

مدیریت پسماندهای پرتوزای احتمالی حاصل از تولید ^{99}Mo شکافتی از هدف اورانیومی با غنای پایین

نقیسه سالک، علی یداللهی، حمید سپهریان*، رضا داورخواه، جواد فصیحی رامندی و محسن طبسی

پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، صندوق پستی ۱۱۳۶۵-۸۴۸۶ تهران، ایران.

*تهران، تهران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای، صندوق پستی ۱۱۳۶۵-۸۴۸۶ تهران، ایران.

پست الکترونیکی: hsepehrian@aeoi.org.ir

چکیده

در این مقاله اطلاعات مربوط به پسماندهای پرتوزای احتمالی تولید شده در فرآیند تولید ^{99}Mo شکافتی به کمک اهداف اورانیومی LEU در داخل کشور و نحوه مدیریت آن‌ها طی کل مراحل تولید، بر اساس محاسبات هسته‌ای با استفاده از کد ORIGEN ارائه شده است. با توجه به نتایج به دست آمده، پسماندهای جامد، مایع و گازی احتمالی تولیدی، ترکیبی از پسماندهای سطح پایین (LLW) و سطح متوسط (ILW) و حاوی اورانیوم غنی شده و سایر محصولات شکافت و اکتینیدها هستند. بر اساس نتایج محاسبات پرتویی و گرمای حاصل از هسته‌های پرتوزای موجود در هر بسته پسماند، به نظر می‌رسد، هیچ پسماند سطح بالایی از تأسیسات تولید ^{99}Mo تولید نمی‌شود، زیرا این پسماندها شامل هسته‌های پرتوزای بلند عمر یا آلفا با پرتوزایی بیش از 400 Bq/g که حرارت آن‌ها بیش از 2 kW/m^3 نیستند. جنبه‌های اقتصادی مدیریت پسماندهای حاصل از تولید ^{99}Mo مهم بوده و تأثیر قابل توجهی در قیمت نهایی ^{99}Mo و محصولات جانبی فرآیند می‌گذارد. در فرآیند تولید ^{99}Mo شکافتی، بازیابی اورانیوم شکافته نشده بسیار توصیه می‌شود و ترجیحاً اورانیوم باید در تأسیسات تولید ^{99}Mo از جریان‌های پسماند تفکیک شود.

کلیدواژه‌گان: ^{99}Mo ، اورانیوم غنا پایین، محاسبات پرتوی، طبقه‌بندی پسماند، مدیریت پسماند.

۱. مقدمه

مدیریت پسماند، شامل مسیر فرآیند انجام شده روی هدف اورانیومی مصرف شده و محصولات شکافت با نیمه عمر طولانی تولید شده در فرآیند توصیف شده توسط واحد قانونی مورد تأیید قرار بگیرد. سایر موضوعات مهم نظیر بحرانی شدن اورانیوم و گرمای واپاشی هسته‌های پرتوزا نیز باید مورد توجه قرار گیرند [۱، ۲].

مدیریت پسماندهای پرتوزای حاصل از تولید ^{99}Mo ، که از مهمترین هسته پرتوزا برای کاربردهای پزشکی است، باید به گونه‌ای انجام شود که حفاظت از مردم و محیط زیست برای حال و آینده تضمین شود. در مراحل مختلف برنامه‌ریزی، طراحی، ساخت و بهره‌برداری از تأسیسات تولید ^{99}Mo ، توجه به مسئله مدیریت پسماند و اجرای آن نقش مهمی دارد. در خلال فرآیند صدور مجوز برای تأسیسات تولید ^{99}Mo ، باید استراتژی

در سال‌های اخیر برای کاهش نگرانی‌های مربوط به اشاعه‌ی هسته‌ای، کشورهای مختلف در تلاش هستند تا با جایگزین کردن سوخت و اهداف اورانیوم با غنای پایین (LEU)، استفاده از اورانیوم با غنای بالا (HEU) را کاهش دهند. استفاده از اورانیوم LEU نسبت به HEU جهت تولید ^{99}Mo چندین اثر روی تولید پسماند پرتوزا دارد:

- افزایش مقدار محصولات جانبی اورانیوم پرتودهی شده که باید تثبیت، ذخیره‌سازی و نهایتاً جابه‌جا گردند.

- افزایش تولید پسماند پرتوزا (تجهیزات و مواد شیمیایی مصرف شده، وسایل نظافتی و غیره) در نتیجه فرآوری مقدار بیش‌تر اورانیوم برای رسیدن به بهره یکسان تولید ^{99}Mo .

