



تعیین کیفی و کمی تکنسیم-۹۹ در پسماند تغلیظ شده نیروگاه اتمی بوشهر

رامین یآوری^{۱*}، کمال صابریان^۱، علی مالکی فارسانی^۲، بهرام سلیمی^۱، بهمن سلیمانزاده^۲، امیر حیدری^۱، محسن طبسی^۱

۱. پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، سازمان انرژی اتمی ایران، صندوق پستی: ۱۱۳۶۵-۸۴۸۶، تهران- ایران

۲. شرکت پسمانداری صنعت هسته‌ای ایران، سازمان انرژی اتمی ایران، کد پستی: ۱۴۳۷۶۴۳۵۳۱، تهران- ایران

*Email: ryavari@aeoi.org.ir

مقاله پژوهشی

تاریخ دریافت مقاله: ۱۴۰۲/۱۲/۲۳ تاریخ بازنگری مقاله: ۱۴۰۳/۰۲/۱۲ تاریخ پذیرش مقاله: ۱۴۰۳/۰۲/۱۹

چکیده

تکنسیم-۹۹ به‌عنوان یکی از آلاینده‌های پرتوزای سمی و خطرناک موجود در پسماندهای هسته‌ای باید پیش از دفن نهایی به لحاظ کمی و کیفی شناسایی شود. در کار تحقیقاتی حاضر، تکنسیم-۹۹ موجود در فاز آبی پسماند تغلیظ‌شده نیروگاه اتمی بوشهر شناسایی و تعیین مقدار شد. برای رسیدن به این هدف، ابتدا سزیم-۱۳۴ و ۱۳۷ با استفاده از جاذب پتاسیم کبالت هگزاسیانوفرات (II) جداسازی و سپس تریتیم آن طی آمایش حرارتی در دمای 60°C از محیط حذف گردید و در نهایت تکنسیم-۹۹ موجود در محیط با حذف رادیوایزوتوپ‌های بتازایی چون کبالت-۶۰، آهن-۵۵ و نیکل-۶۳ با استفاده از فرایند رسوب‌گیری با هیدروکسید آهن (III) تخلیص شد. نمونه‌ها با استفاده از اسپکترومتري گاما و شمارشگر سنتیلاسیون مایع مورد ارزیابی کمی و کیفی قرار گرفتند. نتایج حاصله نشان داد که تکنسیم-۹۹ موجود در محیط از خلوص رادیوشیمیایی بالایی برخوردار بوده و سایر رادیوایزوتوپ‌ها با راندمان حدوداً ۱۰۰ درصد از محیط حذف شده‌اند. همچنین طیف بتای نمونه در تطابق کامل با طیف بتای نمونه‌های استاندارد بود. بازدهی کل فرایندهای پیشنهادی با استفاده از افزایش ردیاب تکنسیم-۹۹m به نمونه اولیه، معادل ۸۰/۶۹٪ به‌دست آمد و اکتیویته ویژه تکنسیم-۹۹ با احتساب راندمان ۹۳ درصدی شمارشگر سنتیلاسیون مایع و بازدهی فرایندها $(10554.13 \text{ Bq.L}^{-1})$ بر لیتر محاسبه گردید.

کلیدواژه‌ها: تکنسیم-۹۹، تکنسیم-۹۹m، پسماند نیروگاه اتمی بوشهر، خالص‌سازی، بهره‌فرایندها، اکتیویته ویژه

Qualitative and quantitative determination of technetium-99 in the concentrated waste of Bushehr nuclear power plant

R. Yavari^{1*}, K. Saberian¹, A. Maleki Farsani², B. Salimi¹, B. Soleimanzade², A. Heydari², M. Tabasi¹

1. Nuclear Fuel Cycle Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, AEOL, P.O.Box: 11365-8486, Tehran - Iran

2. Iran Radioactive Waste Company, AEOL, Postal Code: 1437643531, Tehran - Iran

Research Article

Received: 13.03.2024,

Revised: 01.05.2024,

Accepted: 08.05.2024

Abstract

Technetium-99, present in nuclear waste as one of the toxic and hazardous radioactive pollutants, must be identified quantitatively and qualitatively before final disposal. In this research, Technetium-99 in the aqueous phase of the concentrated waste from the Bushehr nuclear power plant was both qualified and quantified. To achieve this, Cesium-134 and 137 were initially separated using potassium cobalt hexacyanoferrate (II) adsorbent. Tritium was then removed through thermal treatment at 60°C , followed by the purification of Technetium-99 by eliminating beta emitter radioisotopes such as cobalt-60, iron-55, and nickel-63 using a precipitation process with iron (III) hydroxide. Qualitative and quantitative evaluations of the samples were conducted using gamma spectrometry and liquid scintillation counter instruments. The results indicated that the purified Technetium-99 exhibited high radiochemical purity, with other radioisotopes being removed from the media with an efficiency of approximately 100%. Additionally, the beta spectrum of the sample matched that of the standard samples. The total yield of the proposed processes, including the increase of Technetium-99m tracer in the original sample, was found to be 80.69%. Considering the 93% efficiency of the liquid scintillation counter and the process yield (80.69%), the specific activity of Technetium-99 was calculated to be $10554.13 \text{ Bq.L}^{-1}$.

Keywords: Technetium-99, Technetium-99m, Bushehr nuclear power plant waste, Processes yield, Purification, Specific activation



۱. مقدمه

با توسعه مداوم فناوری هسته‌ای و گسترش دامنه کاربرد آن، پسماندهای حاوی مواد پرتوزا به یکی از مهم‌ترین مشکلات زیست‌محیطی تبدیل شده است. پسماندهای پرتوزای حاصل از فعالیت‌های هسته‌ای حاوی رادیویزوتوپ‌هایی هستند که حذف و جداسازی آن‌ها می‌تواند باعث کاهش حجم پسماند اولیه و هزینه‌های مرتبط با دفن آن‌ها شود.

تکنسیم-۹۹ (^{99}Tc) به‌عنوان یکی از آلاینده‌های پرتوزای سمی و خطرناک طی شکافت هسته‌ای اورانیوم-۲۳۵ با نوترون‌های حرارتی (با بهره ۶ درصد) و یا به وسیله شکافت خودبه‌خودی اورانیوم-۲۳۸ در پوسته زمین تولید می‌شود. همچنین، این رادیویزوتوپ محصول جانبی به‌کارگیری رادیوداروی تکنسیم-۹۹m (با نیمه‌عمر ۶ ساعت) در پزشکی هسته‌ای است. تکنسیم-۹۹ یک نشرکننده خالص بتای کم‌انرژی با فعالیت ویژه ۶۳۰ کیلوبرکل بر میلی‌گرم و بیشینه انرژی ۲۹۳/۵ KeV است که دارای نیمه‌عمری معادل 2.11×10^5 سال بوده و به روتنیم-۹۹ پایدار واپاشی می‌کند [۱، ۲].

