



## بررسی امکان استفاده از تکنیسیوم ۹۹ بجای بور ۱۰ در مجتمع‌های سوخت

علی پذیرنده<sup>۱\*</sup>، حسین پورسلیمانی<sup>۲</sup>

۱- گروه فیزیک، دانشگاه تهران، صندوق پستی: ۱۹۴۳-۱۹۳۹۵، تهران - ایران

۲- واحد علوم تحقیقات، دانشگاه آزاد اسلامی، تهران - ایران

**چکیده:** تبدیل محصولات شکافت با نیمه عمر طولانی یکی از موانع مهم در توسعه و کاربرد انرژی هسته‌ای در جهان است. در این مقاله، نتایج بررسی استفاده از محصولات شکافت با نیمه عمر طولانی و دارای سطح مقطع جذب مناسب بجای سم قابل سوخت در مجتمع‌های سوخت رآکتور آب سبک عرضه خواهد شد. ایزوتوپهای مورد نظر شامل آنهائی می‌شود که نیمه عمر بیش از ۵۰۰ سال دارند، از جمله  $^{94}\text{Nb}$ ،  $^{93}\text{Zr}$ ،  $^{99}\text{Tc}$ ،  $^{107}\text{Pd}$ ،  $^{126}\text{Sn}$ ،  $^{129}\text{I}$ ،  $^{135}\text{Cs}$ . هدف اصلی ما به کاربردن ایزوتوپی با نیمه عمر طولانی، سطح مقطع نسبتاً بزرگ و دارای خاصیت فلزی است که در ترکیب، مشکلات شیمیایی ایجاد نکند. در محاسبات بکار رفته، از کدهای ORIGEN، CITATION، WIMS و کتابخانه‌های ENDF/B6 استفاده شده است. نتایج محاسبات نشان می‌دهند که می‌توان از  $^{99}\text{Tc}$  بجای بور در ترکیب مشابه و رفتار مشابه استفاده کرد.

**واژه‌های کلیدی:** تکنیسیوم ۹۹، بور ۱۰، مجتمع‌های سوخت، امکان‌سنجی، صنعت هسته‌ای، محصولات شکافت هسته‌ای،

سم‌های سوختنی، شبیه‌سازی، رآکتورهای خنک‌شونده با آب، ایزوتوپ‌ها

## Study on Feasibility Using $^{99}\text{Tc}$ as Burnable Poison Instead of $^{10}\text{B}$ in Nuclear Fuel Assemblies

A. Pazirandeh<sup>\*1</sup>, H. Poor-Solaimani<sup>2</sup>

1- Department of Physics, Tehran University, P.O. Box: 19395-1943, Tehran - Iran

2- Science and Research Institute, Azad University, Tehran - Iran

**Abstract:** Transmutation of long-lived fission products is one of the key issues in development and utilization of nuclear power in the world. In the study underway, we are trying to replace the burnable poison in LWR by a mixture of some LLFPs. The main fission isotope products which are included in the high level waste (HLW) with the half life more than 500 years are:  $^{99}\text{Tc}$ ،  $^{107}\text{Pd}$ ،  $^{126}\text{Sn}$ ،  $^{129}\text{I}$ ،  $^{135}\text{Cs}$ . Our main objective is to employ such an isotope not only with long half life but also with high neutron absorption cross section and appropriate metallic properties within chemical structure. For the matter of calculations, ENDF/B6 as nuclear data library and a series of codes such as WIMS, CITATION, and ORIGEN were used. It has been shown that  $^{99}\text{Tc}$  could be used instead of boron in reactor.

