



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

علی پذیرنده^{۱*}، حسین پورسلیمانی^۲

۱- گروه فیزیک، دانشگاه تهران، صندوق پستی: ۱۹۴۴-۱۹۳۹۵، تهران - ایران

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

چکیده: تبدیل محصولات شکافت با نیمه‌عمر طولانی یکی از موانع مهم در توسعه و کاربرد انرژی هسته‌ای در جهان است. در این مقاله، نتایج بررسی استفاده از محصولات شکافت با نیمه‌عمر طولانی و دارای سطح مقطع جذب مناسب بجای سم قابل سوخت در مجتمع‌های سوخت رآکتور آب سبک عرضه خواهد شد. ایزوتوپهای مورد نظر شامل آنهایی می‌شود که نیمه‌عمر بیش از ۵۰۰ سال دارند، از جمله ^{79}Se ، ^{93}Zr ، ^{94}Nb ، ^{99}Tc ، ^{107}Pd ، ^{126}Sn ، ^{129}I ، ^{135}Cs ، ^{126}Sn ، ^{129}I ، ^{135}Cs . هدف اصلی ما به کاربردن ایزوتوپی با نیمه‌عمر طولانی، سطح مقطع نسبتاً بزرگ و دارای خاصیت فلزی است که در ترکیب، مشکلات شیمیایی ایجاد نکند. در محاسبات بکار رفته، از کدهای WIMS، CITATION، ORIGEN و کتابخانه‌های ENDF/B6 استفاده شده است. نتایج محاسبات نشان می‌دهند که می‌توان از ^{99}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}Tc as Burnable Poison Instead of ^{10}B in Nuclear Fuel Assemblies

A. Pazirandeh^{*1}, H. Poor-Solaimani²

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: ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{94}Nb , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}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}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

1000 که اثرهای رادیوآکتیویته‌ای آن در چرخه اول همانند بور عمل کند، مدنظر بوده است. جداسازی ^{129}I در بازفراوری سوخت، یک روش صنعتی شناخته شده است. در حال حاضر ^{129}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، ^{129}I بتدریج انباشته می‌شود. اگر ^{129}I به مخازن زیرزمینی پسماندها اضافه شود، همراه دیگر محصولات شکافت ^{129}I 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 $1.0 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 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 متالوژی 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؟^(۴)

بر اساس این ضوابط، ایزوتوپ‌های ^{129}I ، ^{99}Tc ، ^{93}Zr ، ^{111}Sn ، ^{130}Cs ، ^{107}Pd انتخاب می‌شوند. بین این تعداد ایزوتوپ ^{130}Cs دارای سطح مقطع جذب کم ($8/7$ بارن) و ضمناً همراه آن ^{137}Cs نیز جدا می‌شود که در مقایسه نیمه‌عمر زیادی ندارد. ^{129}I و ^{99}Tc از همه مناسب‌ترند، ولی در مرحله محاسبات مشخص شد که در کتابخانه WIMS سطح مقطع جذب ^{129}I

پاره‌های شکافت و ایزوتوپ‌های حاصل از آنها، از موانع بزرگ در صنعت انرژی هسته‌ای و توسعه آنند. در بین این محصولات آنهایی که دارای نیمه‌عمر طولانی‌تر و قابلیت تحرک بیشتری دارند مشکلات زیادی در طراحی روش‌های دفن پسماندهای رادیوآکتیو ایجاد می‌کنند. از جمله محصولاتی که می‌توان نام برد عبارتند از

^{130}Cs ، ^{129}I ، ^{111}Sn ، ^{107}Pd ، ^{99}Tc ، ^{94}Nb ، ^{93}Zr ، ^{79}Se

^{108}Ag ، ^{158}Tb ، ^{166}mHo 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 ^{129}I از جمله این محصولات است. اثرهای زیست محیطی بعضی از این محصولات بسیار جدی است [۲] و [۳]. ^{129}I و تکنیسیوم در آبهای زیرزمینی حل می‌شوند و به آسانی مهاجرت می‌کنند [۴].