در شرایط محیطی، تکنسیم عمدتاً به‌صورت گونه آنیونی پرتکتات (TcO_4^-) و در شرایط محیطی کاهشی، این رادیویزوتوپ به صورت یون چهار ظرفیتی (Tc^{4+}) حضور دارد. از آنجایی که یون پرتکتات تحرک و حلالیت بسیار بالایی دارد این امر باعث حرکت و فروشویی آن از خاک‌های سطحی به لایه‌های عمیق‌تر و در نتیجه نفوذ به آب‌های زیرزمینی و ورود آن به بدن موجودات زنده و یا گیاهان خواهد شد [۳]. بنابراین با توجه به خصوصیات هسته‌ای و نیز بواسطه ماندگاری، تحرک و حلالیت بسیار بالای تکنسیم-۹۹ در محیط زیست، این رادیویزوتوپ یکی از نگرانی‌های اصلی در بخش انرژی هسته‌ای، آژانس حفاظت از محیط زیست و کمیسیون بین‌المللی تنظیم مقررات هسته‌ای به حساب می‌آید و دلیل اصلی بر اهمیت جداسازی و آنالیز آن در نمونه‌های زیست محیطی و حذف مؤثر و کامل آن از پسماندهای هسته‌ای است [۱]. براساس استاندارد تعیین شده توسط EPA، حداکثر سطح آلودگی برای ذرات ساطع‌کننده بتا در آب آشامیدنی ۴ میلی‌رم در سال است. که اگر در پسماند قابل رهاسازی رادیونوکلیدهای بتازای دیگری علاوه بر تکنسیم-۹۹ وجود داشته باشند، مجموع دز سالانه همه پرتوزاها نباید از ۴ میلی‌رم در سال تجاوز کند.

از سوی دیگر تعیین کیفی و کمی این رادیویزوتوپ از پسماندهای موجود در صنعت هسته‌ای همواره با چالش‌های اساسی مواجه بوده و نیازمند جداسازی کامل آن از سایر

نشرکننده‌های بتا و تخلیص کامل آن و نهایتاً استفاده از روش‌ها دستگاهی جهت شناسایی و اندازه‌گیری آن است [۴]، که در این راستا توجه بسیاری از دانشمندان این صنعت را به خود معطوف کرده است.

شمارشگر سنتیلاسیون مایع (LSC)^۱ یک روش رادیومتری مرسوم برای اندازه‌گیری هسته‌های پرتوزای ساطع‌کننده بتا و هسته‌هایی که با تسخیر الکترونی واپاشی می‌کنند، می‌باشد. با استفاده از متمایزکننده آلفا-بتا و با استفاده از تحلیلگر شکل پالس (PSA)^۲، هسته‌های پرتوزای ساطع‌کننده آلفا نیز می‌توانند در حضور هسته‌های پرتوزای ساطع‌کننده بتا و الکترون اوژه توسط LSC اندازه‌گیری شوند. از مزایای عمده LSC، راندمان شمارش بالا (تا ۱۰۰٪)، روش نسبتاً ساده برای آماده‌سازی نمونه هدف و ویژگی به دست‌آوردن طیف بتای نمونه‌ها است. با پیشرفت علوم و تکنولوژی این روش همچنان یک روش رادیومتری اصلی در تعیین هسته‌های پرتوزای ساطع‌کننده بتا به ویژه ذرات ساطع‌کننده بتا با انرژی کم بوده که با تسخیر الکترونی نیز واپاشی می‌کنند، به‌علاوه، این روش یک روش رقابتی در مقایسه با طیف‌سنجی جرمی برای هسته‌های پرتوزای با عمر کوتاه (نیمه‌عمر کمتر از ۱۰۰ سال) است و در طی بیش از ۶۰ سال از اولین کاربرد آن در دهه ۱۹۵۰، این روش توسعه یافته و به‌کار گرفته شده است و به‌عنوان یک روش اندازه‌گیری کامل در نظر گرفته می‌شود [۱]. با این حال ICP-MS به دلیل محدودیت بسیار کم تشخیص آن، به‌عنوان یک روش جایگزین برای اندازه‌گیری تکنسیم-۹۹ در نمونه‌های محیطی و پسماندها پیشنهاد شده است [۵]. با این وجود، پرکاربردترین روش برای تعیین رادیوشیمیایی تکنسیم-۹۹ استفاده از شمارشگر سنتیلاسیون مایع برای نمونه‌هایی است که پیش از اندازه‌گیری کمی و کیفی از سایر هسته‌های ساطع‌کننده بتا جداسازی شده است [۵، ۶].

امروزه روش‌های مختلفی از جمله هم‌رسوبی، استخراج حلالی و کروماتوگرافی تبادل یون برای جداسازی و یا حذف یون پرتکتات از محیط‌های آبی گزارش شده است. در روش‌های هم‌رسوبی از هیدروکسید آهن(II) به عنوان حامل برای ترسیب تکنسیم-۹۹ استفاده شده است که البته پیش از آن تکنسیم با استفاده از عوامل کاهنده به Tc^{4+} احیا شده و سپس از محیط حذف می‌شود [۷-۹]. در سال‌های اخیر از روش کروماتوگرافی استخراجی با استفاده از جاذب‌های اختصاصی

1. Liquid Scintillation Counting (LSC)

2. Pulse Shape Analyzer (PSA)



۲. مواد، تجهیزات و روش‌ها

۱.۲ مواد و تجهیزات

تمامی مواد شیمیایی مورد استفاده در کار حاضر از شرکت مرک یا فلوکا با خلوص تجزیه‌ای بالا تهیه شده است. نمونه پسماند نیمه‌مایع که خروجی تبخیرکننده اول نیروگاه اتمی بوشهر بوده توسط شرکت پسمانداری تهیه و در اختیار این گروه قرار گرفت. همچنین تکنسیم-۹۹m نیز از شرکت پارس ایزوتوپ تهیه شد.

در این پژوهش برای تنظیم اسیدیته محلول از pH متر ساخت کشور آلمان مدل Schott CG۸۴۱ و برای تعیین کیفی و کمی هسته‌های پرتوزای گاما از دستگاه طیف‌سنج گاما از نوع HPGE با بازدهی نسبی ۸۰٪ (ساخت شرکت Eurisys Measures فرانسه) استفاده شد. همچنین برای بررسی کیفی و کمی رادیوایزوتوپ‌های بتازای نمونه‌ها نیز از دستگاه LSC ساخت شرکت WALLAC مدل Quantulus ۱۲۲۰ کشور فنلاند استفاده گردید. دستگاه پراش اشعه ایکس ساخت شرکت Philips مدل X-pert نیز برای شناسایی ساختار جاذب سنتز شده به کار گرفته شد.

۲.۲ روش‌ها

مراحل انجام شده در بخش تعیین کیفی و کمی تکنسیم-۹۹ در فاز آبی پسماند اولیه شامل حذف یون‌های ^{۱۳۴}Cs و ^{۱۳۷}Cs ، حذف یون‌های ^3H و ^{۱۴}C و نهایتاً حذف یون‌های ^{۵۵}Fe ، ^{۶۳}Ni ، ^{۶۰}Co ، ^{۲۶}Cl و $^{۱۱۰\text{m}}\text{Ag}$ می‌باشد. برای این منظور ابتدا ۱۰۰ میلی‌لیتر نمونه پسماند نیمه‌مایع با استفاده از کاغذ صافی فیلتر و از فاز جامد جداسازی گردید. سپس عملیات آمایش بر روی فاز آبی پسماند انجام شد.

