مجله علوم، مهندسی و فناوری هستهای، دوره ۴۵، شماره ۴، جلد ۱۱۰، زمستان ۱۴۰۳

Journal of Nuclear Science, Engineering and Technology Vol. 45 (4), Serial Number 110, 2025



على بهرامي ساماني* 📵، بيژن طاهري ً 📵، ايمان دهقان ً 🔍، سيميندخت شيرواني آراني ٔ 📵

۱. پژوهشکده چرخه سوخت هستهای، پژوهشگاه علوم و فنون هستهای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۸۴۸۶–۱۱۳۶۵، تهران- ایران ۲. گروه فنی و مهندسی، دانشگاه کاشان، کدپستی: ۸۷۳۱۷۵۳۱۵۳، کاشان- ایران

*Email: asamani@aeoi.org.ir

مقالهٔ پژوهشی تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۲/۵/۲۶ تاریخ بازنگری مقاله: ۱۴۰۲/۹/۲ تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۲/۹/۴

چکیدہ

پسماندهای مایع حاوی پارههای شکافت، منبع ارزشمندی از انواع رادیوایزوتوپهای کاربردی میباشند که با انتخاب یک روش رادیوشیمیایی مناسب میتوان رادیوایزوتوپ مدنظر را از آن استحصال نمود. به دلیل در دسترس نبودن پسماند، در این مقاله تلاش شده است تا محلول معادل پسماند مایع نوعی تأسیسات تولید مولیبدن-۹۹ طی شبیهسازی با کد MCNPX محاسبه و به صورت آزمایشگاهی با استفاده از نمکهای موجود ساخته شود. سپس رادیوردیابهای مختلفی از عناصر به روش فعالسازی نوترونی تولید و به محلول معادل اضافه شد. بررسیها نشان داد که برای ردیابی سریم در فرایند، میتوان از تابش گامای ۱۴۵٬۴ keV مرتبط با ^{۱۹}۲۰ تولید شده به روش فعالسازی استفاده نمود. مکانیزم پرتودهی و همچنین طیفنگاری توسط که MCNPX شبیهسازی شد و نتایچ با اندازه گیریهای تجربی مقایسه گردد.

كليدواژهها: راديوردياب، فعالسازي نوتروني، MCNPX ،HPGe ،^{۱۴۱}Ce

Simulation and determination of the appropriate radiotracer to study the behavior of cerium element in radiochemical processes

A. Bahrami Samani*¹, B. Taheri², I. Dehghan², S. Shirvani Arani¹

Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOI, P.O.Box: 11365-8486, Tehran - Iran
Department of Engineering, University of Kashan, Postal Code: 8731753153, Kashan - Iran

Research Article Received: 17.8.2023, Revised: 23.11.2023, Accepted: 25.11.2023

Abstract

Liquid wastes containing fission fragments are valuable sources of useful radioisotopes that can be extracted using suitable radiochemical methods. This article addresses the challenge of unavailable waste by simulating a solution equivalent to the liquid waste from a 99Mo production facility using the MCNPX code and preparing it with laboratory-available salts. Various radiotracers of elements were subsequently produced via the neutron activation method and added to the equivalent solution. Investigations focused on tracing cerium in the process, utilizing the 145.4 keV gamma radiation from ¹⁴¹Ce produced during activation. The irradiation mechanism and spectroscopy were simulated using the MCNPX code, and the results were compared with experimental measurements.

Keywords: Radiotracer, Neutron activation, ¹⁴¹Ce, HPGe, MCNPX

Journal of Nuclear Science, Engineering and Technology

Vol. 45 (4), Serial Number 110, 2025, P 86-95

مجله علوم، مهندسی و فناوری هستهای ۲۰ دوره ۴۵، شماره ۴، جلد ۱۱۰، زمستان ۱۴۰۳، ص ۸۶–۹۵



۱. مقدمه

یکی از بزرگترین دستاوردها در راستای تشخیص زودهنگام انواع سرطان، تولید و ارتقای رادیوداروهای نشاندار شده با ۹۹mTc میباشد که میتوانند جهت تصویربرداری از قسمتهای مختلفی همچون قفسه سینه، مغز، کلیه و ... استفاده شوند [۱]. ۹۹mTc مورد نیاز مراکز پزشکی، عمدتاً از ژنراتورهای ۹۹Mo/۹۹۳Tc دوشیده می شوند. گلوگاه اصلی در تولید چنین ژنراتورهایی تأمین رادیوایزوتوپ ^{۹۹}Mo میباشد که عمدتاً توسط ۵ شرکت بزرگ Mallinckrodt ،^۲IRE ،^۱ANSTO، Nordion^{*} و NTP[®] تولید می شود [۲]. خود کفایی در تأمین ^{۹۹}Mo تا جایی اهمیت دارد که در سالهای اخیر مطالعات گستردهای جهت راهاندازی تأسیسات تولید ^{۹۹}Mo به روش شکافت در ایران انجام شده است [۳]. هر چند راهاندازی چنین تأسیساتی نگرانی بزرگ پیشروی بیماران (که عموماً در وضعیت دشواری قرار داشته و وابسته به واردات ^{۹۹}Mo هستند) را کاهش میدهد اما به واسطهٔ پسماند رادیواکتیوی که در سال تولید میکند نیاز به مکانیزم مدیریتی پیشرفتهای دارد. عمده یسماند ایجاد شده در تأسیسات تولید ^{۹۹}Mo به روش شکافت، یسماند مایعی است که پس از جداسازی ^{۹۹}Mo از سایر پارههای شکافت، محصولات فعالسازی و آکتینیدها بر جای میماند [۴، ۵]. پر واضح است که پسماند مذکور حاوی رادیوایزوتوپهایی است که می توانند در صنعت و یا پزشکی کاربرد داشته باشند. ایجاد یک چرخه برای استحصال رادیوایزوتوپ مد نظر از پسماند می تواند علاوه بر کاهش هزینههای پسمانداری، در آمدزایی مضاعفی برای تأسیسات نیز داشته باشد. به دلیل پرتوزایی بالای یسماند مایع و محدودیت در تأمین هاتسلها با حفاظ گذاریهای حجیم، مناسبتر است که برای اهداف فراوری و استحصال رادیوایزوتوپهای کاربردی، پسماند مایع نتیجه شده از تولید ^{۹۹}Mo، برای مدت طولانی خنک شود. حسینی و همکاران تخمینی از موجودی رادیوایزوتوپی پسماند تأسیسات صنعتی تولید ۹۹Mo در ایران، ۳۰۰ روز پس از پرتودهی، ارائه کردهاند. آنها نشان دادند که رادیوایزوتوپهای ^{۱۴۱}Ce و ^{۱۴۴}Ce از جمله رادیوایزوتوپهایی هستند که در این یسماند وجود دارند [۶].