**Keywords:** technetium 99, boron 10, fuel assemblies, feasibility studies, nuclear industry, fission products, burnable poisons, simulation, water cooled reactors, isotopes

## ۱- مقدمه

پاره‌های شکافت و ایزوتوپیهای حاصل از آنها، از موانع بزرگ در صنعت انرژی هسته‌ای و توسعه آنهاند. در بین این محصولات آنهایی که دارای نیمه‌عمر طولانی‌تر و قابلیت تحرک بیشتریند مشکلات زیادی در طراحی روشهای دفن پسماندهای رادیواکتیو ایجاد می‌کنند. از جمله محصولات آن که می‌توان نام برد عبارتند از <sup>137</sup>Cs، <sup>129</sup>I، <sup>126</sup>Sn، <sup>107</sup>Pd، <sup>99</sup>Tc، <sup>93</sup>Nb، <sup>92</sup>Zr، <sup>90</sup>Se، <sup>108</sup>Ag، <sup>108</sup>Tb، <sup>107</sup>Ho که نیمه‌عمرهای چند صد هزار سال دارند (۱ و ۲). بویژه آن دسته از این محصولات که قادرند در خاک و مواد محافظ نفوذ کرده وارد چرخه طبیعت شوند و <sup>99</sup>Tc از جمله این محصولات است. اثرهای زیست محیطی بعضی از این محصولات بسیار جدی است (۲ و ۳). <sup>99</sup>Tc و تکنیسیوم در آبهای زیرزمینی حل می‌شوند و به آسانی مهاجرت می‌کنند (۴). تبدیل محصولات شکافت به ایزوتوپیهای با نیمه‌عمر کوتاه و پایدار کاری بسیار دشوار ولی ایده‌آل برای حفظ محیط زیست است. رآکتورهای حرارتی و دستگاههای شتابدهنده شکافتهای انفجاری<sup>(۱)</sup> سرب که همراه مواد سوختی‌اند، وسیله مناسبی برای تبدیل محصولات شکافت به ایزوتوپیهای با نیمه‌عمر کوتاه است (۵ و ۶). در سالهای اخیر طراحی و ساخت رآکتورهای حرارتی به منظور تبدیل محصولات شکافت با نیمه‌عمر بلند همراه سوخت، برای تبدیل ایزوتوپی قوت گرفته است. اهداف این بررسی عبارتند از:

- ارزیابی طرز استفاده از محصولات شکافت با نیمه‌عمر بلند (LLFP)<sup>(۲)</sup> بعنوان سم قابل سوخت

- تبدیل این محصولات به ایزوتوپیهای با نیمه‌عمر کوتاه (SLFP)<sup>(۳)</sup>

در این بررسی امکان استفاده از محصولات شکافت بجای بور در میله‌های سم قابل سوخت در مجتمع‌های سوخت رآکتور نوع VVER-1000 که اثرهای رادیواکتیویته‌ای آن در چرخه اول همانند بور عمل کند، مدنظر بوده است. جداسازی <sup>129</sup>I در بازفراوری سوخت، یک روش صنعتی شناخته شده است. در حال حاضر <sup>129</sup>I به دست آمده را بصورت کاملاً رقیق شده به دریاها می‌ریزند و در بیوسفر پخش می‌شود. متأسفانه بعلت دارا بودن نیمه‌عمر ۱۶ میلیون سال، <sup>129</sup>I بتدریج انباشته می‌شود. اگر <sup>129</sup>I

مخازن زیرزمینی پسماندها اضافه شود، همراه دیگر محصولات شکافت دز دراز مدت ایجاد می‌نماید.

تکنیسیوم ۹۹ یکی از محصولات شکافت با نیمه‌عمر بسیار طولانی دویست هزار سال است. بنابراین نمی‌توان آن را در مخازن زیرزمینی مدفون کرد. تبدیل کردن آن به تکنیسیوم ۱۰۰ نیازمند شار بالا است. برای این بررسی، رآکتور قدرت نیروگاه ۳۰۰۰ مگاوات حرارتی بوشهر را مدنظر قرار دادیم که شار اسمی آن  $1.0 \times 10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>.s است.