۱.۲.۲ حذف ^{۱۳۴}Cs و ^{۱۳۷}Cs

به منظور حذف ^{۱۳۴}Cs و ^{۱۳۷}Cs ، pH ۱۰۰ میلی‌لیتر فاز آبی پسماند که حدوداً برابر ۱۳/۵ است با افزایش تدریجی اسید نیتریک غلیظ در ۱۲ تثبیت شد. سپس ۱ گرم از جاذب پتاسیم کبالت هگزاسیانوفرات (II) سنتز شده به آن اضافه و به مخلوط حاصل اجازه داده شد تا به مدت ۱ ساعت با سرعت ۲۵۰ rpm در دمای اتاق همزده شود. سپس جاذب با استفاده از فرایند فیلتراسیون از محیط جداسازی شد و جهت اطمینان از حذف کامل یون‌های سزیم این عملیات مجدداً با یک گرم جاذب جدید تکرار گردید و در نهایت محلول شفاف به دست آمده از فرایند فیلتراسیون جهت آنالیز با استفاده از دستگاه LSC مورد بررسی و ارزیابی قرار گرفت.

نظیر توا رزین (TEVA[®] resin)، آنالیز تی سی (AnaLig[®] Tc-۰۲) و سوپرلیگ-۶۳۹ (Superlig[®] ۶۳۹) [۱۰-۱۲] و نیز رزین‌های آنیونی [۱۳، ۱۴] برای تخلیص، جداسازی و پیش‌تغلیظ تکنسیم-۹۹ استفاده شده است. همچنین در جداسازی تکنسیم-۹۹ با استفاده از روش‌های استخراج حلالی از استخراج‌کننده‌هایی مانند دی بنزو-۱۸-کراون اتر-۶، تری-ان-اکتیل آمین، تری-ان-بوتیل فسفات و ... بهره گرفته شده است [۱]. اما انتخاب روشی مناسب برای جداسازی و تعیین مقدار رادیوایزوتوپ تکنسیم-۹۹ به ماهیت محیط مورد بررسی بستگی دارد و گاهی با توجه به ماتریس نمونه لازم است تا از چندین روش برای رسیدن به این هدف استفاده شود.

یکی از منابع پسماندی که تکنسیم-۹۹ آن بایستی پیش از انجام فرایندهای آمایش و تثبیت اندازه‌گیری شود، تغلیظ‌شده حاصل از تبخیرکننده اول نیروگاه اتمی بوشهر است. که حدوداً به مدت دو سال در مخازن نگهداری شده و حاوی شونده‌های بهداشتی و غلظت بالایی از انواع مواد محلول در فاز آبی این پسماند نیمه‌مایع می‌باشد. بنابراین با توجه به منحصر به فرد بودن نوع پسماند و نیز گذشت زمان طولانی از تولید آن و در نتیجه واپاشی و حذف برخی از محصولات حاصل از شکافت اورانیم و نیز محصولات فعال‌سازی نوترونی که دارای نیمه‌عمر کوتاهی هستند، امکان استفاده از تکرار روش‌های پیشنهادی در مقالات را غیرممکن می‌کند [۱۲]. لذا برای رسیدن به این هدف مهم بایستی از روش‌های مختلف در طی چند مرحله اقدام به جداسازی و تخلیص آن و یا حذف سایر هسته‌های پرتوزا نمود و پس از حصول به نتایج مناسب در هر مرحله مبادرت به انجام مرحله بعد و حذف سایر گونه‌های مزاحم کرد تا در نهایت به نمونه‌ای که فاقد هرگونه ساطع‌کننده بتا است دست یافته و بتوان با استفاده از LSC به تعیین کیفی و کمی آن پرداخت. همچنین به منظور تعیین کمی تکنسیم-۹۹ در پسماند، لازم است تا بازدهی فرایندهای پیشنهادی با استفاده از افزایش مقادیر بسیار کم تکنسیم-۹۹m به عنوان ردیاب مشخص گردد. بنابراین هدف در کار تحقیقاتی حاضر شناسایی تکنسیم-۹۹ در فاز آبی پسماند تغلیظ‌شده نیروگاه اتمی بوشهر با استفاده از روش‌های جداسازی شیمیایی و نیز تعیین مقدار آن با استفاده از دستگاه LSC است.

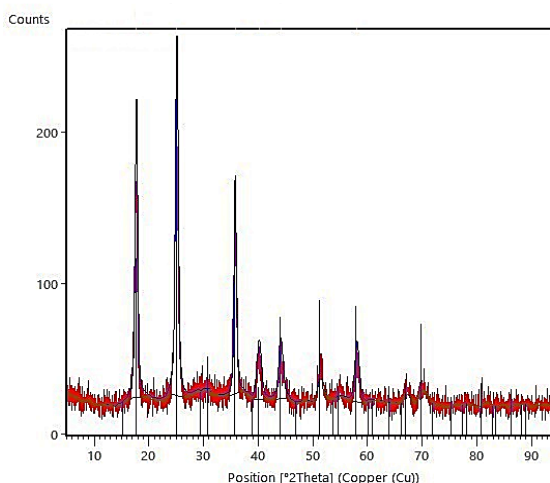


۵.۲.۲ تعیین بهره واکنش‌ها

در این تحقیق از ردیاب تکنسیم-۹۹m که از دوشیدن ژنراتور مولیدن-۹۹ موجود در شرکت پارس ایزوتوپ قابل تهیه بود، برای تعیین بهره فرایندها استفاده شد. بدین منظور ۱ میلی‌لیتر از نمونه اولیه که دارای اکتیویته ۸۶/۶ میلی‌کوری در ۷ میلی‌لیتر بود پس از گذشت ۴ روز به ۶۰ میلی‌لیتر از فاز آبی پسماند اولیه اضافه و محلول تحت عملیات‌های آمایش قرار گرفت. برای تعیین راندمان هر مرحله، بخشی از محلول در آن فرایند به همراه شاهد با استفاده از دستگاه اسپکترومتري گاما مورد ارزیابی قرار گرفت.

۳. نتایج و بحث

برای شناسایی ساختار جاذب سنتز شده از طیف‌سنجی پراش اشعه ایکس استفاده شد. نتایج حاصل از این آنالیز به صورت الگوی پراش اشعه ایکس نمونه سنتز شده و نمونه استاندارد [نمونه سنتزی به رنگ قرمز و نمونه استاندارد به رنگ آبی (کد استاندارد: ۰۰۳۸-۰۷۵-۰۱)] در شکل ۱ نشان داده شده است. مطابق الگوی پراش اشعه ایکس چندین پیک شاخص مشاهده شده در ۲θ های ۱۷/۵۸، ۲۴/۹۶۵، ۳۵/۵۹۸، ۴۳/۹۷، ۵۱/۲۳، ۵۷/۸، ۶۹/۷۶ و ۸۰/۸۵ به ساختار کبالت پتاسیم هگزاسیانوفرات (II) نسبت داده شده و مشاهده گردید که با الگوی استاندارد ترکیب فوق (طیف به رنگ آبی) کاملاً سازگار و دلالت بر سنتز صحیح این ترکیب مکعبی شکل دارد. همه قله‌های پراش اصلی باریک و شدید بودند که نشان‌دهنده وجود بلورینگی خوب در جاذب سنتز شده است. نتیجه تجزیه و تحلیل آنالیز پراش اشعه ایکس این ترکیب که نشان‌دهنده عدم وجود پیک واضح و مشخص دیگری نیست نشان‌دهنده خلوص بالای محصول به دست آمده، است [۱۶].



شکل ۱. الگوی پراش اشعه ایکس جاذب $K_2CoFe(CN)_6$ سنتز شده (رنگ قرمز) و استاندارد (رنگ آبی).