رادیوایزوتوپ ^{۱۴۱}Ce طی واپاشی بتا و با نیمهعمر ^{۱۴۱}Ce روز به ^{۱۴۱}Pr پایدار تبدیل میشود. طیف بتای گسیلی دارای انرژی بیشینه و متوسط به ترتیب ۵۸۰٬۸ keV و ۱۴۵/۲۲ است. به علاوه این رادیوایزوتوپ در هر واپاشی، با احتمال ۴۸٬۲۹٪ یک گاما با انرژی ۱۴۵٬۴ keV نیز گسیل میکند [۷]. مطالعاتی بر روی کاربردهای درمانی و تشخیصی با استفاده از ^{۱۴۱}Ce انجام شده است [۸۰].

رادیوایزوتوپ ^{۱۴۴}Ce دارای نیمهعمر به مراتب بیشتر و حدود ۲۸۴/۹۱ روز میباشد. این رادیوایزوتوپ طی واپاشی بتا با ^{۱۴۴}mPr روز میباشد. این رادیوایزوتوپ طی واپاشی بتا با ^{۱۴۴}mPr به ۲۹^{۴۳} و با احتمال ۲۵۵/۰۰٪ به ^{۱۴۴}mPr متوسط به ترتیب ۳۱۸/۷ keV و ۲۱۸/۸ است. ^{۱۴}Ce در هر واپاشی، ۶ گامای گسسته با احتمالهای متفاوت نیز گسیل میکند که گاما با انرژی keV (۲۸٪ و فراوانی ۲۰۱۰٪ محتملترین آنها میباشد [۷]. یک چشمهٔ ساخته شده از این رادیوایزوتوپ به دلیل ادامه زنجیرهٔ واپاشی (تبدیل ^{۱۴}mPr به رادیوایزوتوپ به دلیل ادامه زنجیرهٔ واپاشی (تبدیل ^{۱۴}mPr به ^{۱۴۴}Pr و می^{۱۴۴}۳ و سپس رادیوایزوتوپ میتواند در ساخت باتریهای هستهای اینرو یک چشمهٔ نسبتاً پیچیده به حساب میآید. این تامینکنندهٔ توان تجهیزات MEMS^۹ و شبکههای بیسیم رادیوایزوتوپ میتواند در ساخت باتریهای هستهای استفاده شود [۱].

برای جداسازی ^{۱۴۱}Ce از محلول پسماند میتوان از ستونهای کروماتوگرافی استفاده کرد. برای بررسی عملکرد مراحل مختلف جداسازی، به دلیل وجود رادیوایزوتوپهای مختلف در محلول پسماند، آنالیز دقیقی باید انجام شود.

یک راهحل ممکن برای آنالیز مراحل مختلف جداسازی و محاسبهٔ بازدهی، استفاده از طیفسنجی جرمی پلاسما جفتشده القایی^۷ است. هر چند این آنالیز برای آزمونهای سرد میتواند گزینهٔ مناسبی باشد، اما در آزمونهای داغ که محصولات فعالسازی و یا شکافت مختلف در نمونه وجود دارند، به دلیل حد غلظت متفاوت و محدود برای تشخیص فلزات و برخی غیرفلزات و مهمتر از آن لزوم جداسازی شیمیایی برای تجزیه و تحلیل دقیق اغلب ایزوتوپهای غیرطبیعی [1۲]، چندان دقیق نمی باشد.

Vol. 45 (4), Serial Number 110, 2025, P 86-95



^{1.} Australian Nuclear Science and Technology Organization

⁽ANSTO) - Australia

^{2.} Institut National Des Radioéléments (IRE) - Belgium

^{3.} Mallinckrodt - Netherland

^{4.} CNL/Nordion – Canada

^{5.} Nuclear Technology Products Radioisotopes (NTP) - South Africa

مجله علوم، مهندسی و فناوری هستهای

^{6.} Microelectromechanical Systems (MEMS)

^{7.} Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICPMS) Journal of Nuclear Science, Engineering and Technology

راهحل مناسب برای آنالیز آزمونهای داغ، بررسی تابشهای گاما ساطع شده از نمونه میباشد که روشی غیرمخرب است. این روش برای تحلیل سریع شرایطی همچون پزشکی قانونی هستهای، تجزیه و تحلیل فعالسازی نوترون'، تأیید رعایت معاهدات پادمانی و ... ترجیح داده می شود. دستیابی به دادههای با دقت بالا با عدم قطعیت کم در این روش با چالشهایی روبهرو است [۱۴، ۱۳]. از اینرو بعضاً فرایندهای تحلیلی مخرب نیز به صورت سیستمهای بر خط، باید به این آنالیزها اضافه شود [۱۲]. هر چه تعداد محصولات فعالسازی و شکافت در نمونهٔ مورد آنالیز بیشتر باشد، بسته به عنصر مورد بررسی در فرایند جداسازی، نیاز به جداسازی شیمیایی مقدماتی برای افزایش دقت آنالیزها بیشتر می شود. در این راستا مورلی ۲ و همکاران [۱۵] و موریسون^۳ و همکاران [۱۶] برای کاهش محدودیتهای حداقل اكتيويته قابل تشخيص براى تجزيه و تحليل فعالسازى نوترونی چندین فلز واسطه، از جداسازیهای شیمیایی استفاده کر دند.

