید این نیاز احساس می شد که از نمک های مذاب با نقطه ذوب و جوش بالاتر استفاده گردد.

ذوب  $280^{\circ}\text{C}$  درجه سانتیگراد)،  $\text{Na}_2\text{LiBe}_2\text{F}_7$  (نقطه ذوب  $340^{\circ}\text{C}$  درجه سانتیگراد) و  $\text{NaLiBeF}_4$  (نقطه ذوب  $305^{\circ}\text{C}$  درجه سانتیگراد) به عنوان پایه نمک های فلورایدی استفاده می شود. استفاده از لیتیوم در ترکیب نمک می تواند به منظور تولید تریتیوم مورد توجه قرار گیرد (Ottewitte, 1992; Ignatiev, V., 2002). اگر در ترکیب سه تایی نمک مذاب درصد هر یک از مولفه ها تغییر کند، دمای ذوب نمک نیز متفاوت خواهد بود (جدول ۱).

در جدول ۲ انواع ترکیب سوخت و کندکننده نمک مذاب فلورایدی ارائه شده است. همچنین نمک خنک کننده (8-92%)  $\text{NaF-NaBF}_4$  با نقطه ذوب  $385^{\circ}\text{C}$  و نقطه جوش  $694^{\circ}\text{C}$  در حلقه ثانویه راکتور نمک مذاب استفاده می شود که کم هزینه است و نقطه ذوب پایین دارد. ضمن اینکه ممکن است اجازه استفاده از فولاد ضد زنگ در سراسر قلب راکتور را نیز بدون برهمکنش شیمیایی نمک با آن بدهد. نمک خنک کننده (57-43%)  $\text{NaF-BeF}_2$  نیز با دارا بودن نقطه ذوب  $340^{\circ}\text{C}$  و نقطه جوش  $1440^{\circ}\text{C}$  مناسب به نظر می رسد (Ottewitte, 1992). با توجه به موارد بیان شده می توان از نمک های مذاب فلوراید اورانیوم به عنوان هدف در شتابدهنده های پروتونی استفاده نمود تا بتوان بدون نیاز به خنک شوندگی هدف، رادیوایزوتوپهای مختلف را مستقل از راکتور با بهره مناسب تولید کرد. لذا در این کار، بررسی پتانسیل تولید رادیوایزوتوپهای مختلف توسط شتابدهنده

جدول ۱- تغییر دمای نمک مذاب برحسب درصد ترکیبات آن (Ignatiev, V., 2002)

درصد مولی ترکیب	LiF	NaF	BeF <sub>2</sub>	نقطه ذوب ( $^{\circ}\text{C}$ )
(۱)	۷/۱	۶۴/۱	۲۸/۸	۵۰۰
(۲)	۱۴/۳	۵۹/۰	۲۶/۷	۴۸۰
(۳)	۲۲/۰	۵۶/۷	۲۱/۴	۵۰۰

جدول ۲- بررسی انواع مختلف سوخت مذاب (Williams, 2006)

نمک سوخت مذاب	درصد وزنی	نقطه ذوب (C)	نقطه جوش
LiF-ThF <sub>4</sub> - <sup>233</sup> UF <sub>4</sub> , UCl <sub>3</sub> -reactor grade PuCl <sub>3</sub>	(77.5-20-2.5%)	450	1400
LiF-BeF <sub>2</sub> -ThF <sub>4</sub> -UF <sub>4</sub>	72-16-12-0.4 mol.%	—	—
		750	1700

جدول ۳- بررسی روش های مختلف تولید مولیبدن-99 با استفاده از شتابدهنده ها (Bertsche, SLAC)

نوع ذره	شتابدهنده	واکنش	انرژی	قدرت باریکه	ماده هدف	kWh/6-day Ci
پروتون	ADSR	(n, fission)	1 GeV	1 MW	LEU	25
پروتون	ADSR	(n, $\gamma$ )	1 GeV	1 MW	98Mo	50
پروتون	ADSR	(n, fission)	200 MeV	100 kW	LEU	2.5
الکترون	FR LINAC	( $\gamma$ , fission)	50 MeV	1 MW	natU	900
الکترون	FR LINAC	( $\gamma$ , n)	30 MeV <	500 kW	100Mo	170
الکترون	FR LINAC	( $\gamma$ , n)	25 MeV	20 kW	natMo	800
پروتون	CYCLOTRON	(p, pn)	45 MeV	4.5 kW	100Mo	270
پروتون	CYCLOTRON	(p, pn)	45 MeV	4.5 kW	natMo	2700