۲.۲.۲ حذف یون‌های 3H و ^{14}C

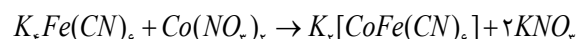
برای حذف این دو رادیوایزوتوپ، محلول حاصل از مرحله قبل به داخل یک بوته چینی انتقال داده شد. این محلول در حالی که همزده می‌شد در دمای $60^\circ C$ تا مرز خشک شدن حرارت داده شد. سپس بوته چینی به یک کوره حرارتی قابل برنامه‌ریزی منتقل و دمای آن طی یک بازه زمانی ۲ ساعته به $420^\circ C$ رسانده و سپس به مدت ۱ ساعت در همین دما نگه داشته شد. نهایتاً کوره خاموش شده تا طی روند طبیعی سرد گردد. در پایان ته‌ماند موجود در ۲۵ میلی‌لیتر سود غلیظ حل شده و توسط دستگاه شمارشگر سنتیلاسیون مایع مورد آنالیز واقع گردید.

۳.۲.۲ حذف یون‌های ^{55}Fe ، ^{60}Co ، ^{64}Cl و ^{109m}Ag

به محلول حاصل از مرحله قبل، ۰/۵ g نیترات آهن (III) و ۰/۱ گرم نیترات نقره اضافه گردید و اجازه داه شد تا اختلاط به طور کامل از طریق همزدن انجام شود. به محض افزایش این دو ترکیب ابتدا به صورت جزئی رسوبات قهوه‌ای رنگ روشنی تشکیل شده که پس از افزایش تدریجی اسید هیدروکلریک غلیظ و تنظیم pH محلول بر روی ۱۰، رسوبات بیشتر و رنگ محلول قهوه‌ای تیره شد. پیرسازی مخلوط به مدت نیم ساعت انجام و در نهایت رسوب از محلول جداسازی گردید. رسوب حاصله چندین مرتبه با محلول سود با pH حدود ۱۰ شستشو داده شده و سپس در تیزاب حل و به همراه حجم مشخصی از محلول عبور داده شده از کاغذ صافی توسط LSC مورد ارزیابی قرار گرفت.

۴.۲.۲ سنتز جاذب "کبالت پتاسیم هگزا سیانو فرات (II)"

برای حذف ^{137}Cs و ^{134}Cs از فاز آبی پسماند نیمه‌مایع از جاذب پتاسیم کبالت هگزاسیانوفرات (II) که به روش پروت و همکاران [۱۵] تهیه شده است، استفاده گردید. در این روش ۵۰ میلی‌لیتر از محلول ۰/۵ مولار پتاسیم هگزاسیانوفرات (II) $[K_4Fe(CN)_6]$ به تدریج طی مدت ۳۰ دقیقه به ۱۲۰ میلی‌لیتر محلول ۰/۳ مولار کبالت نیترات $[Co(NO_3)_2]$ اضافه گردید. در طی این فرایند جاذب طبق واکنش زیر سنتز شد.



جاذب تهیه شده با استفاده از سانتریفوژ از فاز محلول جداسازی شده و سپس چندین بار با آب مقطر شستشو و در نهایت در دمای $115^\circ C$ به مدت ۲ ساعت خشک گردید. جاذب حاصل پس از خردایش و مش‌بندی مورد استفاده قرار گرفت.

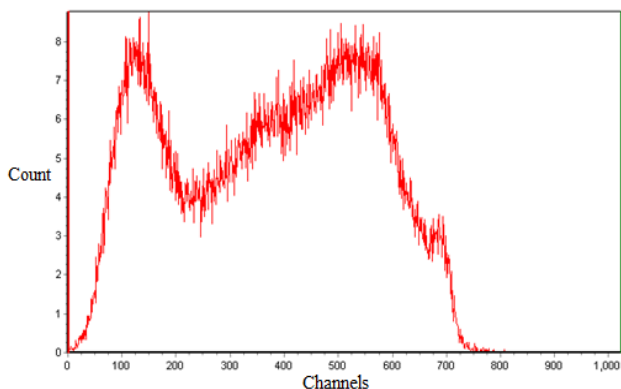


جدول ۱. آنالیز پسماند تغلیظ شده حاصل از تبخیرکننده اول پسماند نیروگاه اتمی بوشهر

ردیف	ترکیب شیمیایی	غلظت (g.L^{-1})
۱	سدیم اگزالات	۲۹,۷۳
۲	سدیم فسفات	۲۲,۱۱
۳	سدیم متابورات	۲۱,۸۴
۴	اتیلن دی آمین تتر استات	<۱۸,۷۱
۵	سدیم هیدروکسید	۱۷,۵۷
۶	سدیم سولفات	۴,۷
۷	پتاسیم اگزالات	۱۲,۶۲
۸	سدیم کربنات	۱۱,۵۸
۹	منگنز اکسید	۵,۹۸
۱۰	سولفات آهن (III)	۳,۳۳
۱۱	کلسیم هیدروکسید	۱۷,۵۷

جدول ۲. آنالیز گامای فاز آبی پسماند تغلیظ شده حاصل از تبخیرکننده اول نیروگاه اتمی بوشهر

ردیف	ترکیب شیمیایی	غلظت (Bq.L^{-1})
۱	^{60}Co	۳۸
۲	^{137}Cs	۴۳۶۸۱
۳	^{134}Cs	۷۲۴۸



شکل ۲. طیف بتای فاز آبی پسماند تغلیظ شده حاصل از تبخیرکننده اول نیروگاه اتمی بوشهر.

مطالعه منابع علمی مختلف نشان می‌دهد که این عناصر می‌توانند شامل ^3H و ^{14}C ، ^{55}Fe ، ^{63}Ni ، ^{60}Co ، ^{36}Cl ، ^{90}Sr ، ^{137}Cs و ^{241}Pu باشند [۱، ۱۷-۲۴]. که از این میان، با توجه به عدم مشاهده پیک دختر استرانسیم-۹۰ یا به عبارتی ایتیریم-۹۰ در انرژی‌های بالا 2.27 MeV و قابل مشاهده در کانال‌های بالای طیف بتای نمونه‌ها (شکل ۳) و همچنین عدم مشاهده پیک مربوط به فسفر-۳۲ در انرژی‌ها و کانال‌های بالا (0.7 MeV و 1.71) احتمال حضور این

لازمه انتخاب شیوه مناسب جهت تخلیص و جداسازی تکنسیم-۹۹ از فاز آبی تغلیظ‌شده پسماند نیروگاه بوشهر، آنالیز دقیق شیمیایی و رادیوشیمیایی آن و شناخت ماتریس نمونه می‌باشد. بنابراین این پسماند با استفاده از روش‌های آنالیزی مختلف مورد بررسی و ارزیابی قرار گرفت که نتایج حاصل از آن در جدول‌های ۱ و ۲ و نیز شکل ۲ آورده شده است.

با مشاهده نتایج ارائه‌شده در جدول ۱ می‌توان نتیجه گرفت که در این پسماند انواع ترکیبات معدنی آنیونی با غلظت‌های بالا حضور داشته که در صورت حضور احتمالی یون تکنسیم-۹۹ در محلول، جداسازی انتخابی این یون که عمدتاً به صورت آنیون پرتکتات در محیط حضور دارد، با استفاده از مبادله‌کننده‌های آنیونی حتی گزینش‌پذیر و یا کروماتوگرافی استخراجی تقریباً غیرممکن بوده و یا در صورت به کارگیری آن‌ها راندمان جداسازی بسیار پایین خواهد بود. بنابراین بواسطه حضور ماتریس‌های آنیونی مختلف با غلظت بالا، استفاده از این روش‌ها تقریباً غیرممکن می‌باشد.