دقت آنالیز طیفی میتواند با احتساب دورهٔ خنکسازی برای ترکیب پرتودهی شده و رقیقسازی مناسب نمونه برای کاهش زمان مرگ (غیرمخرب) و همچنین جداسازی شیمیایی در صورت نیاز (مخرب) افزایش یابد. با تشخیص رادیوایزوتوپ معرف یک عنصر موجود در ترکیب، از روی طیف تابش گاما، میتوان ضمن ردیابی آن، بازدهی مراحل مختلف فرایند جداسازی را به دست آورد. رادیوایزوتوپ معرف در واقع رادیوایزوتوپی از عنصر است که در طیف گامای ثبت شده از نمونه دارای تابش گامای منحصر به فرد باشد. بدین معنی که تابش گامای آن مجزا از تابشهای گامای سایر رادیوایزوتوپهای موجود در محلول است و لزومی بر جداسازی شیمیایی آن وجود ندارد.

در حال حاضر دسترسی به پسماند تأسیسات تولید Mo^{۹۹} وجود ندارد و کسب دانش استحصال میتواند با ساخت محلول معادل چنین پسماندی انجام شود. آمادهسازی و انجام فرایند بر روی چنین محلولی، کمک خواهد کرد تا دانش مقدماتی لازم جهت استحصال رادیوایزوتوپ مد نظر در هنگام موجود شدن پسماند در اختیار باشد. به علاوه به منظور تعیین بازدهی مراحل مختلف فرایندی و آنالیز درصد خلوص محصول نهایی لازم است تا رادیوردیابهای مناسب به محلول معادل سرد اضافه گردد. به دلیل محدودیتهای متأثر از پرتوزایی، بهرهگیری از یک روش

شبیهسازی میتواند کمک شایانی به انتخاب رادیوردیاب مناسب پیش از انجام آزمایشهای تجربی نماید.

در این مقاله، ابتدا برآوردی از موجودی عنصری پسماند مایع واحد تولید ^{۹۹}Mo با استفاده از شبیهسازی با کد مونتکارلویی ⁴(MCNPX) به دست آمد. بر اساس نتایچ، ترکیب مشابهی با استفاده نمکهای موجود تهیه شد. ترکیب در رآکتور تحقیقاتی تهران پرتودهی شد تا ضمن اندرکنش فعالسازی ردیابهای مختلفی از عناصر موجود در ترکیب ایجاد فعال سازی ردیابهای مختلفی از عناصر موجود در ترکیب ایجاد شود. پس از انحلال ترکیب نمکی داغ، نمونههای رقیق سازی شده ای از آن تهیه شد. نمونهها توسط دستگاه طیف سنج گامای مجهز به آشکار ساز HPGe طیف نگاری شدند. طیف محلول مادر به لحاظ تشخیص رادیوایزوتوپ معرف هر عنصر (عملکرد مشابه به لحاظ تشخیص رادیوایزوتوپ معرف هر عنصر (عملکرد مشابه مورد بررسی قرار گرفت و نتایج آزمایشگاهی و شبیه سازی با یکدیگر مقایسه شدند. نتایج این مقاله برای ردیابی عناصر مختلف در جداسازی انتخابی مفید خواهد بود.

۲. مواد و روشها

۱.۲ شبیهسازی با کد MCNPX

۱.۱.۲ تخمین موجودی عنصری پسماند مایع در یک سیکل تولید ^{۹۹}Mo

کل تقاضای مراکز پزشکی هستهای ایران به ^{۹۹}Mo در هر هفته، در حدود ۱۰۰Ci (۶ روزه) تخمین زده میشود. عابدی و همکاران نشان دادند که در صورت پرتودهی ۲۴ عدد مینی پلیت LEU ساخت داخل، در کانال ۶^G رآکتور تحقیقاتی تهران، به مدت ۱۰۰ ساعت تحت توان MW ۴ میتوان این میزان تقاضا را تأمین نمود [۱۷]. حسینی و همکاران بر این اساس، تخمینی از موجودی رادیوایزوتوپی پسماند، ۷۰ و ۳۰۰ روز پس از پرتودهی، ارائه کردند [۶]. با این حال به منظور تخمین مقادیر عنصری در پسماند، هندسهٔ مشابهی توسط کد MCNPX شبیه ازی شد (شکل ۱).

به ازای شرایط پرتودهی ذکر شده در بالا، پس از تخمین موجودی رادیوایزوتوپی (پایدار و پرتوزا) در محلول پسماند ناشی از یک سیکل تولید ^{۹۹}Mo توسط کارت BURN، با استفاده از کد نوشته شده در برنامه متلب^۵، مقدار هر عنصر در پسماند مایع پس از ۳۰۰ روز خنکسازی محاسبه شد.

Journal of Nuclear Science, Engineering and Technology





^{1.} Neutron Activation Analysis (NAA)

^{2.} Morley

^{3.} Morrison

^{4.} Monte Carlo N-Particle Transport (MCNP) Version X-2.75. MATLAB





شکل ۱. هندسهٔ شبیهسازیشده در کد MCNPX جهت پرتودهی هدفهای مینی پلیت LEU و تخمین موجودی رادیوایزوتوپی آنها.