تبدیل محصولات شکافت به ایزوتوپ‌های با نیمه‌عمر کوتاه و پایدار کاری بسیار دشوار ولی ایده‌آل برای حفظ محیط زیست است. رآکتورهای حرارتی و دستگاه‌های شتاب‌دهنده شکافتهای انفجاری^(۱) سرب که همراه مواد سوختی‌اند، وسیله مناسبی برای تبدیل محصولات شکافت به ایزوتوپ‌هایی 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)^(۲) بعنوان سم قابل سوخت

- تبدیل این محصولات به ایزوتوپ‌هایی با نیمه‌عمر کوتاه (SLFP)^(۳)

در این بررسی امکان استفاده از محصولات شکافت بجای بور در میله‌های سم قابل سوخت در مجتمع‌های سوخت رآکتور نوع VVER-



غناي $1/6\%$ ، $2/4\%$ ، $3/62\%$ در قلب رآكتور به كار مي‌روند. در مديريت چيدمان، ميله‌هاي سوخت بطور متقارن در قلب توزيع شده‌اند. يك نوع چيدمان در شكل ۱ نشان داده

يافت نمي‌شود. لذا كار را با ^{99}Tc شروع كرديم. ضمناً يادآور مي‌شود كه علاوه بر جذب حرارتي و رزونانس، واكنش $(n,2n)$ نيز رخ مي‌دهد كه در تبديل ايزوتوپی سهم اندكي دارد. اما ^{98}Tc نيز نيمه عمر طولاني دارد [۳].

۳- مدل محاسبه و شبیه‌سازي

در اين مدل محاسباتي، چند نکته اساسي در نظر گرفته شده است:

- جايزگزيني يكي از محصولات شكافت با نيمه عمر بلند بجای بور در مجتمع‌هاي سوختي بعنوان سم قابل سوخت تا بگونه‌اي عمل كند كه رآكتيوپيته منفي معادل بور در طول مدت چرخه اول ايجاد نمايد.
- نرخ مصرف محصول شكافت با نيمه عمر طولاني (LLFP) همتراز با نرخ مصرف بور باشد.
- در پايان چرخه اول بايد مقدار جزئي از محصول شكافت با نيمه عمر طولاني در ميله‌هاي سوخت باقي بماند تا بتواند از نظر ايمني قابل قبول حاشيه ايمني باشد.

شكل ۱- يك ششم قلب رآكتور بوشهر جهت محاسبات معادلات پخش (در چرخه اول).

شده است. ضمناً، بطوريكه گفته شد سم قابل سوخت حاوی بور به ترتيب $0/02\%$ ، $0/036\%$ ، $0/05\%$ گرم در سانتي‌متر مكعب در مجتمع‌هاي مختلف سوخت منظور شده است. بديهي است كه محاسبات سلولي براي كلييه سلولها بايد انجام گيرد. بدین ترتيب، محاسبات سلولي براي تعيين پارامترهاي نوترونيك سلولها در دو گروه انرژي در زمان‌هاي مختلف كار كرد رآكتور انجام گرفت. در طول مدت چرخه اول، محصولات شكافت و اکتنيدها تغييرات ويژه خود را دارند، بنابراین اثرهاي تجمعی آنها در محاسبات سلولي منظور شده‌اند. در طول مدت چرخه اول قدرت رآكتور ثابت و يکناخت فرض شده است.

- پس از انجام محاسبات سلولي در هر مرحله، براي تعيين توزيع شار و ضريب تکثير از کد سه بعدی CITATION در دو گروه انرژي، در يك ششم قلب استفاده شده و اثرهاي كلييه مجتمع‌هاي