از سوی دیگر با توجه به ماهیت و نحوه تولید پسماند مورد نظر، احتمال حضور بسیاری از عناصر بتازا در آن وجود دارد. که از این بین برخلاف عناصر ساطع‌کننده خالص بتا که امکان تشخیص هر یک از آن‌ها بدون جداسازی توسط LSC غیرممکن می‌باشد، بسیاری از عناصر پرتوزای بتایی که با تابش پرتو گاما نیز همراه بوده نظیر ^{137}Cs ، ^{134}Cs ، ^{55}Sn ، ^{95}Zr ، ^{60}Co ، ^{103}Ru و ^{110m}Ag ، ^{93}Zr ، ^{210}Pb ، ^{41}Ca ، ^{65}Zn ، ^{95}Nb ، ^{140}Ba ، ^{140}Na و ^{106}Ru توسط اسپکترومتری گاما قابل شناسایی است و می‌توان بدین طریق از حضور آن‌ها در این پسماند اطمینان حاصل کرد. آنالیز اسپکترومتری گامای فاز آبی پسماند (جدول ۲) نشان می‌دهد که عناصر ^{60}Co و ^{137}Cs به عنوان تنها عناصر بتازایی که پرتو گاما نیز ساطع می‌کنند در پسماند مورد نظر حضور قطعی دارند و می‌توانند در تعیین کمی و کیفی نمونه با استفاده از LSC ایجاد مزاحمت کنند. بنابراین حذف هر دو این هسته‌های پرتوزا از پسماند امری ضروری است. قابل ذکر است که حضور باقی هسته‌های پرتوزایی که هم‌زمان پرتوهای بتا و گاما از خود ساطع می‌کنند، در این پسماند منتفی است. بنابراین تمرکز اصلی در این پروژه بر روی عناصری خواهد بود که با واپاشی از طریق تسخیر الکترونی، الکترون‌های اوژه و یا نشر خالص بتا توسط LSC قابل آشکارسازی هستند.



۱.۳ حذف ^{137}Cs و ^{134}Cs

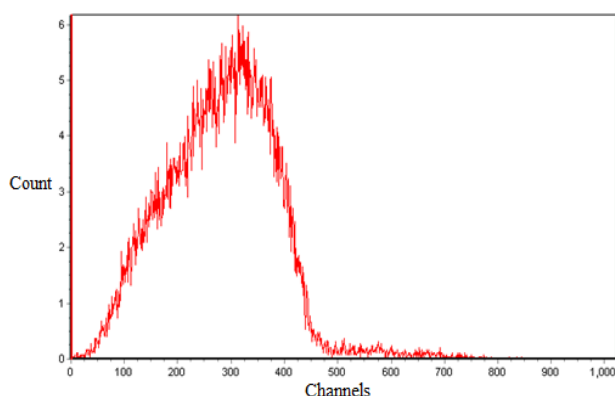
همچنان که در بخش ۱.۲.۲ ذکر شد ^{137}Cs و ^{134}Cs در طی دو مرحله با استفاده از جاذب سنتزی پتاسیم کبالت هگزاسیانو فرات (II) حذف گردید. اما پیش از عملیات حذف، از آنجاکه تمام ترکیبات جامد هگزاسیانوفرات (II) در محیط‌های شدیداً اسیدی و بازی تجزیه شده و توسط اکسند‌های قوی به فروسیانیدها، اکسید می‌شوند [۲۵]. بنابراین pH محیط که به شدت قلیایی ($\text{pH}=13.5$) است با استفاده از اسید نیتریک غلیظ بر روی ۱۲ که در محدوده پایداری جاذب می‌باشد، تثبیت گردید و پس از آن جاذب اضاف و مورد بررسی قرار گرفت.

آنالیز اسپکترومتري گاما و LSC مربوط به نمونه حاصل از حذف سزیم به ترتیب در جدول ۳ و شکل ۴ آورده شده است.

با بررسی نتایج آنالیز گامای نمونه در جدول ۲ می‌توان نتیجه‌گیری کرد که جاذب مورد استفاده به‌خوبی ^{137}Cs و ^{134}Cs موجود در نمونه اولیه را در دو مرحله با راندمان بالای ۹۹٫۸ درصد حذف کرده است. همچنین مشاهده می‌شود که تقریباً ۷۵ درصد ^{60}Co موجود در محیط توسط این جاذب از محیط حذف شده است که می‌بایست در مراحل بعد این رادیوایزوتوپ به‌طور کامل از محیط حذف گردد. طیف بتای نمونه هم حاکی از حذف کامل پیک دوم سزیم که در کانال‌های ۷۰۰ به‌خوبی در نمونه اولیه (شکل ۲) قابل مشاهده است، می‌باشد و ادعای حذف کامل سزیم از محیط را تأیید می‌کند.

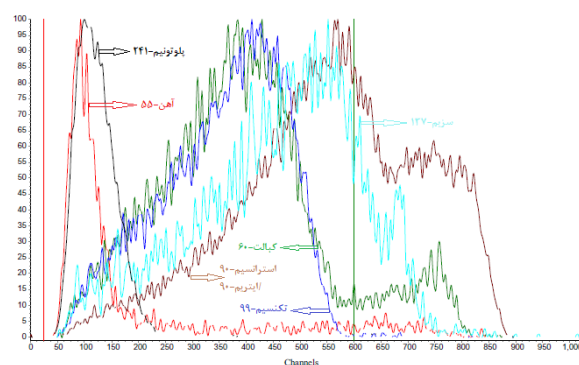
جدول ۳. آنالیز گامای فاز آبی پسماند پس از حذف ^{137}Cs و ^{134}Cs

هسته پرتوزا	غلظت (Bq.L^{-1})			راندمان
	نمونه اولیه	مرحله اول	مرحله دوم	
^{60}Co	۳۸	۲۵	۹٫۵	٪۷۵
^{137}Cs	۴۳۶۸۱	۷۴۱۰	۸۶	٪۹۹٫۸۰
^{134}Cs	۷۲۴۸	۱۲۲۰	۱۴٫۶۵	٪۹۹٫۷۹

شکل ۴. طیف بتای نمونه پس از حذف ^{137}Cs و ^{134}Cs با استفاده از جاذب.