## ۲- ضوابط انتخاب LLFP

در جریان این مطالعه و بررسی، کلیه LLFPها را مورد ارزیابی قرار داده‌ایم تا دریابیم، اولاً از نظر سطح مقطع جذب کدام مناسبترند و تا چه اندازه می‌توانند جایگزین بور شوند. دوم از نظر جداسازی، شیمیایی و مسائل متالورژی تا چه اندازه سازگاری دارند. سوم، آیا نیمه‌عمر آنها جزء آن دسته از محصولات است که صدها هزار سال باقی خواهند ماند و اثر زیست محیطی خواهند داشت؟<sup>(۴)</sup>

بر اساس این ضوابط، ایزوتوپیهای <sup>137</sup>Cs، <sup>129</sup>I، <sup>107</sup>Pd، <sup>108</sup>Tb، <sup>107</sup>Ho، <sup>108</sup>Ag، <sup>107</sup>Sn، <sup>107</sup>Pd، <sup>137</sup>Cs انتخاب می‌شوند. بین این تعداد ایزوتوپ <sup>137</sup>Cs دارای سطح مقطع جذب کم (۸۷ بارن) و ضمناً همراه آن <sup>137</sup>Cs نیز جدا می‌شود که در مقایسه نیمه‌عمر زیادی ندارد. <sup>129</sup>I و <sup>107</sup>Pd از همه مناسبترند، ولی در مرحله محاسبات مشخص شد که در کتابخانه WIMS سطح مقطع جذب <sup>129</sup>I یافت نمی‌شود. لذا کار را با <sup>107</sup>Pd شروع کردیم. ضمناً یادآور می‌شود که علاوه بر جذب حرارتی و رزونانس، واکنش (n,2n) نیز رخ می‌دهد که در تبدیل ایزوتوپی سهم اندکی دارد. اما <sup>107</sup>Pd نیز نیمه‌عمر طولانی دارد (۳).

## ۳- مدل محاسبه و شبیه‌سازی

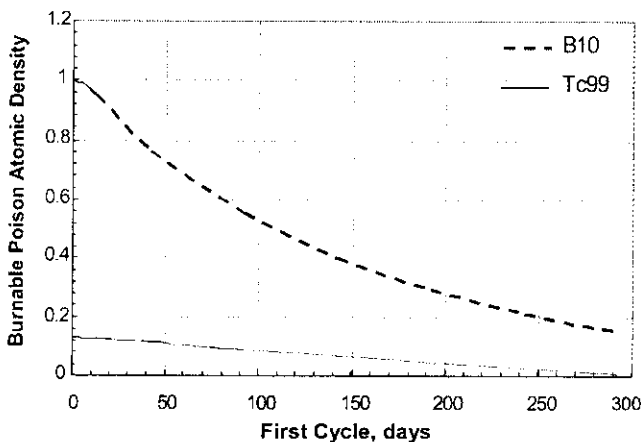
در این مدل محاسباتی، چند نکته اساسی در نظر گرفته شده است:

- جایگزینی یکی از محصولات شکافت با نیمه‌عمر بلند بجای بور در مجتمع‌های سوختی بعنوان سم قابل سوخت تا بگونه‌ای عمل کند که رآکتیویته منفی معادل بور در طول مدت چرخه اول ایجاد نماید.

شده است. ضمناً، بطوریکه گفته شد سم قابل سوخت حاوی بور به ترتیب ۰/۰۲، ۰/۰۳۶، ۰/۰۵ گرم در سانتی متر مکعب در مجتمع‌های مختلف سوخت منظور شده است. بدیهی است که محاسبات سلولی برای کلیه سلولها باید انجام گیرد. بدین ترتیب، محاسبات سلولی برای تعیین پارامترهای نوترونیک سلولها در دو گروه انرژی در زمان‌های مختلف کارکرد رآکتور انجام گرفت. در طول مدت چرخه اول، محصولات شکافت و آکتیوها تغییرات ویژه خود را دارند، بنابراین اثرهای تجمعی آنها در محاسبات سلولی منظور شده‌اند. در طول مدت چرخه اول قدرت رآکتور ثابت و یکنواخت فرض شده است.

پس از انجام محاسبات سلولی در هر مرحله، برای تعیین توزیع شار و ضریب تکثیر از گد سه بعدی CITATION در دو گروه انرژی، در یک ششم قلب استفاده شده و اثرهای کلیه مجتمع‌های سوخت در محاسبات مورد نظر بوده است.