۲۰۱۲ محاسبهٔ موجودی ترکیب نمکی و شبیهسازی شرایط پرتودهی عناصر تخمین زده شده، به شکل نمک با ترکیبهای شیمیایی خاص در آزمایشگاه موجود میباشند. برای تعریف مادهٔ ترکیب در کد MCNPX، ابتدا درصد ایزوتوپی تشکیل دهندهٔ هر عنصر با توجه به کتابخانهٔ ENDF/B-VIII.0 نرمافزار JANIS مشخص شد. برای مثال عنصر سریم از ایزوتوپهای با عدد جرمی ۱۳۶۶، ۱۳۸۸ و ۱۴۲ و ۱۴۲ به ترتیب با فراوانی ۱۸۸۵، اساس فرمول شیمیایی، چگالی و مقدار گرم هر یک از نمکهای موجود در ترکیب، چگالی کل ترکیب و وزن جرمی نرمالایز شدهٔ هر یک از ایزوتوپها به دست آمد. هندسهٔ پرتودهی مشابه چیدمان تجربی به صورت نمایش داده شده در شکل ۲ شبیهسازی شد. در نتیجه موجودی رادیوایزوتوپی ترکیب، در زمان انجام طیفنگاری (بر اساس مدت پرتودهی و دورهٔ خنکسازی معلوم مشابه آزمون آزمایشگاهی) محاسبه شد.

۳.۱.۲ شبیهسازی طیفنگاری محلول مادر

پس از تخمین موجودی رادیوایزوتوپی ترکیب، در زمان طیفنگاری، با استفاده از کد نوشته شده در متلب، بر اساس اکتیویته و دادههای گسیل گامای گسسته، شامل انرژی و فراوانی استخراج شده از کتابخانهٔ ENDF/B-VIII.0 برای هر رادیوایزوتوپ، طیف گامای گسسته نرمالایز شده ترکیب تخمین زده شد. به علاوه هندسهٔ حدودی آشکارساز HPGe مورد استفاده جهت آنالیز در آزمایشگاه در کد MCNPX تعریف شد (شکل ۳). طیف گامای نمونه با استفاده از تالی FA به دست آمد.



شکل ۲. هندسهٔ مرتبط با شبیهسازی پرتودهی ترکیب نمکی در رآکتور تحقیقاتی تهران (مشابه چیدمان تجربی).



شکل ۳. هندسهٔ آشکارساز HPGe شبیهسازی شده در کد MCNPX جهت تخمین طیف نمونه مادر.

۲.۲ آزمون آزمایشگاهی

۱۲.۲ ساخت ترکیب نمکی و پرتودهی در رآکتور تحقیقاتی تهران بر اساس موجودی عنصری تخمین زده شده در پسماند مایع واحد تولید Mo^{۹۹} پس از ۳۰۰ روز خنکسازی، یک ترکیب نمکی آماده شد. نمک در دسترس از هر عنصر به همراه مقدار آن جهت تولید ردیابها نیز، در جدول ۱ نشان داده شده است. وزن مشخص قابل اندازه گیری از هر نمک متناسب با مقدار عنصر آن نمک در پسماند با یکدیگر ترکیب شدند. در این بین پلوتونیم و همچنین پرومیتیم در دسترس نبودند و از آنها در این آزمایش استفاده نشد. اورانیم نیز به صورت تهی شده در هنگام آزمون جداسازی به محلول اسیدی اضافه شد و در ترکیب نمکی ارسالی برای پرتودهی وجود نداشت. ترکیب نمکی

Journal of Nuclear Science, Engineering and Technology Vol. 45 (4), Serial Number 110, 2025, P 86-95 تمامی نمکهای مورد استفاده قابلیت انحلال در اسید نیتریک را

دارند. انحلال ترکیب نمکی داغ، در سلول سربی حفاظ گذاری

شده انجام شد. از محلول اسیدی ترکیب نمکی پرتودهی شده،

حجم ۱ تا ۵ سیسی نمونهبرداری شد و نمونهها پس از

آمادهسازی، طیفنگاری شدند. به علاوه نمونهها طی چندین

مرحله رقیقسازی شدند و طیف تابشهای گامای گسیلی از

آنها توسط آشکارساز HPGe ثبت شد. زمان مرگ سیستم

تغییرات اکتیویتهٔ ^{۱۴۱}Ce و ^{۱۴۴}Ce در پسماند مایع بر جای مانده

از یک سیکل تولید ^{۹۹}Mo در ایران، در شکل ۴ نشان داده شده

است. مشاهده می شود که در پسماند با ذخیره سازی

(خنکسازی) کمتر از ۱۰۰ روز، میزان ^{۱۴۱}Ce بیشتر از ۱^{۴۴}Ce

است. سپس با افزایش دورهٔ ذخیرهسازی، اکتیویتهٔ ^{۱۴۴}Ce به

دلیل نیمهعمر بالای آن، به کندی کاهش می یابد. این نمودار

مى تواند جهت تخمين زمان مناسب براى انجام فرايند استحصال

مفيد باشد. نسبت اكتيويته اين دو راديوايزوتوپ و همچنين

اکتیویتهٔ ویژهٔ هر یک می تواند پارامتر تعیین کننده باشد. برای مثال در یسماند با ذخیره سازی ۳۰۰ روزه، اکتیویتهٔ ^{۱۴۴}Ce بیش

از ۳۲٬۵ برابر اکتیویتهٔ ^{۱۴۱}Ce است که می تواند زمان مناسبی

جهت انجام فرایند برای تولید ^{۱۴۴}Ce در نظر گرفته شود.

آشکارسازی در این خوانشها از ۸۰٪ تا ۵٪ کاهش یافت.