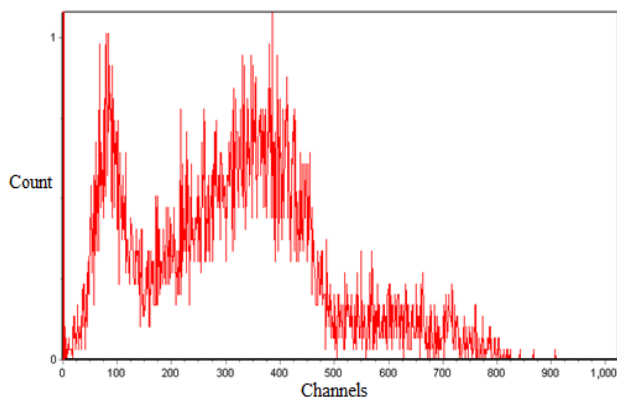
رادیوایزوتوپ‌ها در نمونه بسیار پایین است. همچنین با توجه به قلیایی بودن شدید محیط ($\text{pH}=13.5$) و حاصل‌ضرب حلالیت بسیار پایین هیدروکسید پلوتونیم احتمال حضور ^{241}Pu نیز در فاز آبی پسماند بسیار ناچیز می‌باشد. این ادعا با مشاهده طیف بتای نمونه نهایی تخلیص شده (شکل ۶) که نشان‌دهنده عدم حضور هیچ سیگنال و یا پیکی در انرژی‌های پایین (زیر ۱۰۰ KeV) است و دلالت بر عدم حضور رادیوایزوتوپ‌های بتازا در این ناحیه می‌باشد تأیید گردید. بنابراین می‌توان از حضور آن‌ها در این نمونه صرف‌نظر کرده و به حذف و جداسازی سایر رادیوایزوتوپ‌هایی چون ^3H و ^{14}C ، ^{55}Fe ، ^{63}Ni ، ^{60}Co ، ^{36}Cl و ^{137}Cs و ^{134}Cs که مطابق شکل ۲، طیف خالص بتای آن‌ها در محدوده قابل آشکارسازی طیف بتای تکنسیم-۹۹ بوده و می‌توانند در تشخیص و تعیین مقدار آن مزاحمت ایجاد کنند، پرداخت.

حال با توجه به آن‌که جداسازی آنیون پرتکنات با استفاده از کرماتوگرافی استخراجی و تبادل یون بواسطه حضور آنیون‌های با غلظت بالای موجود در محیط به سختی و با راندمان پایین امکان‌پذیر است و از سوی دیگر استفاده از روش هم‌رسوبی مستقیم یون تکنسیم با توجه به حلالیت بالای یون پرتکنات و بازدهی پایین روش‌های هم‌رسوبی با چالش‌هایی مواجه بوده، یکی از بهترین گزینه‌ها برای حصول به ترکیبی خالص و حاوی تنها رادیوایزوتوپ بتازای تکنسیم-۹۹ در محیط، حفظ این رادیوایزوتوپ در فاز آبی پسماند است و می‌توان با حذف سایر یون‌ها که عمدتاً کاتیونی بوده و جداسازی آن‌ها کمترین تأثیر در حذف تکنسیم-۹۹ موجود در محیط را دارد، به این مهم نائل شد. برای این منظور ابتدا اقدام به حذف ^{137}Cs و ^{134}Cs با استفاده از یکی از جاذب‌های انتخابی آن یعنی پتاسیم کبالت هگزاسیانوفرات (II) کرده و پس از آن اقدام به حذف سایر هسته‌های پرتوزا خواهیم کرد.



شکل ۳. طیف بتای آهن-۵۵ (قرمز)، کبالت-۶۰ (سبز)، استرانسیم-۹۰/ایتریم-۹۰ (قهوه‌ای)، سزیم-۱۳۷ (فیروزه‌ای) و پلوتونیم-۲۴۱ (سیاه) با استفاده از پروتکل تریتم [۱].





شکل ۵. طیف بتای نمونه پس از حذف ^3H با استفاده از آمایش حرارت‌دهی.

محلول حاصل از مرحله قبل پس از انجام فرایند رسوب‌گیری طی مراحل ذکر شده در بخش ۳.۲.۲ تحت عملیات آمایش قرار گرفته و نهایتاً محلول صاف‌شده در انتهای عملیات رسوب‌دهی توسط اسپکترومتری گاما و LSC آنالیز گردید، که نتایج آن در شکل ۶ و جدول ۴ آورده شده است. بررسی نتایج در جدول ۴ نشان می‌دهد که تمامی هسته‌های پرتوزای ^{137}Cs و ^{60}Co در انتهای فرایند، تقریباً به‌طور کامل از محیط حذف شده‌اند. مضاف بر آن که مقایسه طیف بتای نمونه نهایی (شکل ۶) با طیف بتای نمونه خالص ارایه شده در شکل ۳ و سایر مقالات [۹، ۲۷]، حاکی از انطباق کامل طیف این نمونه با نمونه خالص دارد. بنابراین می‌توان از خالص بودن تکنسیم-۹۹ موجود در آن اطمینان کامل حاصل کرد. حضور پیک‌های جزئی موجود در کانال‌های بعد از ۵۰۰ که در ناحیه طیف تکنسیم-۹۹ واقع نیستند و تأثیری بر تعیین کمی آن ندارند نیز به پیک زمینه نسبت داده شده است [۹].

نظر به احتمال‌دهی حضور بسیار پایین ^{36}Cl در فاز آبی پسماند نسبت به باقی رادیوایزوتوپ‌های بتازای موجود در نمونه (^{55}Fe ، ^{63}Ni و ^{60}Co)، به‌دلیل انرژی بالای پرتوهای بتای ساطع شده توسط این رادیوایزوتوپ و همچنین با توجه به طیف بتای نمونه در مرحله قبل (شکل ۵)، این عملیات آمایش بدون افزودن نیترا نقره نیز انجام شد، که با توجه به عدم تغییر طیف بتای نمونه مشخص گردید، این رادیوایزوتوپ نیز در محیط پسماند حضور ندارد. بنابراین این فرایند بدون افزایش نیترا نقره قابل انجام است.

همچنین با بررسی طیف بتای این نمونه در انرژی‌ها و کانال‌های پایین (۱۰۰) مشاهده می‌شود که احتمال حضور ترکیبات بتازایی چون ^3H ، ^{14}C ، ^{55}Fe ، ^{63}Ni و نیز ^{60}Co (شکل ۴) وجود دارد. لذا با توجه به حذف نسبتاً ساده ^3H و ^{14}C ، ابتدا مبادرت به حذف این دو رادیوایزوتوپ کرده‌ایم.

۲.۳ حذف ^3H و ^{14}C

همچنان که در بخش ۲.۲.۲ گفته شد برای حذف این دو رادیوایزوتوپ از فرایند حرارت‌دهی استفاده شد. طیف بتای حاصل از انحلال تهماند پس از آمایش حرارتی در شکل ۵ آورده شده است. بررسی طیف بتای نمونه حاکی از حذف این دو رادیوایزوتوپ دارد. که با توجه به تکرار این فرایند بدون حرارت‌دهی در دماهای بالا و مشاهده عدم تغییر طیف بتای نمونه مشخص شد که در نمونه مورد بررسی رادیوایزوتوپ ^{14}C وجود ندارد. بنابراین این فرایند در دماهای پایین 100°C و تنها به منظور حذف تریتم موجود در محیط قابل انجام است. از آنجاکه تریتم عمدتاً به‌صورت آب (HTO) و یا گاز هیدروژن تریتم (HT) در محیط یافت می‌شود بنابراین با حرارت‌دهی و حذف آب از محیط قابل حذف می‌باشد.