## ۲- مواد و روشها

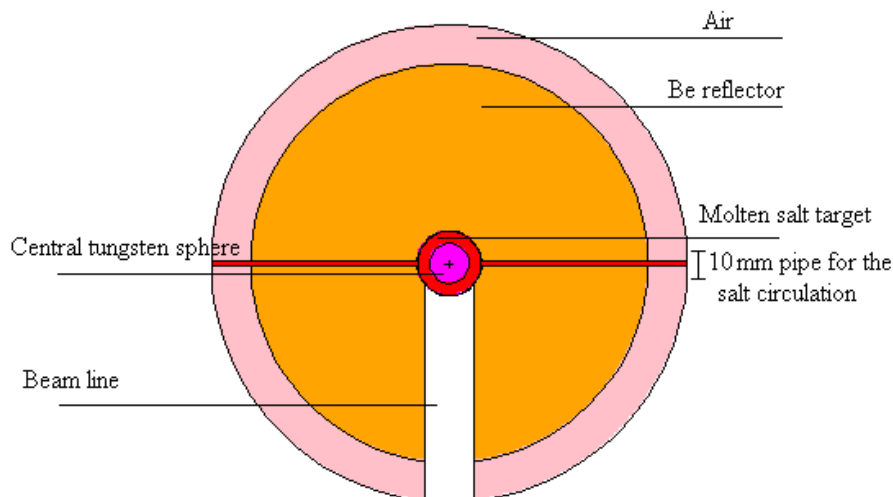
استفاده شد (شکل ۱). برلیوم یک بازتابنده جامد با نقطه ذوب بالا است که قدرت بازتابندگی آن در مقایسه با سایر بازتابنده های نوترونی بالا است. در این کار بازتابنده گرافیت که یک بازتابنده جامد است نیز با برلیوم مقایسه گردید. زیرا برلیوم از گرافیت بسیار گرانتر است و در صورت رفتار نوترونیک بهتر مطلوب است که از گرافیت استفاده شود. ماده تنگستن و استیل به عنوان پنجره برای باریکه پروتونی (دیواره هدف کروی) بررسی گردید و بهره تولید نوترون در آنها و گرمای حاصل از شکافت نوترونی در داخل هدف با انتخاب هر یک از آنها بررسی گردید. لازم به ذکر است در انتخاب ماده پنجره هدف به چند مورد توجه شد (۱) ماده پنجره دارای استحکام بالایی باشد (۲) دمای ذوب آن بالا باشد (۳) انتقال حرارت آن بالا باشد (۴) از مواد سنگین باشد تا بهره تولید نوترون در آن زیاد باشد (۵) ارزان باشد. از آنجائیکه در انرژی 30 MeV واکنش پروتون با این مواد می تواند از نوع اسپالشن فرض گردد زیرا طول موج پروتون کمتر از ابعاد هسته (تنگسن و استیل) می گردد لذا استیل و تنگستن

طبق محاسبات انجام شده توسط کد SRIM حدود 2 mm ضخامت پنجره ماده هدف بر توقف پروتونهای 30 MeV کافی است (برد پروتون در ماده استیل حدود 1/73 mm و در تنگستن حدود 1 mm است). با توجه به موارد بیان شده در قسمت قبل، ترکیب برلیوم-سدیم-توریوم-اورانیوم فلوراید با درصد وزنی ذکر شده برای هر یک از ترکیبات به ترتیب <sup>233</sup>UF<sub>4</sub> (28%)، BeF<sub>2</sub> (60%)، NaF (9.1%)، ThF<sub>4</sub> (2.9%) به عنوان ماده هدف انتخاب گردید تا بتواند نقطه ذوب هدف را کمتر از 500°C نگه دارد. در واقع همان ترکیب نمک سوخت آخر در جدول ۲ انتخاب گردید و بجای فلوراید لیتیوم که جذب نوترون آن بسیار بالا است از فلوراید سدیم استفاده شد (دقت گردد سوخت جدول ۲ درصد مولی و در این قسمت درصد وزنی مواد ذکر شده است). استفاده از کد محاسباتی MCNPX2.6.0 شکل هندسی هدف شبیه سازی شد (Pelowitz, 2008). در این شبیه سازی، هدف به صورت کروی با شعاع 8 cm فرض گردید و از بازتابنده برلیوم برای افزایش بهره شکافت در هدف

محاسبه شد و این عدد به عنوان توان در مد kcode استفاده گردید. بهره تولید رادیوایزوتوپهای مختلف با استفاده از تابش دهی هدف با پروتون 30 MeV و جریان باریکه 200  $\mu\text{A}$  بررسی گردید. از آنجائیکه در این سیستم بنا است نوترون-شکافت در ماده هدف غالب شود و پرواضح است که انرژی بیشتر پروتون می تواند باعث تولید نوترون بیشتر درون پنجره هدف گردد و انرژی بیشینه سیکلوترون موجود 30 MeV است لذا این انرژی انتخاب شد.

انتخاب هندسه کروی ماده هدف به چند جهت مطلوب است (1) حجم ماده فلوراید اورانیوم در این هندسه بیشتر است لذا انتظار افزایش نرخ واکنش نوترون-شکافت را خواهیم داشت در صورتیکه استفاده از ماده هدف درون کره کوچک مرکزی باعث حضور حجم کمتر ماده هدف و در نتیجه نرخ کمتر تولید محصول می گردد (2) انتقال حرارت در چنین سیستمی و نیز گردش سیال آسان تر انجام می شود (3) چنین سیستم هایی در شتابدهنده کرج ساخته شده و مورد استفاده قرار گرفته اند (Gholamzadeh, 2016).