۳. نتایج و بحث

تهیه شده در یک لوله شیشه کوارتزی ریخته شد. شیشه در قوطی آلومینیمی قرار گرفت و پس از مهرومومسازی جهت پرتودهی به رآکتور تحقیقاتی تهران ارسال شد. قوطی حاوی ترکیب نمکی در کانال م*b* به مدت ۲۴ ساعت و تحت توان ۴MW پرتودهی شد. تجزیه و تحلیل ترکیب در مدت کوتاهی یس از پرتودهی، تحت تأثیر تعداد زیادی از محصولات فعالسازی با نیمهعمر کوتاه و بسیار پرتوزا قرار خواهد گرفت. فعالیت بالا منجر به افزایش زمان مرگ سیستم آشکارسازی و متعاقباً افزایش خطا در آنالیزهای معمولی تابش گاما با استفاده از آشکارسازهای HPGe می گردد. به علاوه به دلیل پرتوزایی بالا، برای ترخیص و انجام فرایند روی چنین ترکیبی، به کانتینر حمل و سلول سربیهای با ضخامت بالا نیاز است. از اینرو به منظور افزایش ایمنی پرتویی اپراتورها حین انجام فرایند در سلول سربی و گلاوباکسهای موجود و همچنین کاهش حساسیت آنالیز پرتو گامای، در نظر گرفتن یک "دوره خنکسازی" و "رقیقسازی نمونهها" برای آنالیز ایزوتوپ با عمر طولانی تر ضروری است. با این توضیح، قوطی به مدت ۱۰ روز در استخر رآکتور نگهداری شد و پس از خنکسازی لازم به آزمایشگاه منتقل گردید.

۲.۲.۲ ساخت محلول مادر، نمونهبرداری، رقیقسازی و طیفنگاری نمونه

U Al Mg Si Fe Cu Cr Zn يسماند انتخابى مقدار (گرم) 891,5 141,7 ٣/۴ 5,04 1.89 . 98 . 99 .,49 نمک Al(NO_r)_r Mg(NO_r)_r SiO Fe(NO_r), Cu(NO_r), Cr_vO Depleted ZnO نمک موجود در آزمایشگاه حاوی عنصر مقدار (mg) ۵ ۵ ۵ ۵ ۵ ۵ Mn Ti Zr Nd Ce Cs Pu Ru عنصر پسماند انتخابی مقدار (گرم) •,799 •, ٣٩٩ ۰,۰۱۹ ۰,۰۱۷ • /• ١٣ • ,• • Y MnOr TiO₇ ZrClf Nd(NO_r)r Ce(NO_r) CsNO₇ Ru(NOr)r نمک NA نمک موجود در آزمایشگاه حاوی عنصر مقدار (mg) ۵ ۵ ۱٩ ۱۷ ۱۳ ٠/٩ γ La Y Ba Sr Pr Sm Rh Rb عنصر يسماند انتخابى •,••\$ •,••۵ •,••۵ •,••• • • • • • مقدار (گرم) نمک BaClr La(NOr)r Sr(NO_v)_v Pr(NO_r) YClr SmrOr Rh(NOr)r RbCl نمک موجود در آزمایشگاه حاوی عنصر مقدار (mg) ۶ ۰,۶ ۵ ۵ ۲ ٠.٠۵٧ ۲ ۲ عنصر Te Pm Pd Se Eu Nb Sn Br پسماند انتخابی مقدار (گرم) •,•••٩ • • • • • • TeO, Eu(NO_{r)r}. Δ H_rO BrNO_r نمک Pd(NO_r)_r SeO_r NbCla Sn(NO_r), NA نمک موجود در آزمایشگاه حاوی عنصر ۱,٩ ٠,١٩ مقدار (mg) ٠٫٩ ۰٫۲ ٠,١٧ • / ۰,۱

جدول ۱. موجودی عنصری پسماند (مربوط به تأسیسات تولید ^{۹۹}Mo با دورهٔ پرتودهی ۱۰۰ ساعت) با دورهٔ ذخیرهسازی ۳۰۰ روزه

NA: Not Available



۹١





شکل ۴. تغییرات اکتیویتهٔ ^{۱۴۱}Ce و ^{۱۴۱}C^{e د}ر پسماند مایع با زمانهای ذخیرهسازی مختلف.

موجودی عنصری پسماند با دورهٔ ذخیرهسازی ۳۰۰ روزه، صرفاً ناشی از موجودی هدفهای داغ و بدون احتساب ریجنتهای اضافه شده طی مراحل مختلف انحلال و جداسازی، در جدول ۱ آورده شده است.

به واسطهٔ فعالسازی نوترونی ترکیب معادل پسماند، رادیوایزوتوپهای گسیلندهٔ گامایی در مادهٔ داغ تولید میشوند که میتوان با ردیابی آن، عملکرد عنصر مرتبط در فرایند HPGe طیفنگاری نمونه با دستگاه HPGe بررسی نمود. در واقع رادیوایزوتوپ تولیدی توسط فعالسازی نوترونی میتواند جهت آنالیز رفتار شیمیایی عنصر استفاده شود. جدول ۲ نتیجهٔ شبیهسازی تولید ردیاب به ازای فعالسازی نوترونی عنصر سریم طبیعی به ازای پرتودهی ۱ روزه و سپس خنکسازی ۱۰ روزه را نشان میدهد.

مشاهده می شود که در بین رادیوایزوتوپهای تولیدی در نمونهٔ داغ، سریم-۱۴۱، از اکتیویتهٔ مناسبی برای انتخاب به عنوان ردیاب عنصر سریم برخوردار است. می توان این طور بیان کرد که هر نتیجه گیری از رفتار شیمیایی عنصر سریم که از

ردیابی ^{۱۴۱}Ctنتیجه شود، میتواند جهت جداسازی ^{۱۴۴} از محلول مادر مورد استفاده قرار گیرد.

حتی نمونهٔ ۱۰۵ از محلول اسیدی ناشی از انحلال ترکیب نمکی داغ، پرتوزایی نسبتاً بالایی داشت به گونهای که زمان مرگ سیستم طیفنگاری در هنگام خوانش آن، حدود ۸۰٪ بود که منجر به اشباع رفتن سیستم آشکارسازی میشد. نمونههای که منجر به اشباع رفتن سیستم آشکارسازی میشد. نمونههای ایک منجر به اشباع رفتن سیستم ایک می می می می می می جد مرحله با نسبت ایک ایک می با زمان مرگ حدود ۵٪ را نشان می دهد.

با توجه به پیکهای نشان داده شده در طیف، رادیوایزوتوپهای محتمل در نمونهٔ مادر تخمین زده شد. نتیجهٔ آنالیز طیف نشان داده شده در شکل ۵ در جدول ۳ آورده شده است.