۳.۳ حذف باقی رادیوایزوتوپ‌های بتازا

پس از حذف رادیوایزوتوپ‌های سزیم، تریتم و بخشی از کبالت-۶۰ و نیز بررسی طیف بتای نمونه مرحله قبل (شکل ۴) و مقایسه آن با پیک نمونه‌های خالص عناصر در شکل ۳ می‌توان حضور احتمالی هر یک از رادیوایزوتوپ‌های ^{55}Fe ، ^{63}Ni ، ^{60}Co و ^{36}Cl را در نمونه همچنان متصور بود. بنابراین به منظور اطمینان از حذف رادیوایزوتوپ‌های ^{55}Fe ، ^{63}Ni و ^{60}Co از روش مرسوم رسوب‌دهی با هیدروکسید آهن (III) [۲۰] و برای اطمینان از حذف ^{36}Cl نیز از روش رسوب‌دهی با نیترا نقره [۱۹] استفاده شد. مکانیزم حذف این رادیوایزوتوپ‌ها براساس هم‌رسوبی هیدروکسید نامحلول یون‌های آهن، نیکل و کبالت که به‌ترتیب با درجه اکسایش ۳، ۲ و ۲+ در محیط حضور دارند، انجام می‌شود. این در حالی است که یون تکنسیم در چنین شرایطی عمدتاً به‌صورت یون پرتکتات (TcO_4^-) و با درجه اکسایش ۷+ در محیط حضور داشته که احتمال ترسیب شدن آن به‌دلیل حلالیت و تحرک بالای آن بسیار ناچیز بوده و در نتیجه در محلول باقی خواهد ماند [۲۶].



جدول ۵. تعیین بازدهی هر یک از فرایندهای مورد استفاده

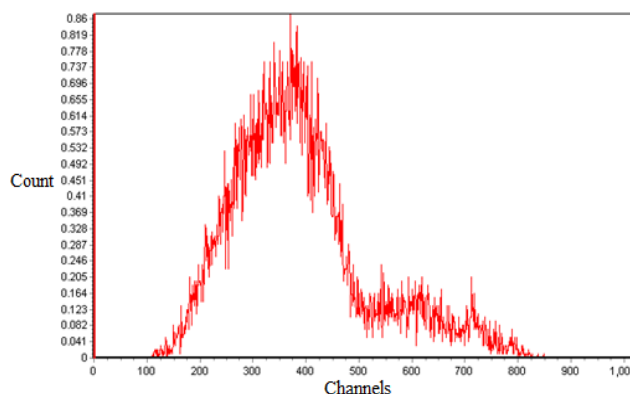
نام نمونه	غلظت (Bq.L ⁻¹)	درصد هدردهی	درصد بازدهی
محلول اولیه	۸۸٫۶	-	-
محلول پس از حذف سزیم	۷۷٫۶	۱۱٫۳	۸۸٫۷
محلول پس از فرایند رسوبگیری	۷۴٫۸	۴٫۲۸	۸۴٫۴۲
محلول حاصل از انحلال رسوبات	۳٫۸	۴٫۲۸	-
نمونه پس از حذف تریتیم	۷۱٫۵	۳٫۷۲	۸۰٫۶۹

۵.۳ تعیین غلظت تکنسیم-۹۹ در فاز آبی پسماند

با توجه به خالص سازی نمونه فاز آبی پسماند اولیه و اطمینان از حضور تکنسیم-۹۹ در این فاز، لازم است تا مقدار این رادیوایزوتوپ در نمونه اولیه اندازه گیری شود. این اندازه گیری براساس اکتیویته اندازه گیری شده پرتوی بتای ساطع شده در نمونه خالص، با استفاده از دستگاه LSC انجام گردید. مقدار اکتیویته اندازه گیری شده برای ۲۴ میلی لیتر محلول نهایی فاز آبی پسماند برابر ۱۹۰٫۰۸ بکرل بود که با اعمال بازدهی ۹۳ درصدی دستگاه LSC و بهره واکنش ۸۰٫۶۹ درصدی، این مقدار برابر ۲۵۳٫۲۹۹ بکرل می باشد. بنابراین اکتیویته ویژه تکنسیم-۹۹ در فاز آبی پسماند نیروگاه اتمی بوشهر برابر ۱۰۵۵۴٫۱۳ بکرل بر لیتر است.

۴. نتیجه گیری

در کار تحقیقاتی حاضر، تکنسیم-۹۹ موجود در فاز آبی پسماند تغلیظ شده نیروگاه اتمی بوشهر شناسایی و تعیین مقدار شد. برای این منظور ابتدا رادیوایزوتوپ های سزیم طی دو مرحله با استفاده از جاذب اختصاصی پتاسیم کبالت هگزاسیانو فرات (II) به میزان ۹۹٫۸ درصد و در مرحله بعد تریتیم آن با استفاده از آمایش حرارتی از محیط حذف گردید و در نهایت باقی رادیوایزوتوپ های بتازای موجود در محلول که شامل ^{۵۵}Fe، ^{۶۳}Ni و ^{۶۰}Co است، توسط فرایند رسوب دهی با هیدروکسید آهن (III) از محیط حذف شدند. با بررسی طیف بتای محصول نهایی (شکل ۵) و مقایسه آن با طیف بتای نمونه های حاوی تکنسیم-۹۹ خالص مشخص شد که هر دو طیف، کاملاً مشابه و یکسان بوده و بنابراین تنها رادیوایزوتوپ بتازای موجود در محلول، تکنسیم-۹۹ می باشد. این امر حاکی از انتخاب صحیح فرایندها به منظور تخلیص فاز آبی پسماند می باشد. مقدار بازدهی فرایندها نیز با استفاده از افزایش ردیاب تکنسیم-۹۹م، ۸۰٫۶۹ درصد برآورده شد. همچنین غلظت تکنسیم در فاز آبی پسماند نیروگاه اتمی بوشهر با اعمال درصد بازدهی فرایندها و دستگاه شمارشگر سنتیلاسیون مایع ۱۰۵۵۴٫۱۳ بکرل بر لیتر محاسبه گردید.

شکل ۶. طیف بتای نمونه نهایی حاوی ^{۹۹}Tc پس از عملیات رسوب دهی.

جدول ۴. آنالیز گامای محلول صاف شده پس از عملیات رسوب دهی

هسته پرتوزا	غلظت (Bq.L ⁻¹)			راندمان جداسازی
	مرحله دوم جاذب	مرحله اولیه رسوب گیری	نمونه اولیه	
^{۶۰} Co	۹٫۵	۰	۳۸	٪۱۰۰
^{۱۳۷} Cs	۸۶	۱٫۵	۴۳۶۸۱	٪۹۹٫۹۹
^{۱۳۴} Cs	۱۴٫۶۵	۰	۷۲۴۸	٪۱۰۰

۴.۳ تعیین بازدهی واکنش ها

یکی از روش های متداول و مورد استفاده در تعیین بازدهی شیمیایی فرایندهای مورد استفاده در تخلیص تکنسیم-۹۹، استفاده از تکنسیم-۹۹م به عنوان ردیاب است [۱، ۹، ۲۷]. این رادیوایزوتوپ یک نشرکننده خالص گاما با نیمه عمر ۶٫۰۶ ساعت و با انرژی ۱۴۰٫۵ KeV است که توسط اسپکترومتری گاما به خوبی و با دقت بالا قابل اندازه گیری است. همچنین که گفته شد برای انجام این کار مقدار مشخصی از تکنسیم-۹۹م تهیه شده از شرکت پارس ایزوتوپ به حجم مشخصی از فاز آبی پسماند اضافه و میزان بازدهی هر مرحله با اندازه گیری این رادیوایزوتوپ در پایان همان مرحله از فرایندهای ذکر شده در بخش های ۱.۳ الی ۳.۳ قابل محاسبه خواهد بود. نتایج حاصل از اندازه گیری تکنسیم-۹۹م در هر مرحله از جداسازی و میزان بازدهی در هر فرایند در جدول ۵ آورده شده است.