- بور در رآكتور قدرت VVER-1000 به سه صورت وجود دارد (۱) بصورت اسيد بوريك محلول در خنك‌كننده (۲) به صورت تركيب $\text{CrB}+\text{Al}$ در بعضي از مجتمع‌هاي سوخت به يكي از سه مقدار $0/02\%$ ، $0/036\%$ ، $0/05\%$ در هر سانتي‌متر مكعب (۳) به صورت محصولات شكافت هرچند به مقدار جزئي است. وقتي بجای بور از ^{99}Tc بعنوان سم قابل سوخت در ميله‌هاي مجتمع سوخت استفاده كنيم، ^{99}Tc خود نيز يكي از محصولات شكافت خواهد بود كه در خروجی OREGIN همراه با محصولات شكافت آورده مي‌شود. با در نظر گرفتن اين ضوابط، محاسبات به ترتيب زير انجام گرفت:

- محاسبات سلولي قلب رآكتور VVER 1000 را به كمك كد WIMS با توجه به ساختار شش ضلعي مجتمع‌هاي سوخت انجام داديم. مجتمع‌هاي سوخت در سه نوع با



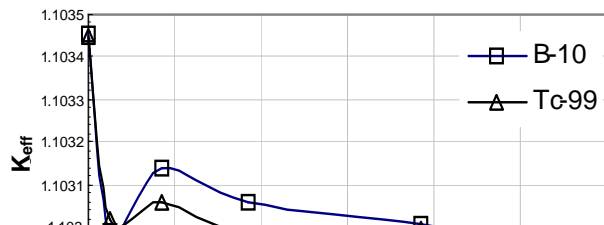
۴- محاسبات و نتایج

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 کد WIMS در قلب رآکتور شکل ۱ انجام گرفت. سطح مقطع‌های مواد در سلول، در دمای کار رآکتور با توجه به دمای سوخت، غلاف و خنک‌کننده حساب شد. سپس پارامترهای دو گروهی را در کد CITATION قرار داده و توزیع شار و k_{eff} را در آغاز کار رآکتور حساب کردیم. با اجرای برنامه کامپیوتری OREGIN کلیه محصولات شکافت و آکتیوها را پس از دو روز کار به دست آورده، سپس تعداد آکتیوها و محصولات شکافت را بعنوان ورودی به کد WIMS داده‌ایم و محاسبات، برای هر چند روز کارکرد رآکتور، طبق جدول ۱ انجام گرفت. خروجی WIMS به کد 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 تکنسیوم ۹۹ دیده می‌شود.

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

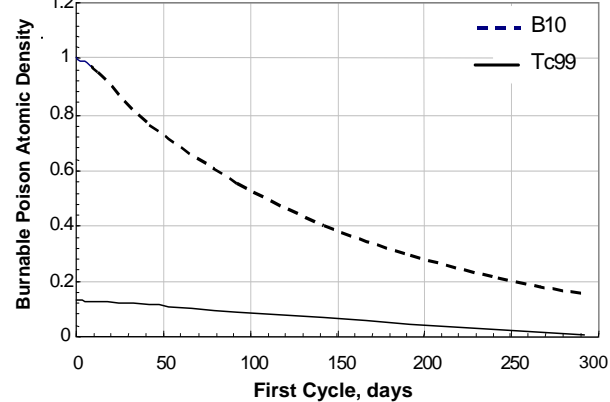
۲	۵	۸	۱۲	۴۲	۹۲	۱۴۲	۱۹۲	۲۴۲	۲۹۲
۰,۹۸	۰,۹۸	۰,۹۶	۰,۹۵	۰,۷۶	۰,۵۵	۰,۴۰	۰,۲۹	۰,۲۱	۰,۱۵
۷	۷	۸	۱	۷	۷	۴	۲	۰	۱
۸۸,۱	۸۸,۱	۸۷,۳	۸۶,۲	۱,۷۷	۶۲	۴۷,۲	۳۲,۰	۱۷,۳	۲,۱۷
۱	۱	۹	۱	۱	۱	۱	۷	۰	۰

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

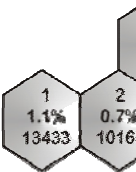


سوخت در محاسبات موردنظر بوده است.