بهترین گزینه برای ماده پنجره هدف می باشند. سطح مقطع تولید نوترون در هر یک از مواد پنجره هدف با استفاده از کد ALICE/ASH محاسبه گردید (Konobeyev, 2006). ضخامتی از دیواره کروی به عنوان هدف انتخاب گردید که نشت پروتون به داخل ماده هدف (نمک مذاب) را به مقدار ناچیز کاهش دهد. با استفاده از کد SRIM می توان میزان ضخامت را بر حسب کاهش انرژی پروتون انتخاب نمود (Ziegler, 2008). محاسبات تولید نوترون، گرمای تولید شده درون هدف به واسطه شکافت، گرمای تولید شده کل درون ماده هدف، توزیع شار نوترون تولید شده و توزیع گرمای تولید شده درون ماده هدف توسط مد nps (تعریف چشمه ثابت با استفاده از کارت SDEF) انجام شد. تعداد 800/000 ذره در مد nps برابر شد تا خطای محاسبات را به کمتر از 0.5% برساند. برای محاسبات مصرف سوخت در ابتدا طیف نوترون در مد nps و kcode (تعریف چشمه بحرانی با استفاده از کارت KCODE) با یکدیگر مقایسه گردید و در صورت همخوانی دو طیف ابتدا توان گرمای حاصل از شکافت که درون هدف بجای مانده است با استفاده از مد nps

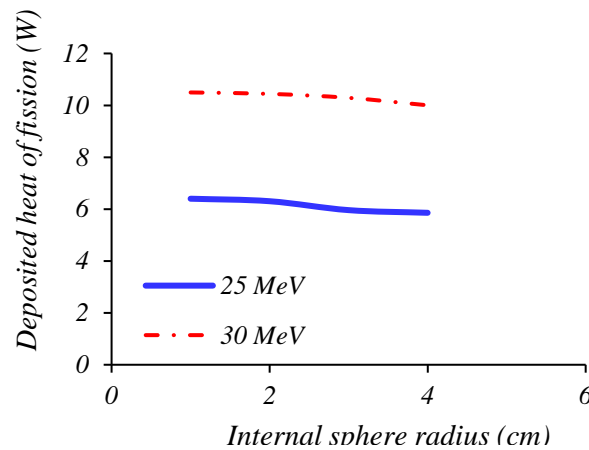


شکل ۱- شماتیک هدف شبیه سازی شده توسط کد MCNPX

### ۳- نتایج

کاهش ضخامت ماده هدف به بهبود انتقال حرارت مناسب باشد و در سایر محاسبات شعاع کره داخلی cm ۵ انتخاب گردید که موجب می شود ضخامت نمک مذاب بین دو کره cm ۳ باشد. محاسبات نشان می دهد با افزایش انرژی پروتون از 25 MeV به 30 MeV، آهنگ شکافت و یا گرمای ناشی از شکافت حدود ۲ برابر می شود. لذا انرژی 30 MeV به عنوان انرژی پرتابه پروتون جهت تولید چشمه نوترون در دیواره کره خارجی متصل به کانال شتابدهنده انتخاب گردید؛ محاسبات در این مرحله با استفاده از دیواره استیل انجام شده است (شکل ۲).

در ابتدا فرض گردید که یک کره توپر با شعاع cm ۵ از جنس دیواره کره فلزی در درون کره خارجی توخالی قرار دارد و مایع نمک مذاب بین این دو کره گردش می کند (شکل ۱). محاسبات انجام شده نشان می دهد در صورتیکه ضخامت کره هدف که cm 30 بازتاباننده گرافیت اطراف آن قرار گرفته است از ۱ تا cm ۴ تغییر کند، گرمای ناشی از شکافت تغییر خاصی نخواهد کرد و به عنوان مثال در انرژی 30 MeV باریکه پروتون، افزایش گرمای ناشی از شکافت (آهنگ شکافت) با تغییر شعاع کره صلب داخلی از cm ۴ به cm ۱ حدود ۴٪ افزایش می یابد. لذا به نظر می رسد

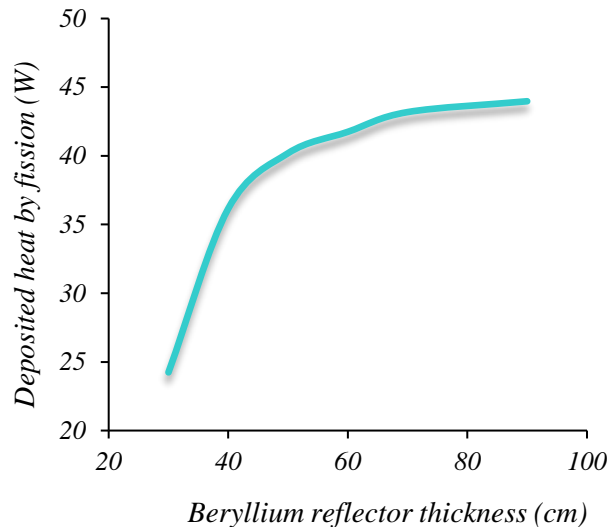


شکل ۲- بررسی وابستگی بهره شکافت درون هدف به شعاع کره صلب داخلی، بدنه و پنجره استیل