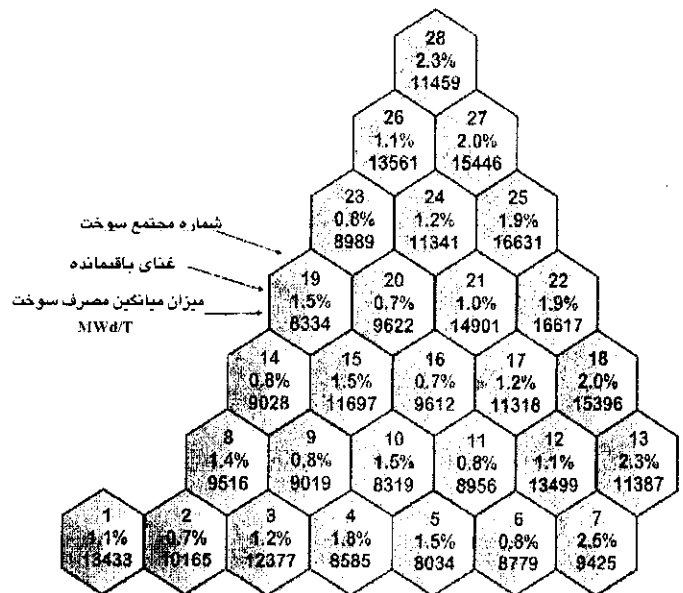
برای تعیین چگالی اتمی کلیه ایزوتوپهای موجود تولید شده در قلب با بهره‌گیری از نتایج بدست آمده از کد ORIGEN و با توجه به چیدمان از پیش تعیین شده، تغییرات را در مقاطع معین چرخه اول بدست آورده‌ایم که در شکل ۲ دیده می‌شود. این مراحل محاسباتی برای هر دو سم قابل سوخت بور ۱۰ و <sup>۱۳۷</sup>Cs انجام گرفت. به علت پیچیدگی محاسبات ابتدا فرض کردیم که سطح غلظت اسید بوریک در خنک‌کننده ثابت است و ضمناً اثرهای زینان و ساماریوم را نیز منظور کردیم. تغییرات  $k_{eff}$  برای هر دو نوع سم در شکل ۳ آورده شده است.



شکل ۲- کاهش غلظت بور ۱۰ و تکسیوم ۹۹ در طول مدت چرخه اول قلب رآکتور بوشهر.

نرخ مصرف محصول شکافت با نیمه عمر طولانی (LLFP) همتراز با نرخ مصرف بور باشد.  
در پایان چرخه اول باید مقدار جزئی از محصول شکافت با نیمه عمر طولانی در میله‌های سوخت باقی بماند تا بتواند از نظر ایمنی قابل قبول حاشیه ایمنی باشد.  
بور در رآکتور قدرت VVER-1000 به سه صورت وجود دارد (۱) بصورت اسید بوریک محلول در خنک‌کننده (۲) به صورت ترکیب CrB+Al در بعضی از مجتمع‌های سوخت به یکی از سه مقدار ۰/۰۲، ۰/۰۳۶، ۰/۰۵٪ در هر سانتی متر مکعب (۳) به صورت محصولات شکافت هرچند به مقدار جزئی است. وقتی بجای بور از <sup>۹۹</sup>Tc بعنوان سم قابل سوخت در میله‌های مجتمع سوخت استفاده کنیم، <sup>۹۹</sup>Tc خود نیز یکی از محصولات شکافت خواهد بود که در خروجی OREGIN همراه با محصولات شکافت آورده می‌شود.  
با در نظر گرفتن این ضوابط، محاسبات به ترتیب زیر انجام گرفت:

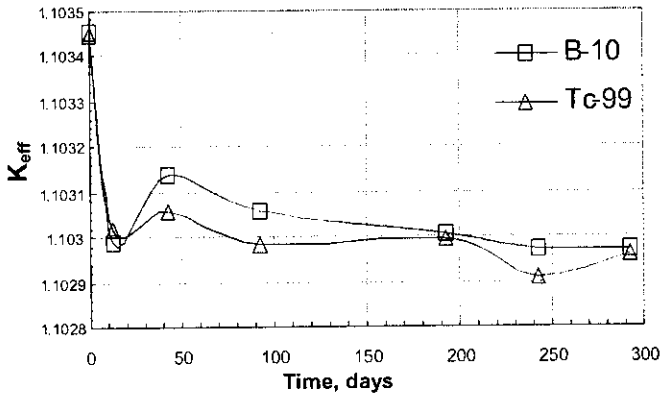
محاسبات سلولی قلب رآکتور VVER 1000 را به کمک کد WIMS با توجه به ساختار شش ضلعی مجتمع‌های سوخت انجام دادیم. مجتمع‌های سوخت در سه نوع با غنای ۱/۱٪، ۲/۴٪، ۳/۶۲٪ در قلب رآکتور به کار می‌روند. در مدیریت چیدمان، میله‌های سوخت بطور متقارن در قلب توزیع شده‌اند. یک نوع چیدمان در شکل ۱ نشان داده



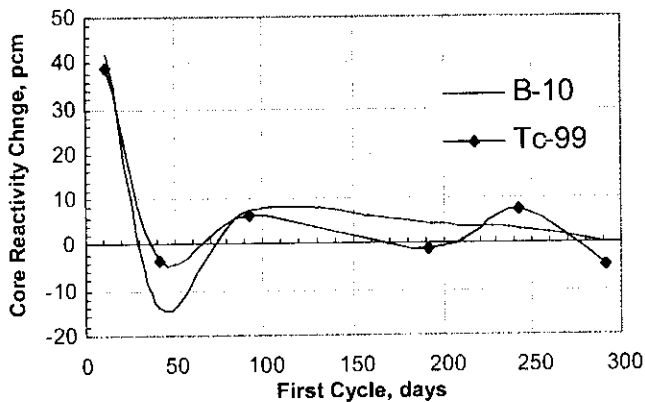
شکل ۱- یک ششم قلب رآکتور بوشهر جهت محاسبات معادلات بخش (در چرخه اول).



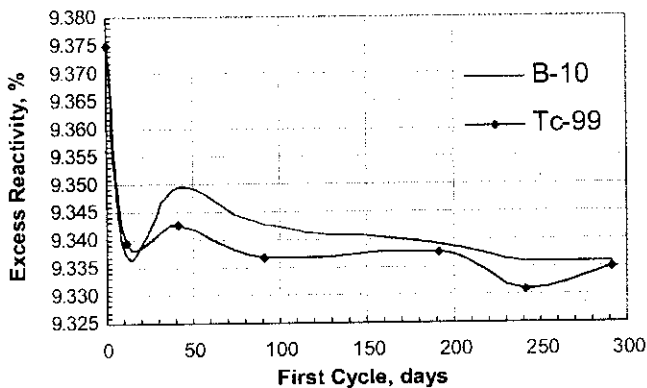
شکل ۳ تغییرات شار دو گروهی رسم شده‌اند. پس از خاتمه محاسبات برای چرخه اول، بجای بور در مجتمع سوخت از  $^{99}\text{Tc}$  استفاده کردیم به نحوی که رآکتیویته منفی ایجاد شود و  $k_{\text{eff}}$  مشابه حالت بوردار گردد. با انتخاب مناسب چگالی  $^{99}\text{Tc}$  در پایان چرخه مقدار بور باقیمانده ۱۵/۰۵٪ و برای  $^{99}\text{Tc}$  ۲/۴٪ بود. تغییرات  $k_{\text{eff}}$  و  $\rho$  برای بور و تکنیسوم در شکل‌های ۴ تا ۶ نشان داده شده‌اند.