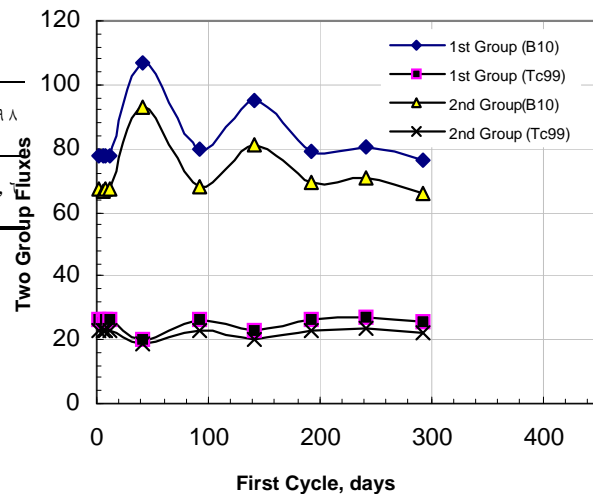
برای تعیین چگالی اتمی کلیه ایزوتوپهای موجود تولید شده در قلب با بهره‌گیری از نتایج بدست آمده از کد ORIGEN و با توجه به چیدمان از پیش تعیین شده، تغییرات را در مقاطع معین چرخه اول بدست آورده‌ایم که در شکل ۲ دیده می‌شود. این مراحل محاسباتی برای هر دو سم قابل سوخت بور ۱۰ و ^{99}Tc انجام گرفت. به علت پیچیدگی محاسبات ابتدا فرض کردیم که سطح غلظت اسید بوریک در خنک‌کننده ثابت است و ضمناً اثرهای زینان و ساماریوم



ره مجتمع سوخت
غناي
میزان میانگین
مصرف سوخت
MWD/T



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



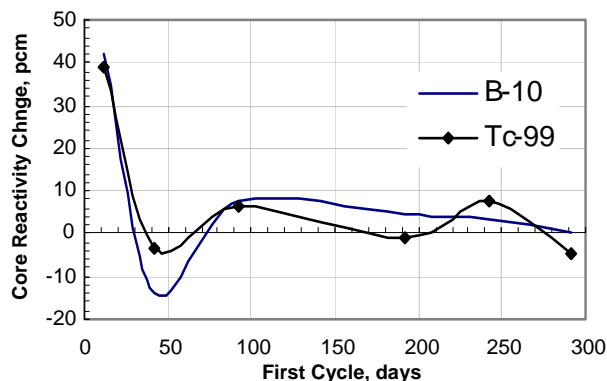
شکل ۳ - تغییرات شار دو گروهی در طول مدت چرخه اول برای بور ۱۰ و تکنسیوم ۹۹.



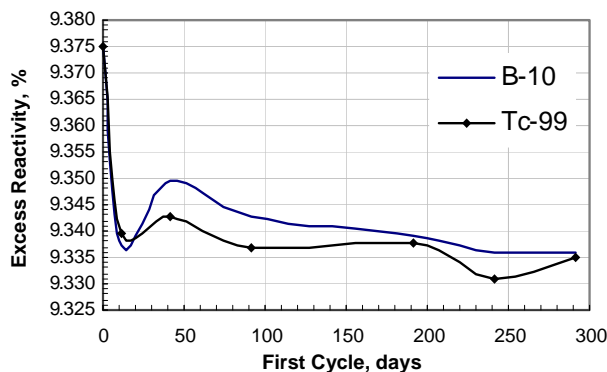
نحوی است که در ابتدای کار رآکتور در اثر انباشت زینان و ساماریوم علی‌رغم مصرف شدن سم قابل سوخت، k_{eff} افت می‌نماید. لازم به یادآوری است که در محاسبات، چگالی اسیدبوریک را در 1400 ppm ثابت نگهداشته و حفظ کردیم. افت در k_{eff} برای هر دو جاذب ^{10}B و ^{99}Tc کم و بیش مشابه است که در شکل ۴ مشاهده می‌شود و ناشی از تغییرات سطح مقطع میکروسکوپی جذب است (شکل ۷). تغییرات سطح مقطع میکروسکوپی جذب بور ۱۰ و تکنیسیوم ۹۹ در شکل‌های ۸-الف و ۸-ب داده شده‌اند. مزیت تکنیسیوم 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 پچیدگی 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 پس‌خوران (فیدبک) و میزان

بور و تکنیسیوم در شکل‌های ۴ تا ۶ نشان داده شده‌اند.