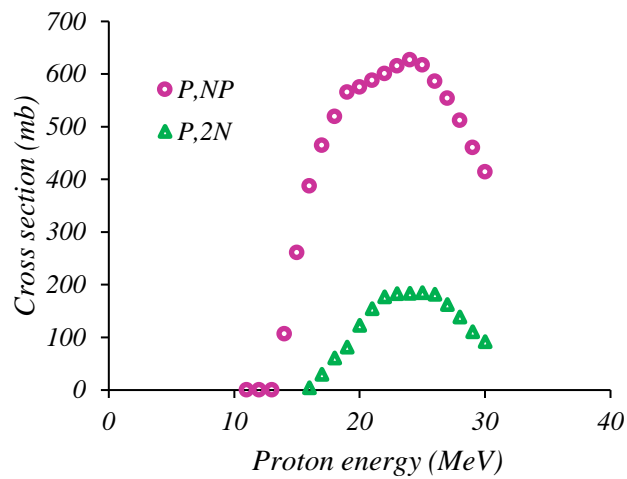
دیواره کره هدف بررسی گردید و محاسبات نشان داد در صورت انتخاب تنگستن آهنگ شکافت نسبت به استیل حدود ۳ برابر در مورد ماده هدف بدون بازتاباننده است. در مورد حضور بازتاباننده گرمای شکافت درون ماده هدف دارای دیواره تنگستنی W 70 و برای دیواره استیل W 33 است که بهره شکافت تقریباً ۲ برابر دیواره استیل است. دلیل این امر این است که طیف نوترون تنگستن نرمتر و سطح مقطع تولید نوترون در آن بیشتر است لذا ماده دیواره کره بزرگ و کره صلب داخلی تنگستن انتخاب گردید (شکل ۴ و ۵).

طبق محاسبات انجام شده جایگزینی برلیوم بجای گرافیت بازده شکافت را حدود ۲/۵ برابر می کند زیرا توان حاصل از شکافت برای شکل هندسی کره داخلی با شعاع cm ۳ و ضخامت بازتاباننده cm 30 از W 10 به حدود W 24 افزایش می یابد. لذا در ادامه بازتاباننده برلیومی بررسی گردید. محاسبات نشان می دهد افزودن یک بازتاباننده برلیومی می تواند آهنگ شکافت را تا حد قابل ملاحظه‌ای افزایش دهد. شکل ۳ نشان می دهد که افزایش ضخامت بازتاباننده از cm 60 به بعد، افزایش قابل توجهی در آهنگ شکافت ایجاد نخواهد کرد لذا ضخامت cm 60 برای بازتاباننده برلیوم انتخاب گردید.

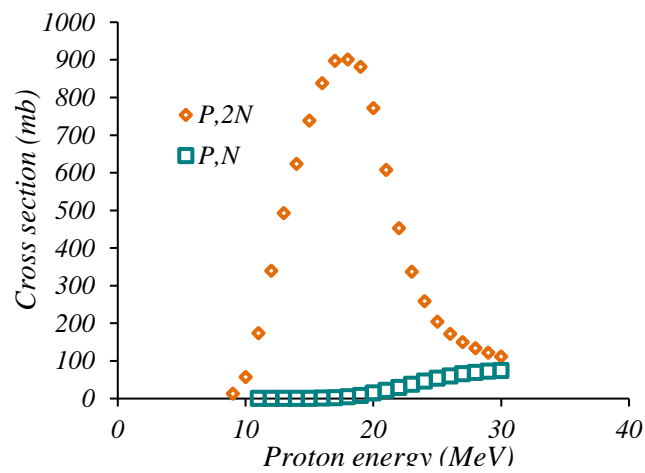
دو ماده مختلف استیل و تنگستن به عنوان ماده