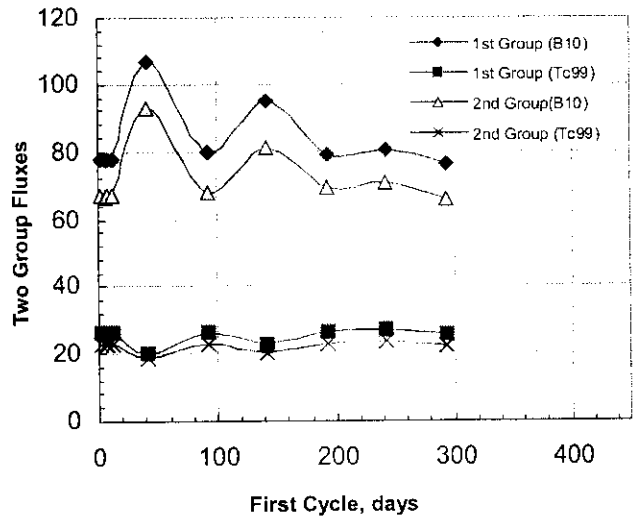
شکل ۴- تغییرات ضریب تکثیر موثر در طول مدت چرخه اول برای بور ۱۰ و تکنیسوم ۹۹.



شکل ۵- تغییرات رآکتیویته در طول چرخه اول برای بور ۱۰ و تکنیسوم ۹۹.



شکل ۶- تغییرات رآکتیویته مازاد در طول چرخه اول.



شکل ۲- تغییرات شار دو گروهی در طول مدت چرخه اول برای بور ۱۰ و تکنیسوم ۹۹.

#### ۴- محاسبات و نتایج

بطوریکه اشاره شد، در آغاز چرخه سوخت (BOC) محاسبات سلولی در مجتمع سوخت حاوی سم قابل سوخت B4C به میزان ۰/۰۵ گرم در سانتی‌متر مکعب به کمک کُد WIMS در  $\frac{1}{4}$  قلب رآکتور شکل ۱ انجام گرفت. مقطع‌های مواد در سلول، در دمای کار رآکتور با توجه به دمای سوخت، غلاف و خنک‌کننده حساب شد. سپس پارامترهای دو گروهی را در کُد CITATION قرار داده و توزیع شار و  $k_{\text{eff}}$  را در آغاز کار رآکتور حساب کردیم. با اجرای برنامه کامپیوتری OREGIN کلیه محصولات شکافت و آکتیویته‌ها را پس از دو روز کار به دست آورده، سپس تعداد آکتیویته‌ها و محصولات شکافت را بعنوان ورودی به کُد WIMS داده‌ایم و محاسبات، برای هر چند روز کارکرد رآکتور، طبق جدول ۱ انجام گرفت. خروجی WIMS به کُد CITATION داده شد و محاسبات در روزهای ۵ و ۸ و ۱۲ و ۴۲ و ۹۲ و ۱۴۲ و ۲۴۲ و ۲۹۲ تکرار شد. در شکل ۲ تغییرات بور ۱۰ و تکنیسوم ۹۹ دیده می‌شود. در

جدول ۱- تغییرات چگالی اتمی سم قابل سوخت برای دو حالت بور ۱۰ و تکنیسوم ۹۹.

تعداد روزها	۲	۵	۸	۱۲	۴۲	۹۲	۱۴۲	۱۹۲	۲۴۲	۲۹۲
$^{10}\text{B}$	۰.۰۹۸۷	۰.۰۹۸۷	۰.۰۹۶۸	۰.۰۹۵۱	۰.۰۷۶۷	۰.۰۵۵۷	۰.۰۴۰۴	۰.۰۲۹۲	۰.۰۲۱۰	۰.۰۱۵۱
$^{99}\text{Tc}$	۸۸.۶	۸۸.۱۱	۸۷.۳۹	۸۶.۲	۱.۷۷	۶۲	۴۷.۲۱	۳۲.۰۷	۱۷.۴۰	۲.۱۷