علی رغم این که محتمل ترین رادیوایزو توپ متناسب با هر پیک در ستون سوم مشخص شده است ولی، مشاهده می شود که برخی از پیکهای موجود در طیف مربوط به چند رادیوایزو توپ مختلف می باشند. این پیکها برای ردیابی عناصر مناسب نیستند. از بین ۲۹ عنصر موجود در ترکیب داغ، تنها ۹ عنصر به واسطهٔ فعال سازی نوترونی ترکیب نمکی و طیف نگاری گاما قابل ردیابی هستند. همان طور که مشاهده می شود در ترکیب حاضر عنصر سریم، توسط رادیوایزو توپ ¹⁴¹ (با توجه به پیک ۱۴۵ke۷)، بدون هیچ تداخل گامایی با سایر رادیوایزو توپ ها، قابل ردیابی است. از این رو حین انجام فرایند با محلول پر توزای ناشی از انحلال ترکیب نمکی، می توان جداسازی ¹⁵¹ از ۸ عنصر دیگر را به خوبی بر سی کرد.

دقیقاً مشابه شرایط آزمایش تجربی، پرتودهی ترکیب نمکی در رآکتور تحقیقاتی تهران توسط کد MCNPX شبیهسازی شد. موجودی رادیوایزوتوپی ترکیب داغ در جدول ۴ آورده شده است.

طیف نرمالایز شدهٔ تابشهای گامای خطی گسیلی از ترکیب نمکی داغ با موجودی نتیجه شده از شبیهسازی در شکل ۶ نشان داده شده است. از این طیف خطی گسسته، جهت تخمین طیف ثبت شده در آشکارساز HPGe شبیهسازی شده با کد MCNPX استفاده شد.

يوايزوتوپ ^{١۴٢} Ce ^{١۴٢} Ce ^{١۴٢} Ce ^{١۴٢} Ce ^{١۴٢} Ce	راديوايزوتوپ				
هعمر (روز) ۲۸۴٬۹ ۱٬۳۷۵ ۲۸۴٬۹ ۲۸۴٬۹ ۲۸۴٬۹	نيمەعمر (روز)				
انتهای پرتودهی (۱ روز) ۲٫۹۲ ۲٫۹۴ ۱٫۴۸ ۲٫۹۷ ۱٬۰۲ ۲٫۹۷	پرتودهی عنصر سریم طبیعی انتهای پرتودهی (۱ روز)				
	فراوانی (./)	ايزوتوپ			
	٠٫١٩	۱۳۶Ce			
انتهای خنکسازی (۱۰ روز) ۲۰۱× ۱/۱ ۲۰ × ۲۰۰۲ ۲/۱ ۲۰۰۴ ۱/۱۰ ۲۰۰۴	۰,۲۵	^{чтл} Се			
	٨٨،۴٨	¹⁶ .Ce			
	۱١,•٨	^{инт} Се			

جدول ۲. اکتیویتهٔ رادیوایزوتوپهای مهم سریم برحسب mCi محاسبه شده توسط کد MCNPX





پیک انرژی (keV)	محتمل ترين راديوايزو توپ	انرژی نماینده محتملترین رادیوایزوتوپ [۷]		سایر رادیوایزوتوپهای مؤثر بر پیک (بیش از ۲٪ CPS محتمل ترین رادیوایزوتوپ)				
		E(keV)	Abundance					
9.146	۱۴۷Nd	۹۱,۱۰۵	۰,۲۸۰	-				
۱۲۳٬۵	۱۵۳Eu	۱۲۱ /Υ۸	۰,۲ <i>۸۶</i>	۱۵۴Eu	^{\rr} Ba	۱۴۷Nd	۲۵Se	
۱۳۲٬۵۱	^{۱۴.} La	1298/51	۰,۹۵۴	¹⁷¹ Ba				
۱۳۵٫۳۶	v۵Se	284,8D	۰٫۵۸۹	^{ırı} Ba				
144,87	۱۴۱Ce	140,44	• ،۴۸۲	-				
226,11	v۵Se	284,80	۰٫۵۸۹	^{17.} La				
۲۷۸٬۹۶	v۵Se	224,80	٠٫۵٨٩	۱۴۹Pm				
۳۱۹,۴۷	۵۱Cr	۳۲۰,۰۸	۰ _/ ۰۹۹	^{\\fv} Nd ^{\\delta} Rh		Rh		
340/12	۱۵۲Eu	۱۲۱ _/ ۷۸	۰,۲ <i>۸۶</i>	-				
481,88	۱۵۲Eu	171,78	۰٫۲۸۶	^{\r\} Ba		Eu		
۵۳۰٬۴۶	۱۴۷Nd	۹۱,۱۰۵	۰,۲۸۰	I				
۵۶۲,۶۸	۱۳۴Cs	8+ F,VT	۰,۹۷۶	۱۵۲Eu				
۵۶۸٬۷۷	۱۳۴Cs	8+ F,VT	۰,۹۷۶					
۶۰۴٬۴۷	۱۳۴Cs	8+ F,VT	۰,۹۷۶					
V9۵,۴۶	۱۳۴Cs	8 · 4,77	۰,۹۷۶					
۸۰۱٬۵۶	۱۳۴Cs	8 · 4,77	۰,۹۷۶					
۱۰۷۶٬۵۸	۸۶Rb	١٠٢٢	۰,۰ <i>۸۶</i>					
1110,74	۶۵Zn	۱۱۱۵٬۵۳۹	۰ ، ۰ ۵ ، ۰ ۴	۱۵۲Eu				
1880	¹⁷⁴ Cs	8 · 4,77	۰,۹۷۶					
1298/49	۱۴·La	1698,51	۶۵۴ [,] ۰	-				

Journal of Nuclear Science, Engineering and Technology

مجله علوم، مهندسی و فناوری هستهای دوره ۴۵، شماره ۴، جلد ۱۱۰، زمستان ۱۴۰۳، ص ۸۶–۹۵