شکل ۳- بررسی وابستگی بهره شکافت درون هدف به ضخامت بازتابنده برلیوم



شکل ۴- بررسی تولید سطح مقطع نوترون درون پنجره استیل

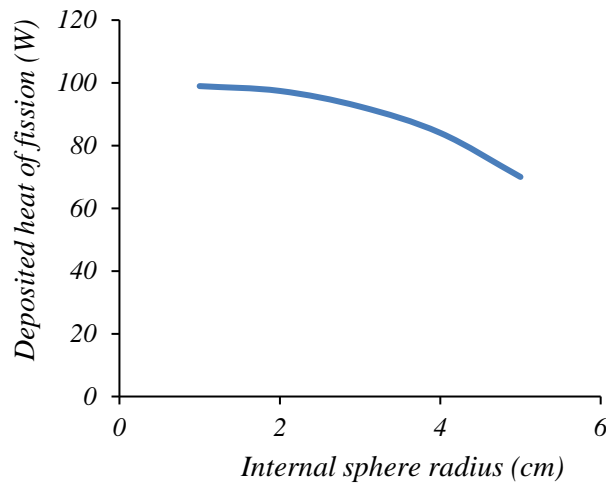


شکل ۵- بررسی تولید سطح مقطع نوترون درون پنجره تنگستن

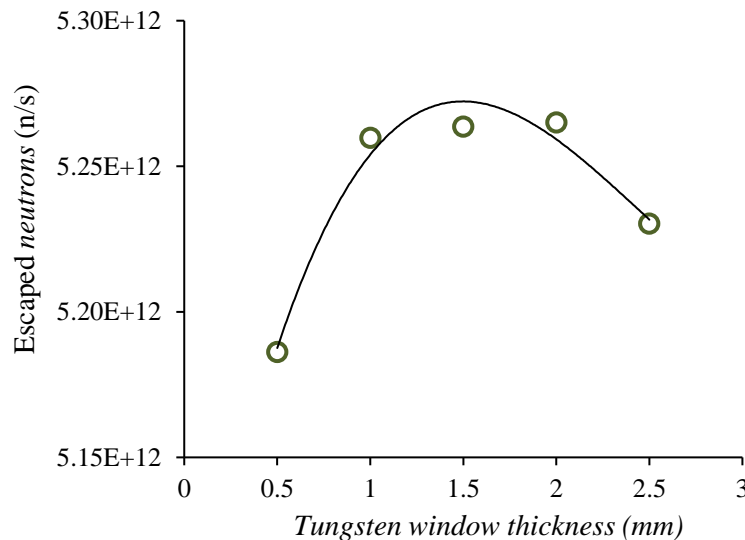
واکنش های ذکر شده در قبل در آن نوترون تولید می کند. محاسبات نشان داد ضخامت ۲ mm باعث تولید بیشترین نوترون نشت یافته از پنجره می گردد. افزایش ضخامت از ۰/۵ mm به ۱ mm نشت نوترون تولیدی را به طور قابل ملاحظه ای افزایش می دهد ولی از ۱ تا ۲ mm افزایش جریان نوترون نشت یافته قابل ملاحظه نیست درحالیکه ضخامت ۲/۵ mm باعث جذب برخی از نوترونهای تولیدی و کاهش جریان نوترون نشت یافته می گردد. لذا به دلیل حصول استحکام مناسب پنجره، ضخامت ۲ mm انتخاب گردید.

محاسبات تغییر شعاع مجدداً با حضور بازتاباننده برلیومی و بدنه تنگستن و پنجره تنگستن تکرار گردید و مشخص شد با تغییر شعاع کره صلب از ۵ cm به ۱ cm حدود ۴۰٪ افزایش آهنگ شکافت رخ خواهد داد (شکل ۶).

در شکل ۷ میزان ضخامت بهینه پنجره تنگستن بررسی شد، همچنانکه محاسبات کد SRIM نشان می داد ضخامت بهینه تقریباً باید در حدود برد پروتونها باشد. طبق محاسبات کد MCNPX جریان نوترون نشت یافته از پنجره با تغییر ضخامت پنجره تنگستن از ۰/۵ mm تا ۲/۵ mm بررسی شد. در این محاسبات پروتون ۳۰ MeV به پنجره برخورد می کند و در اثر



شکل ۶- بررسی وابستگی بهره شکافت درون هدف به شعاع کره صلب داخلی، بدنه و پنجره تنگستن



شکل ۷- بررسی ضخامت بهینه پنجره تنگستن

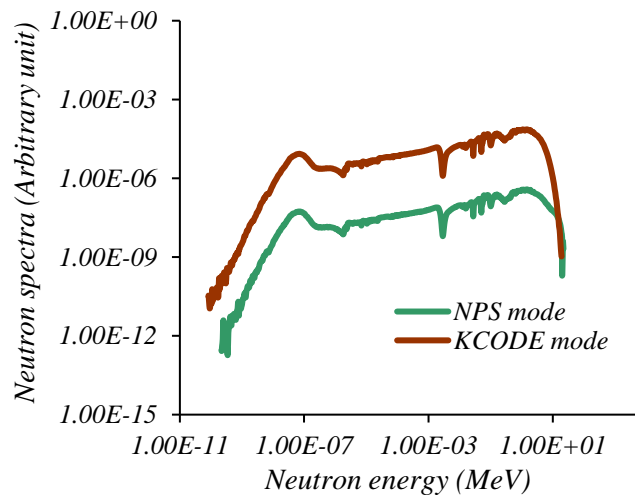
بیشتری ایجاد می کند که در واقعیت در این سیستم، پروتون در پنجره تولید نوترون می کند و نوترون نشت یافته در ماده هدف آهنگ شکافت کمتری ایجاد می کند. در صورتیکه انرژی ذره پرتابه پروتون بیشتر می شد می توانست تعداد نوترون بیشتر ایجاد کرده و آهنگ شکافت را حتی نسبت به مد kcode افزایش دهد مانند آنچه که در هدف های تلاشی شکافت پذیر قابل مشاهده است. در این شکل فقط تغییر نکردن شکل طیف حائز اهمیت بود تا اعتبار محاسبه بهره محصول از مد kcode را نشان دهد.

برای محاسبات مصرف سوخت، توان ۷۰ W که از مد nps و انرژی پروتون ۳۰ MeV حاصل شده است در مد kcode و کارت burnup لحاظ گردید. محاسبات نشان می دهد تولید مولیبدن-۹۹ پس از ۳ روز تابش دهی به حدود ۱/۵ Ci می رسد. همچنین  $^{131}\text{I}$  و  $^{133}\text{Xe}$  نیز در این مدت به مقدار قابل توجهی تولید می گردند؛ لازم به ذکر است نیاز هر مرکز درمانی حدود ۱۰۰ mCi در هفته است (شکل ۹).

گرمای بجای مانده ناشی از نشت پروتون به داخل ماده هدف محاسبه گردید و محاسبات نشان داد که در انرژی پروتون ۳۰ MeV حدود ۰/۰۰۱ وات است که در مقابل گرمای شکافت نوترون ناچیز است.