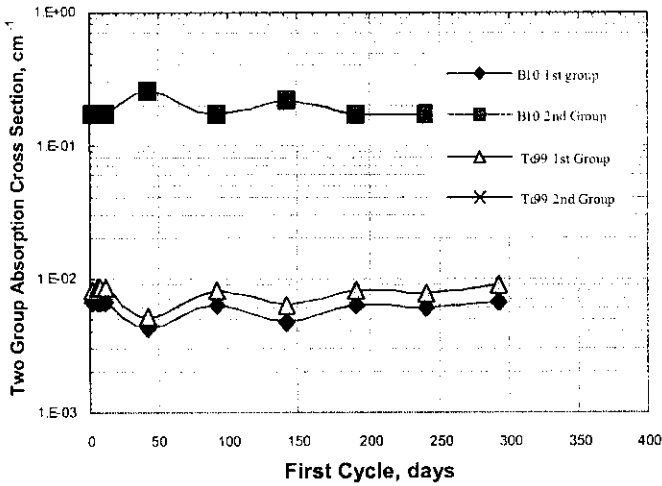


۵- بحث و نتیجه گیری

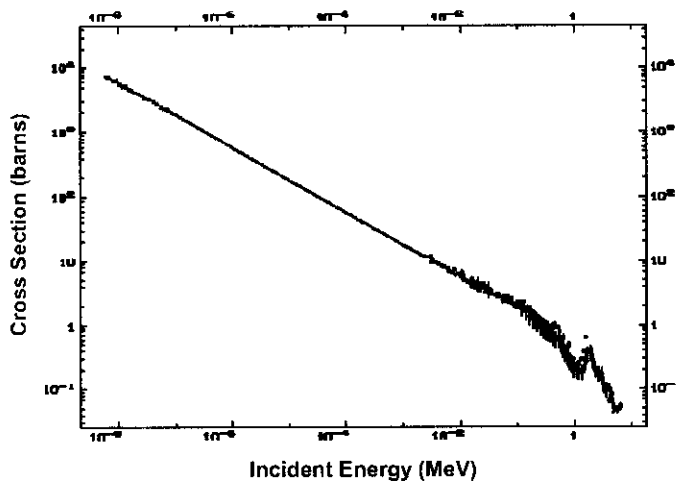
بطوری که در شکل‌های ۴، ۵ و ۶ مشاهده می‌شود تغییرات  $K_{eff}$  و تغییرات رآکتیویته، همچنین رآکتیویته مازاد قلب رآکتور به نحوی است که در ابتدای کار رآکتور در اثر انباشت زینان و ساماریوم علی‌رغم مصرف شدن سم قابل سوخت،  $K_{eff}$  افت می‌نماید. لازم به یادآوری است که در محاسبات، چگالی اسیدبوریک را در ۱۴۰۰ ppm ثابت نگهداشته و حفظ کردیم. افت در  $K_{eff}$  برای هر دو جاذب  $^{10}B$  و  $^{99}Tc$  کم و بیش مشابه است که در شکل ۴ مشاهده می‌شود و ناشی از تغییرات سطح مقطع ماکروسکوپی جذب است (شکل ۷). تغییرات سطح مقطع میکروسکوپی جذب بور ۱۰ و تکنسیوم ۹۹ در شکل‌های ۸-الف و ۸-ب داده شده‌اند. مزیت تکنسیوم ۹۹ در این است که دارای تشدید (رزنانس) است که طیف نوترون را در هر نقطه شبیه به نقاط دیگر می‌نماید ولی محاسبات را دشوارتر می‌کند. برای حفظ توان و جذب بدون شکافت اضافی لازم است شار بیشتری در محیط ایجاد شود و افزایش شار در شکل ۳ مشاهده می‌شود، حتی مصرف سوخت نیز بیشتر می‌گردد. افزایش آرام  $K_{eff}$  به دلیل جذب زینان است زیرا شار افزایش زیادی یافته است. تغییر در منحنی رآکتیویته در گذارهای آهسته نقش اسیدبوریک را بعنوان عامل کنترل مؤثر برای توان قلب رآکتور نشان می‌دهد.