				-			
راديوايزوتوپ	μCi	راديوايزوتوپ	μCi	راديوايزوتوپ	μCi	راديوايزوتوپ	μCi
$\mathbf{S}^{r_{\Delta}}$	7107	Y ^{4.}	۳۸۸,۷	Pm ^{۱۴۹}	۳۰۱٫۳	Ru ^{٩٧}	۲۰٬۵۷
Cr△≀	1044	۸۶Rb	۲۹۱/۵	La ^{1*.}	۱۹۳٫۳	Ce'fr	۱۹٬۰۵
Nd ^{۱۴۷}	984,90	Euιοτ	۲۶۲٬۵	Zn°۵	۱۱۳٬۹	Ba ^{\rr}	۱۶٬۸۸
Ce ^{1۴1}	8.518	Ru ^{\.v}	201/1	Ι'"	58/14	Rh``△	۱۵,۶۷
Sm'ar	۴۲۲٫۸	^m Rh ^{\.v}	۲۴۸٬۳۹	Eu¹⁰⁵	٢٢,٧١	$Zr^{2\Delta}$	۱۲/۶۸
Cs ¹⁸⁴	۳۹۹٬۵	\Pr^{16r}	۲۴۳٬۸	\Pr^{1}	۳۰,۱۴	Pm' ^۴	٩٫٩

جدول ۴. موجودی رادیوایزوتوپی ترکیب نمکی داغ به دست آمده از شبیهسازی با کد MCNPX



شکل ۶. طیف نرمالایز شدهٔ تابشهای گامای گسسته گسیلی از ترکیب نمکی پرتودهی شده، به دست آمده توسط کد نوشته شده در متلب بر اساس تخمین موجودی رادیوایزوتوپی نمک توسط کد MCNPX.



شکل ۷. مقایسهٔ طیف نمونهٔ مادر رقیقشده با زمان مرگ ۵٪ ثبت شده توسط آشکارساز HPGe به صورت تجربی (منحنی خطچین رنگ آبی) و در نتیجهٔ شبیهسازی (منحنی پیوسته رنگ نارنجی).

Journal of Nuclear Science, Engineering and Technology

مرگ بیشتر از ۸۰٪) و پس از آن (زمان مرگ کمتر از ۱۰٪) نشان داد که با کاهش زمان مرگ سیستم آشکارسازی پیکهایی جدیدی در طیف نمایان میشوند که متعلق به ردیاب عناصر بیشتری میباشند. همچنین ^{۱۴۱}Ce با پیک ۱۴۵/۴ keV میتواند به عنوان رادیوردیاب در بررسی روند جداسازی ^{۱۴۱}Ce انتخاب شود. نتایج این مقاله برای ردیابی عناصر مختلف در فرایندهای جداسازی انتخابی میتواند مفید باشد.

مراجع

- 1. Papagiannopoulou D. Technetium-⁹⁹m radiochemistry for pharmaceutical applications. Journal of Labelled Compounds and Radiopharmaceuticals. 2017;60(11):502-520. doi: https://doi.org/10.1002/jlcr.3531.
- Nawar M.F, Türler A. New strategies for a sustainable ⁹⁹mTc supply to meet increasing medical demands: Promising solutions for current problems. Frontiers in Chemistry. 2022;10.
- Tabasi M, Samani B, Shirvani Arani S, Ghannadi Maragheh M, Mohammadi A. Assessment of Mo-⁹⁹ radioisotope supply chain using LEU in Iran. Journal of Nuclear Science and Technology (JonSat). 2021;42(3):104-110.
- Cozzi A, Johnson F. Waste Management Strategies for Production of Mo-99. Savannah River Site (SRS). Aiken, SC (United States). 2017.
- Management of radioactive waste from ⁹⁹Mo production by nuclear fission, IAEA-TECDOC-1051, W. T. Section, International Atomic Energy Agency. 2013.
- Hosseini S.E, Ghannadi-Maragheh M, Bahrami-Samani A, Shirvani-Arani S. Evaluation of promethium-147 production as a by-product of the fission molybdenum-99 process in Tehran research reactor. Radiochimica Acta. 2021;109(4):295-300. doi: doi:10.1515/ract-2020-0081.
- Nuclear Energy Agency. JANIS 4.1. https://www.oecdnea.org/jcms/pl_39910/janis accessed.
- Yang L, Sundaresan G, Sun M, Jose P, Hoffman D, McDonagh P.R, Lamichhane N, Cutler C.S, Perezc B.J.M, Zweit J. Intrinsically radiolabeled multifunctional cerium oxide nanoparticles for in vivo studies. Journal of Materials Chemistry B. 2013;1(10):1421-1431. doi: 10.1039/C2TB00404F.
- Vimalnath K.V, Rajeswari A, Sarma H.D, Dash A, Chakraborty S. Ce-141-labeled DOTMP: A theranostic option in management of pain due to skeletal metastases. Journal of Labelled Compounds and Radiopharmaceuticals. 2019;62(4):178-189. doi: https://doi.org/10.1002/jlcr.3710.

در طیف نتیجه شده از شبیهسازی (شکل ۷)، حدود ۵۶ پیک تشخیص داده شد. در این بین ۱۷ پیک مشخصاً به رادیوایزوتوپ خاصی مربوط میباشند. با توجه به ردیابهای تشخیص داده شده، عملکرد ۱۵ عنصر در فرایند قابلردیابی است. علاوه بر عناصر قابل دیابی در آزمون آزمایشگاهی، نتایج شبیهسازی نشان میدهد که ۶ عنصر Zr ،I ،Pm ،Ru ،Sm و Nb نیز به واسطهٔ رادیوایزوتوپهای ^{۱۵۳}Sm (پیک انرژی keV ^{۹۷}Ru ،(۱۰۴ و ^{۱۰۳}Ru و ^{۹۷}Ru (۱۰۴ (به ترتیب پیکهای ۲۱۶keV و ^{۱۴۹}Pm (پیک انرژی ۲۸۶keV)، ۱۳۱۱ (پیک انرژی ۳۶۶keV)، ۲^۵ (پیک انرژی ۷۵۸keV) و ^{۹۵}Nb (پیک انرژی ۷۶۶keV) ^{۹۵}Zr می توانند در هر نوع فرایند رادیوشیمیایی روی خوراک مادر، قابلرديابي باشند. ميتوان اينطور نتيجه گرفت كه نتايج شبیهسازی میتواند تا حدود زیادی در تخمین ردیاب مناسب هر عنصر مفید باشد. در واقع پیش از هر اقدام تجربی، لازم است محاسبات اینچنینی انجام شود تا ضمن تشخیص ردیاب مناسب بتوان آنالیز دقیقی از فرایند شیمیایی انتخابی داشت.