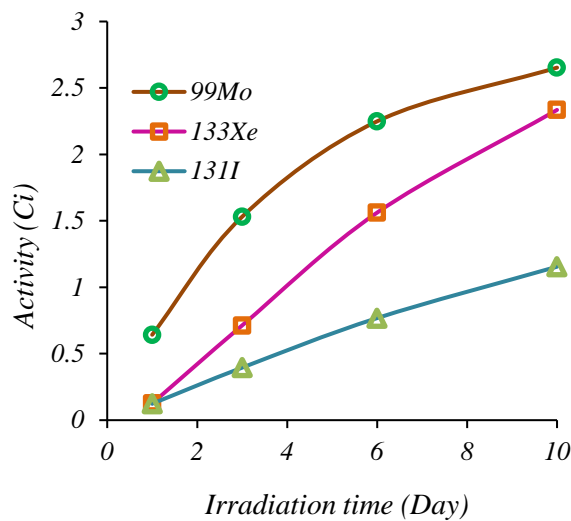
برای محاسبات مصرف سوخت ابتدا طیف نوترون در مد kcode و nps با یکدیگر مقایسه شد. محاسبات نشان داد شکل طیف در دو مد محاسباتی یکسان است زیرا از وقوع پروتون-شکافت با انتخاب ضخامت پنجره ۲ mm اجتناب شده است (شکل ۸).

محاسبات فوق به ازای ۱ عدد نوترون است زیرا شکل طیف مدنظر بوده است نه مقدار شار، در صورتیکه شکل طیف در دو مد nps و kcode متفاوت می بود محاسبات انجام شده برای بهره محصول که از مد kcode استفاده می شود معتبر نبود. لذا این مقایسه این اطمینان را می دهد که محاسبات بهره محصول در مد kcode معتبر است. لازم به ذکر است که مد kcode مد واداشته توسط نوترون است و nps مد واداشته سوخت شروع به تکثیر می کند و آهنگ شکافت



شکل ۸- مقایسه طیف نوترون درون ماده هدف فلراید اورانیوم با دو مد محاسباتی kcode و nps





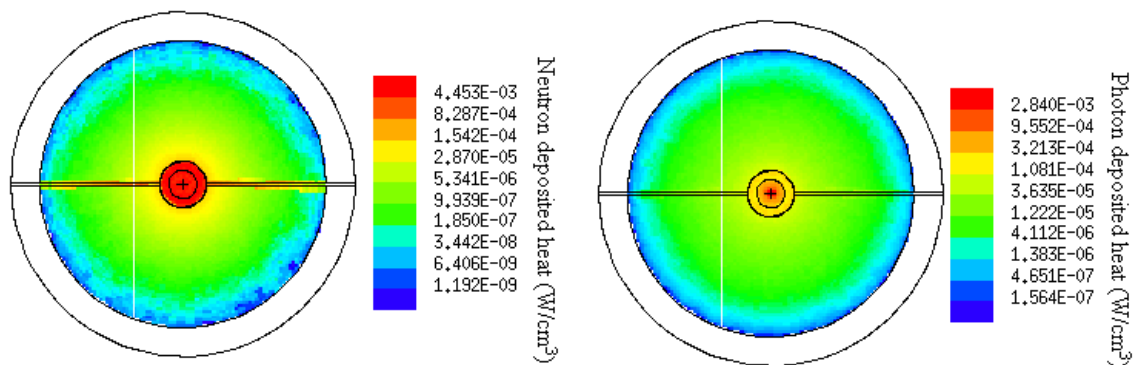
شکل ۹- بررسی میزان تولید رادیوایزوتوپهای <sup>99</sup>Mo، <sup>131</sup>I و <sup>133</sup>Xe بر حسب زمان پرتو دهی

نشان می دهد گرمای ناشی از نوترون و فوتون تقریباً در یک مرتبه و بیشینه آن حدود  $0.1005 \text{ W/cm}^3$  است. این مقدار گرمای تولید شده با توجه به گردش مایع نمک مذاب درون هدف به نظر می رسد نیاز به سیستم انتقال حرارت را حذف کند.

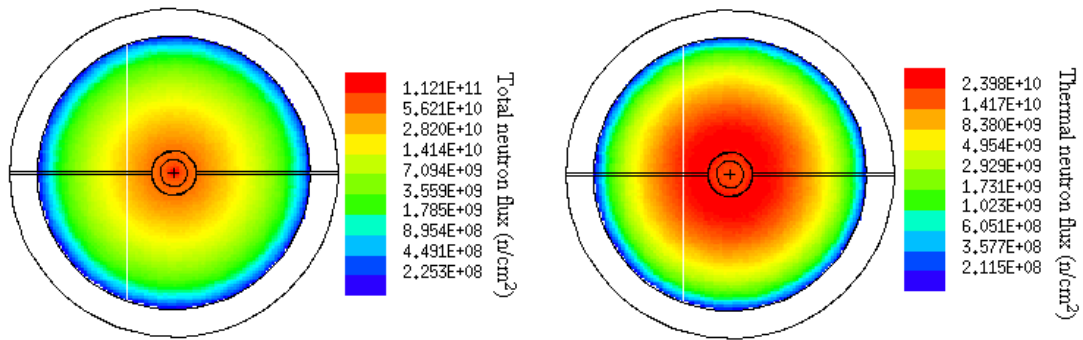
در شکل ۱۱ توزیع شار کل نوترون و شار نوترون حرارتی درون سیستم تابش دهی نمک مذاب فلورایدی نشان داده شده است. محاسبات نشان می دهد شار کل نوترون ها در خارج بازتاباننده در مرتبه  $10^8 \text{ n/s.cm}^2$  است.