باید توجه داشت که در کارگردانی واقعی رآکتور با اعمال تنظیم چگالی اسید بوریک، شاهد افت و خیزهایی در  $K_{eff}$  هستیم. علت اصلی آن این است که قلب رآکتور بزرگی چون VVER-1000 که آن را می‌توان متشکل از چندین قلب کوچک وابسته به هم تصور کرد، ضریب تکثیر مؤثر ( $K_{eff}$ )، سطح قدرت در هر یک قلب‌های کوچک متفاوت از دیگر قلب‌ها است و همین شکل بزرگ قلب باعث می‌شود که تغییرات دینامیکی هر قسمت تقریباً مستقل از قسمتهای دیگر باشد و عامل پیچیدگی در محاسبات گردد.

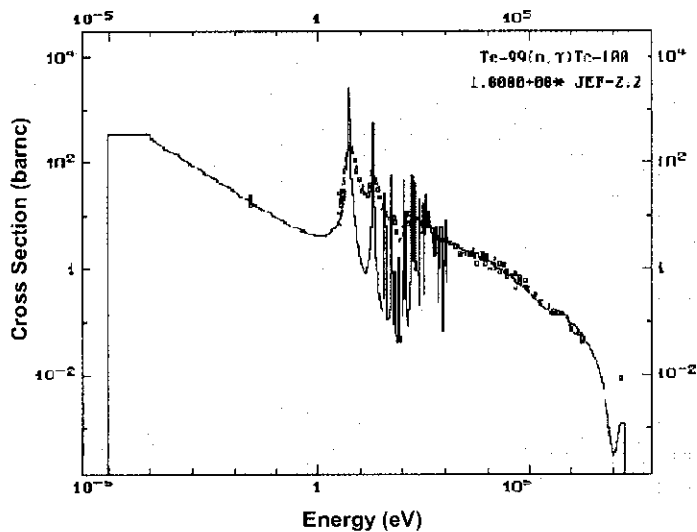
محاسبات بعدی با انجام تغییرات چگالی اسیدبوریک توزیع کامل سم قابل سوخت و همچنین مدیریت سوخت در حال پیگیری است. در محاسبات آینده متغیرهای حالت سیستم و اثرهای پس خوران (فیدبک) و میزان عوامل دینامیکی دخالت داده خواهد شد.



شکل ۷- تغییرات سطح مقطع جذب دو گروهی در طول چرخه اول برای بور ۱۰ و تکنسیوم ۹۹.



شکل ۸ (الف) - تغییرات سطح مقطع  $(n,\alpha)$  بور ۱۰ بر حسب انرژی نوترون.



شکل ۸ (ب) - تغییرات سطح مقطع جذب تکنسیوم ۹۹ بر حسب انرژی نوترون.



### بی نوشت ها:

- ۱- Spallation Neutron Source
- ۲- Long Lived Fission Product

### ۳- Short Lived Fission Product

سطح مقطع های جذب گروهی آنها در کتابخانه ویمز یافت می شود-۴

### References:

1. M. Setiawan Budi and K. Asashi, "Study on multi- recycle transmutation of LLFP in light water reactor," *Annals of Nuclear Energy*, **28**, 1789-1797 (2001).
2. M. Igashira and T. Ohsaki, "Neutron economy and nuclear data for transmutation of long-lived fission products," *Progress in Nuclear Energy*. Vol. **40**, No. 3-4, 555-560 (2002).
3. C. Ingelbrecht, J. Lupo, K. Raptis, Altitzoglou, G. Noguere, "<sup>129</sup>I targets for studies of nuclear waste transmutation," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **480**, 204-208 (2002).
4. Setiawan M. Budi and K. Asashi, "Recycle transmutation of MA and LLFP using BWR for sustaining geologic disposal," *Progress in Nuclear Energy*, Vol. **40**, No. 3-4, 465-472 (2002).
5. K. Aizawa, "R & D activities based on fast reactor cycle technologies for transmutation of TRU and LLFP by JNC," *Progress in Nuclear Energy*, Vol. **40**, No. 3-4, 349-356 (2002).
6. "Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation Seventh Information Exchange Meeting," Jeju, Republic of Korea, 14-16 (October 2002).