نتایج به دست آمده از این آزمایش ها نشان می دهند که بیشترین میزان از دست دهی تکنسیم-۹۹م به ترتیب در مرحله حذف رادیوایزوتوپ های سزیم، مرحله رسوب گیری و در نهایت مرحله حذف تریتیم از محلول صورت می گیرد. با این حال، بازدهی کل فرایندهای مورد استفاده برای خالص سازی تکنسیم-۹۹ برابر ۸۰٫۶۹ درصد است، که راندمان مناسبی در طی این سه فرایند به کار رفته، می باشد.

تشکر و قدردانی

در اینجا لازم است تا از اعضای محترم گروه فیزیک بهداشت آزمایشگاه جابربن حیان آقایان مهندس مسیح علوی و محسن کاظمی دستجردی، گروه آنالیز اسپکترومتری گامای آزمایشگاه جابربن حیان جناب آقای مهندس علی یوسفی و نیز همکاران محترم شرکت پارس ایزوتوپ آقایان دکتر ناصر سلطانی، دکتر محسن هراتی و مهندس حسین موحد که ما را در انجام این پژوهش یاری نموده‌اند، صمیمانه تشکر و قدردانی نمایم.

مراجع

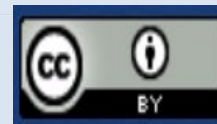
- Izatt S.R, Bruening R.L, Krakowiak K.E, Izatt R.M. The Selective Separation of Anions and Cations in Nuclear Waste Using Commercially Available Molecular Recognition Technology Products. *Proceedings of WM'03 Conference, Tuscon*. 2003.
- Remenec B, Dulanska S, Paucova V, Matel L. Determination of ⁹⁹Tc in Evaporator Concentrates Using Solid Phase Extraction Techniques. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2011;290:403–407.
- Uchida S, Tagami K. Separation and Concentration of Technetium Using A Tc-Selective Extraction Chromatographic Resin. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 1997;221:35–39.
- Dixon P, Curtis D.B, Musgrave J, Roensch F, Roach J, Rokop D. Analysis of Naturally Produced Technetium and Plutonium in Geologic Materials. *Analalytical Chemistry*. 1997;69:1692–1699.
- Prout W.E. Russell E.R, Groh H.J. Ion Exchange Absorption of Cesium by Potassium Hexacyanocobalt (II) Ferrate (II). *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry*. 1965;27:473–479.
- Ru Y, Zheng S, Xue H, Pang H. Potassium Cobalt Hexacyanoferrate Nanocubic Assemblies for High-Performance Aqueous Aluminum Ion Batteries. *Chemical Engineering Journal*. 2020;382:122853.
- Hou X.L. Radiochemical Determination of ⁴¹Ca in Reactor Concrete for Decommissioning. *Radiochimca Acta*. 2005;93:611–617.
- Hou X.L. Radiochemical Analysis of Radionuclides Difficult to Measure or Waste Characterization in Decommissioning of Nuclear Facilities. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2007;273:43–48.
- Hou X.L, Frøsig L, Nielsen S.P. Determination of ³⁶Cl in Nuclear Waste from Reactor Decommissioning. *Analalytical Chemistry*. 2007;79:3126–3134.
- Hou X.L, Ostergaard L.F, Nielsen S.P. Determination of ⁶³Ni and ⁵⁵Fe in Nuclear Waste Samples Using Radiochemical Separation and Liquid Scintillation Counting. *Analytical Chimica Acta*. 2005;535:297–307.
- Choi K.C, Park S.K, Han S.H, Choi K.S, Jee K.Y. Determination of ¹²⁹I in Radioactive Waste from Korea Npps. *Proceedings of 10th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management*. 2005:1446–1449.
- Osvath S, Vajda N, Molnar Z, Kovaca-Szeles E, Braun M, Halasz M. Determination of ⁹³Zr in Nuclear Power Plant Wastes. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2017;314:31–38.
- Guerin N, Gagne A, Kramer-Tremblay S. A rapid method for the routine monitoring of Tc-99 by liquid scintillation counting. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2017;314:2009–2017.
- Hou X. Liquid Scintillation Counting for Determination of Radionuclides in Environmental and Nuclear Application. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2018;318:1597–1628.
- Shi K.L, Hou X.L, Roos P, Wu W.S. Determination of Technetium-99 in Environmental Samples: A Review. *Analtical Chimica Acta*. *Analtical Chim Acta*. 2011;709:1–20.
- Rozas S, López J, Idoeta R, Herranz M. Selectivity Analysis of ⁹⁹Tc Determination by LSC in the Field of Nuclear Decommissioning. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2022;331:3335–3341.
- Butterworth J.C, Livens F.R, Makinson P.R. Development of a Method for the Determination of Low Levels of Technetium-99. *The Science of the Total Environment*. 1995;173/174:293–300.
- Reis A.S, Temba E.S.C, Kastner G.F, Monteiro R.P.G. Isolation and Activity Determination of ⁹⁹Tc in Nuclear Waste by Liquid Scintillation Counting. *2011 International Nuclear Atlantic Conference- INAC*. 2011.
- Chao J.H, Tseng C.L, Lee C.J. Sequential Extraction Separation for Determination of Technetium-99 in Radwastes by ICP-MS. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2002;251(1):105–112.
- Shia K, Houa X, Roosa P, Wub W. Determination of Technetium-99 in Environmental Samples: A review. *Analytica Chimica Acta*. 2012;709:1–20.
- Momoshima N, Sayad M, Takashima Y. Analytical Procedure for Technetium-99 in Seawater by ICP-MS. *Radiochimca Acta*. 1993;63:73–78.
- Ikaheimonen T.K, Vartti V.P, Ilus E, Mattila J. Technetium-99 in Fucus and Seawater Samples in the Finnish Coastal Area of the Baltic Sea. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 1999;252:309–313.
- Goken G.L, Bruening R.L, Krakowiak K.E, Izatt R.M. Metalion Separations Using Superlig or Analig Materials Encased in Empore Cartridges and Disks. *ACS Symposium Series 716, American Chemical Society, Washington, DC*. 1999;251–529.



24. Vesely A, Trombitas H, Lindauer H. Determination of beta emitters in materials from research reactor decommissioning. In: Eikenberg J, Jaeggi M, Beer H, Baehrle H (eds) *Advances in liquid scintillation spectrometry*. University of Arizona, Radiocarbon Publishers, Tucson. 2008;435-441.
25. Haas P.A. A Review of Information on Ferrocyanide Solids for Removal of Cesium from Solutions. *Separation Science and Technology*. 1993;28:2479-2506.
26. Remenec B, Dulanska S, Paucova V, Matel L. Determination of ^{99}Tc in Evaporator Concentrates Using Solid Phase Extraction Techniques. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2011;290:403-407.
27. Gaca P, Reading D, Warwick P. Application of Multiple Quench Parameters for Confirmation of Radionuclide Identity in Radioanalytical Quality Control. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 2019;322:1383-1390.

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**

یاوری، رامین، صابریان، کمال، مالکی‌فارسانی، علی، سلیمی، بهرام، سلیمان‌زاده، بهمن، حیدری، امیر، طبسی، محسن. (۱۴۰۴)، تعیین کیفی و کمی تکنسیم-۹۹ در پسماند تغلیظ شده نیروگاه اتمی بوشهر. *مجله علوم، مهندسی و فناوری هسته‌ای*، ۱۱۲(۲)، ۷۹-۸۸. DOI: <https://doi.org/10.24200/nst.2024.1649>.
 Url: https://jonsat.nstri.ir/article_1649.html