محاسبات نشان داد پس از ۷ روز تابش دهی هدف مقدار اورانیوم-۲۳۳ آن حدود  $0.0066$  گرم مصرف شده است (پس از ۷ روز مقدار مولیبدن-۹۹ به حدود  $2/5 \text{ Ci}$  می رسد) لذا بهره محصول به ازای هر گرم ماده شکافا  $378 \text{ Ci/g-fiss}$  است.

در شکل ۱۰ توزیع توان حرارتی ناشی از نوترون و فوتون درون سیستم تابش دهی ماده هدف فلوراید اورانیوم نشان داده شده است. در این محاسبات دیواره و پنجره از جنس تنگستن و انرژی پروتون  $30 \text{ MeV}$  و جریان شتابدهنده  $200 \mu\text{A}$  است. چنانچه شکل زیر



شکل ۱۰- بررسی توزیع گرمای حاصل از ذرات نوترون و فوتون به ترتیب در سیستم تابش دهی نمک مذاب فلوراید اورانیوم



شکل ۱۱- بررسی توزیع شارنوترون کل و حرارتی در سیستم تابش دهی نمک مذاب فلوراید اورانیوم

سازی هندسه سیستم نمک مذاب می توان تولید مولیبدن-۹۹ تا ۱۰ Ci یا بیشتر را در مدت ۳ روز با استفاده از جریان  $200 \mu A$  شتابدهنده پروتونی CYCLONE30 ایجاد کرد. در ادامه سوخت نمک مذاب تماما اورانیومی با همان درصد ترکیبات نیز بررسی گردید که محاسبات نشان می دهد سوخت فلورایدی برمبنای توریم می تواند بهره تولید مولیبدن ۹۹ بیشتری داشته باشد زیرا سطح مقطع جذب توریم-۲۳۲ از اورانیوم-۲۳۸ کمتر است (جدول ۴).

در جدول ۴، بهره تولید  $^{99}Mo$  به روش های مختلف بر پایه شتابدهنده انجام شده است. محاسبات نشان می دهد در صورت استفاده از نمک مذاب فلوراید اورانیوم-توریم و شرایط پرتودهی ذکر شده، مولیبدن تولید شده به ازای واحد جریان و واحد زمان بر حسب ساعت، کمتر از سایر روشهای تولید است. با این وجود لازم به ذکر است که حسن استفاده از نمک مذاب توریمی و یا اورانیومی در این است که نیاز به خنک کنندگی ندارد، ماده هدف تا چند سال قابل استفاده است، همزمان می توان رادیوایزوتوپ های مختلف را تولید کرد و با بهینه

جدول ۴- بررسی انواع روشهای تولید مولیبدن-۹۹ و مقایسه بهره آنها (Mirvakili, 2015)

واکنش	انرژی ورودی (MeV)	انرژی خروجی (MeV)	بهره $^{99}Mo$ (MBq/ $\mu A.h$ )
$^{100}Mo(p,x)^{99}Mo$	25	0	36.26
$^{100}Mo(p,x)^{99}Mo$	25	10	33.10
$^{nat}Mo(p,x)^{99}Mo$	25	0	6.30
$^{nat}Mo(p,x)^{99}Mo$	30	0	5.92
$^{100}Mo(\gamma, n)^{99}Mo$	-		3.029
$^{nat}Mo(d,x)^{99}Mo$	20	4	8.00
$^{nat}Mo(d,x)^{99}Mo$	22	0	8.28
$^{232}Th(p, fission)^{99}Mo$	25	0	5.10
$^{232}Th(p, fission)^{99}Mo$	25	0	$4.93 \pm 0.29$
$^{nat}U(p, fission)^{99}Mo$	25	0	$5.08 \pm 0.10$
$^{233}UF_4 - ThF_4 - NaF - BeF_2 (n, fission)^{99}Mo$	30	0	2.04
$^{235}UF_4 - ^{238}UF_4 - NaF - BeF_2 (n, fission)^{99}Mo$	30	0	1.63

همچنانکه در قبل ذکر گردید در مسائل واداشته توسط شتابدهنده لازم است که دقت گردد تنها زمانی می توان مصرف سوخت را که با مد kcode قابل محاسبه است، بررسی نمود که طیف نوترون حاصل از مد nps و kcode شکل یکسانی داشته باشند. همچنین مسئله بحرانیات این هدف ها باید در هر دو حالت بررسی گردد تا اطمینان حاصل شود ضریب تکثیر نوترون به اندازه کافی دور از بحرانیات است. در صورت همخوانی شکل طیف لازم است توان حاصل از شکافت در حالت واقعی یعنی سیستم واداشته توسط شتابدهنده (مد nps و یا حالت تعریف چشمه ثابت) محاسبه شود و برای محاسبات مصرف سوخت از مد kcode استفاده گردد. در محاسبات انجام شده  $k_{eff}$  حدود  $0/44$  و  $k_s$  حدود  $0/07$  است. گرمای ناشی از شکافت در مد kcode حدود  $3/2$  kW و در مد nps حدود  $70$  W است. لذا در محاسبات مسائل واداشته توسط شتابدهنده لازم است که دقت گردد توان شکافت مد nps باید در کارت burnup کارت kcode قرار گیرد (Malambu, E., 2004).