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



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



شکل ۶- تغییرات رآکتیویته مازاد در طول چرخه اول.

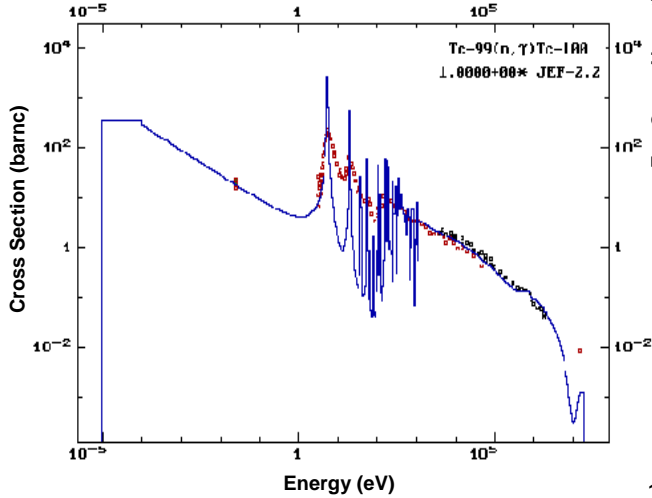
۵- بحث و نتیجه‌گیری

بطوری که در شکل‌های ۴، ۵ و ۶ مشاهده می‌شود تغییرات k_{eff} و تغییرات رآکتیویته، همچنین رآکتیویته مازاد قلب رآکتور به



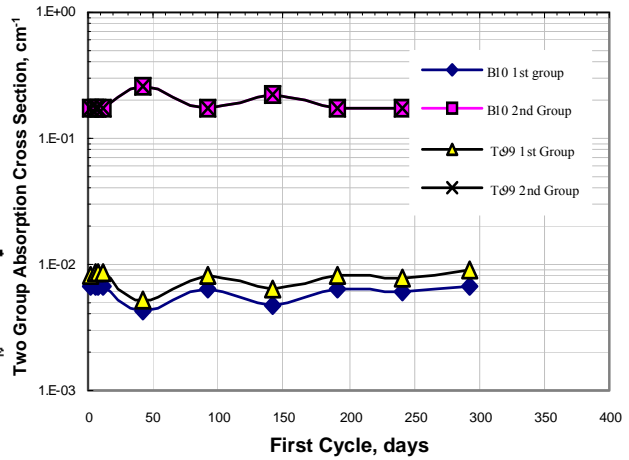
عوامل دینامیکی دخالت داده خواهد شد.

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

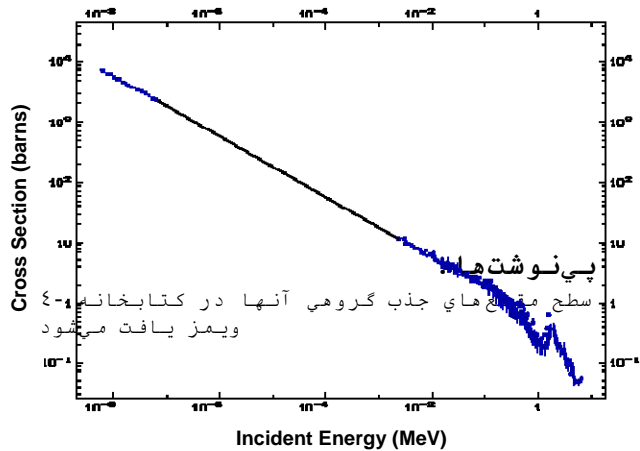


شکل ۸ (ب) - تغییرات سطح مقطع جذب تکنیسوم ۹۹ بر حسب انرژی نوترون.

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



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



References:

1. M. Setiwan 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, "¹²⁹I 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).