۴. نتیجهگیری

پسماندهای مایع در تأسیسات تولید ^{۹۹}، حاوی انواع مختلفی از رادیوایزوتوپها هستند که عمدهٔ آنها در صورت جداسازی و تخلیص، میتوانند کاربردهای متنوعی در حوزههای پزشکی، صنعتی، کشاورزی و تحقیقاتی داشته باشند. ^{۱۴۱}Ce و ^{۱۴۴} دو رادیوایزوتوپ مهم عنصر سریم هستند که در چنین پسماندهایی موجود میباشند.

برای جداسازی ^{۱۴۱}Ce (به صورت عنصری) از محلول پسماند میتوان از ستونهای کروماتو گرافی استفاده کرد. برای بررسی عملکرد مراحل مختلف جداسازی ^{۱۴۱}Ce، ردیابی باید بر اساس تابش گامای رادیوردیاب مناسب آن انجام شود. به دلیل وجود رادیوایزوتوپهای مختلف در محلول پسماند، آنالیز طیفی باید به دقت انجام شود تا پیک انتخابی منحصراً متعلق به رادیوردیاب باشد.

به دلیل در دسترس نبودن پسماند، در این مقاله ساخت محلول معادل پسماند به شکل سرد و اضافه نمودن رادیوردیابهای مناسب، تولید شده به روش فعالسازی نوترونی، مورد بررسی قرار گرفت. در اینجا انتخاب رادیوردیاب طی شبیهسازی با کد MCNPX بررسی شد و نتایج با اندازه گیریهای تجربی مقایسه شد. بررسی طیف نمونهٔ مادر، تولید شده به روش فعالسازی نوترونی، بدون رقیقسازی (زمان مجله علوم، مهندسی و فناوری هستهای



- Soltani F, Samani A.B, Sadeghi M, Arani S.S, Yavari K. Production of cerium-141 using ceria and nanoceria powder: a potential radioisotope for simultaneous therapeutic and diagnostic applications. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2015;303(1):385-391, 2015/01/01. doi: 10.1007/ s10967-014-3335-3.
- Ayodele O.L, Sanusi K.O, Kahn M.T. Nuclear battery: a source of environmentally friendly energy. Journal of Engineering, Design and Technology. 2018.
- 12. Fenske E.K, Roach B.D, Hexel C.R, Glasgow D.C, Stewart I.R, Partridge J.D, Giaquinto J.M. Inline gamma-spectrometry of fission product elements after rapid high-pressure ion chromatographic separation. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2020;324(2):759-771. 2020/05/01. doi: 10.1007/s10967-020-07103-x.
- 13. Lindstrom R.M, Fleming R.F. Dead time, pileup, and accurate gamma-ray spectrometry. 1995.
- 14. Ramebäck H, Lagerkvist P, Holmgren S, Jonsson S, Sandström B, Tovedal A, Vesterlund A, Vidmar T, Kastlander J. On the accuracy of gamma spectrometric isotope ratio measurements of uranium. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment. 2016;815:57-61.

- 15. Morley S.M, Seiner B, Finn E, Greenwood L, Smith S.C, Gregory S, Haney M, Lucas D, Arrigo L, Beacham T, Swearingen K, Friese J, Douglas M, Metz L. Integrated separation scheme for measuring a suite of fission and activation products from a fresh mixed fission and activation product sample. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2015;304(2):509-515. 2015/05/01. doi: 10.1007/ s10967-014-3826-2.
- 16. Morrison S.S, Clark S.B, Eggemeyer T.A, Finn E.C, Hines C.C, King M.D, Metz L.A, Morley S.M, Snow M.S, Wall D.E, Seiner B.N. Activation product analysis in a mixed sample containing both fission and neutron activation products. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 2017;314(3):2501-2506. 2017/12/01. doi: 10.1007/ s10967-017-5563-9.
- 17. Abedi E, Ebrahimkhani M, Davari A, Mirvakili S.M, Tabasi M, Ghannadi Maragheh M. Neutronic and thermal-hydraulic analysis of fission molybdenum-99 production at Tehran Research Reactor using LEU plate targets. Applied Radiation and Isotopes. 2016;118:160-166.

COPYRIGHTS

©2021 The author(s). This is an open access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution (CC BY 4.0), which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, as long as the original authors and source are cited. No permission is required from the authors or the publishers.



استناد به این مقاله

بهرامی سامانی، علی، طاهری، بیژن، دهقان، ایمان، شیروانی آرانی، سیمیندخت. (۱۴۰۳)، شبیهسازی و تعیین رادیوردیاب مناسب جهت مطالعهٔ رفتار عنصر سریم در فرایند رادیوشیمیایی. مجله علوم، مهندسی و فناوری هستهای، ۱۱۰(۴)، ۸۶–۹۵. DOI: https://doi.org/10.24200/nst.2024.1615، ۹۵–۹۵. Url: https://jonsat.nstri.ir/article_1615.html

مجله علوم، مهندسی و فناوری هستهای دوره ۴۵، شماره ۴، جلد ۱۱۰، زمستان ۱۴۰۳، ص ۸۶–۹۵