#### ۴- نتیجه گیری

محاسبات انجام شده نشان می دهد استفاده از هدف های فلوراید اورانیوم می تواند بدون نیاز به خنک شونده ماده هدف، چندین رادیوایزوتوپ را به طور همزمان در سیستم تابش دهی ماده هدف توسط باریکه پروتونی ایجاد نماید. همانطوریکه جدول ۴ نشان می دهد بهره تولید مولیبدن 99 نسبت به سایر روش های تولید بر مبنای شتابدهنده کمتر است. هرچند بهره محصول در این روش در مقایسه با سایر روش های تولید بر پایه شتابدهنده کمتر است اما بهینه سازی هندسه هدف می تواند مزایای استفاده از این هدف را نسبت به سایر روش های بر پایه شتابدهنده بیشتر کند. همچنین تولید همزمان چندین رادیوایزوتوپ علاوه بر امکان استفاده ماده هدف به مدت چند سال از مزیت های این روش است.

#### پی نوشت ها

<sup>1</sup> Molten Salt Reactors

#### مراجع

Bertsche, K. Accelerator for production options of <sup>99</sup>Mo, SLAC National Accelerator Laboratory, Menlo Park, CA 94025 USA, SLAC-PUB-14132.

Gholamzadeh, Z., Alizadeh, M., Jozvaziri, A., Davari, A., Mirvakili, S.M., Yousefi, K., Aboudzadeh, M., Rajabifar, S. The feasibility of production of molybdenum-99 using a unique method of proton bombardment of natural uranyl sulfate by Cyclone30 accelerator. <sup>22</sup>ST Iranian Nuclear Conference 24-25Feb 2016 University of Yazd.

Ignatiev, V., Merzlyakov, A., Afonichkin, V., Khokhlov, V. and Salyulev, A., 2002, October. Transport properties of molten-salt reactor fuel mixtures: the case of Na, Li, Be/F and Li, Be, Th/F salts. In Seventh Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, 14th-16th October, Jeju, Republic of Korea.

Konobeyev, A.Y., Korovin, Y.A., Lunev, V.P. and Blann, M., 2006. ALICE/ASH-Pre-compound and evaporation model code system for calculation of excitation functions, energy and angular distributions of emitted particles in nuclear reactions at intermediate energies.

Malambu, E., 2004. Sub-critical core design of the small-scale XADS: sizing, drawings, fuel handling. Deliverable D12-revision 1 of PDS-XADS project. FIKW-CT-2001-00179, September.

Mirvakili, S.M., Alizadeh, M., Vaziri, A.J., Gholamzadeh, Z. and Davari, A., 2015. Computational investigation of <sup>99</sup>Mo production yield via proton irradiation of natU and <sup>232</sup>Th targets. Applied Radiation and Isotopes, 101, pp.127-134.

Ottewitte, E.H., 1992. Cursory First Look at the Molten Chloride Fast Reactor as an Alternative to the Conventional BATR Concept.

Pelowitz, D. B. 2008. MCNPX User's Manual. Vol. LA-CP-07-1473 Version 2.6.0. Los Alamos, NM: U. S. Department of Energy, Los Alamos National Laboratory.

Coolants for the Advanced High Temperature Reactor (AHTR) (pp. 1-69). United States. Department of Energy.

Ziegler, J.F., Ziegler M.D., Biersack J.P., 2008. The stopping and range of ions in matter. SRIM code, [www.SRIM.org](http://www.SRIM.org).

Williams, D.F., Toth, L.M. and Clarno, K.T., 2006. Assessment of Candidate Molten Salt



## Feasibility study of $^{99}\text{Mo}$ radioisotope production using uranium molten salt target irradiation by 30 Mev proton Cyclotron

Zohreh Gholamzadeh <sup>\*1</sup>, Farokh Khoshahval <sup>1</sup>

<sup>1</sup> Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, Tehran, Iran

Received: 1 - 6 - 2020

Accepted: 14 - 7 - 2020

### Abstract

Fluoride Uranium-Thorium molten salts are widely used in the molten salt reactors in different compositions. The most important characteristic of the MSRs is high melting and boiling point. Therefore, the use of molten salt solution of uranium fluoride can eliminate the need for heat transfer in radioisotope production systems by accelerators. The initial study of the use of this molten salt as a target material in a cyclotron accelerator was carried out to generate various radioisotopes. We used MCNPX and ALICE/ASH. The results of this study show that the use of these molten salts can solve the problem of heat transfer and limit the application of proton beam flow on the target material. While also producing and harvesting various radioisotope products simultaneously. By optimizing the target geometry, we can increase the production rate of the different fission products in molten salt material. In addition, the use of accelerators can reduce the dependence of the production of radioisotopes used in medicine and industry to nuclear reactors.

**Keywords:** Two-phase flow, Gamma-ray attenuation, flow rate, Artificial Neural Networks, NaI(Tl), Detector counts.