- افزایش تولید پلوتونیم و سایر عناصر فوق اورانیومی که منجر به افزایش هزینه و دشواری فرآیند دفع پسماند می‌شود [۱۹-۳].

در این مقاله سعی شده است جزئیات مربوط به پسماندهای پرتوزای احتمالی تولید شده در فرآیند تولید مولبدن شکافتی به کمک اهداف اورانیومی LEU در داخل کشور و نحوه مدیریت آن‌ها طی کل مراحل تولید ^{99}Mo ارائه شود.

۲. مواد و روش‌ها

۱.۲. مشخصات هدف

هدف‌های اورانیومی مورد استفاده در راکتور تهران برای تولید ^{99}Mo ، شامل صفحات مینیاتوری با مغز آلیاژی اکسید اورانیوم به فرم شیمیایی $\text{U}_3\text{O}_8/\text{Al}$ که بین دو صفحه آلومینیومی ساندویچ شده، است. مشخصات جرمی و ابعاد این هدف‌ها در جدول (۱) آمده است.

به منظور لحاظ نمودن بیشینه پرتوزایی، فرض مسئله بدین شکل در نظر گرفته شد که برای تولید سالانه ^{99}Mo ، هر هفته

حجم و نوع پسماندهای پرتوزای ناشی از تولید ^{99}Mo تا حد زیادی وابسته به روش تولید است. بیش‌تر روش‌های مورد استفاده برای تولید ^{99}Mo بر اساس شکافت هسته‌ای، حاوی اهداف ^{235}U است. تولید ^{99}Mo به وسیله شکافت ^{235}U (HEU یا LEU) با استفاده از بمباران نوترونی در بسیاری از کشورها در مقیاس صنعتی، عملیاتی شده است. اگرچه این روش تولید تقریباً کل تقاضای جهانی برای ^{99}Mo را فراهم می‌کند، اما بیش‌ترین مقدار پسماند پرتوزا نیز در این روش تولید می‌گردد. در واقع طیف وسیعی از هسته‌های پرتوزا از شکافت ^{235}U تولید می‌شود که با فرآوری اهداف اورانیومی مقادیر قابل توجهی پسماند پرتوزای حاوی محصولات شکافت با نیمه عمر طولانی و نشردهنده‌های α تولید می‌شوند.

حضور محصولات شکافت و آکتینیدها در پسماندهای پرتوزای جامد و مایع به‌ویژه در کشورهای فاقد زیر ساخت مدیریت پسماند، تمامی این مراحل را پیچیده می‌کند. آمایش و تثبیت پسماندهای حاصل از تولید ^{99}Mo به‌روش شکافت، نیاز به فن‌آوری و تجهیزات پیشرفته‌تر، مدیریت از راه دور در هات‌سل‌ها، بسته‌های پسماند حفاظ‌گذاری شده، و ظرفیت برای انبارش موقت پسماند دارد. پسماندهای تولید شده به‌صورت جامد، مایع و یا گاز شامل مواد با سطح پرتوزایی کم، متوسط و حتی بالا می‌شود. آمایش اولیه جریان‌های پسماند معمولاً در محل تولید قبل از انبارش کوتاه یا طولانی مدت مورد نیاز است. فرآیند آمایش مورد نیاز براساس نوع پسماند و سطح پرتوزایی آن تعیین می‌شود. این فن‌آوری تدوین شده و به‌طور کلی در کشورهای دارای صنعت هسته‌ای موجود است. در بعضی موارد ممکن است احداث تجهیزات انبارش مورد نیاز باشد. دفع نهایی پسماند نیز باید از ابتدای توسعه فرآیند تولید ^{99}Mo در نظر گرفته شود.

و پرتوزایی پاره‌های شکافت، محصولات فعال‌سازی و اکتینیدها هستند. همچنین برنامه، یک طیف کامل از هسته‌های پرتوزا هدف در انتهای پرتودهی در راکتور در بازه زمانی خنک‌سازی مورد نظر فراهم می‌کند.

شبه‌سازی شرایط پرتودهی هدف اورانیومی با غنای ۱۹٫۷٪ با کد ORIGEN برای تخمین هسته‌های پرتوزای تولیدی و شرایط پسماند پرتوزای تولیدی در زمان‌های مختلف تا ۵ سال انجام گرفته است. نتایج به دست آمده از این شبه‌سازی می‌تواند برای طبقه‌بندی پسماندهای تولیدی در پروژه تولید ^{99}Mo و مدیریت آن‌ها مورد استفاده قرار گیرد.

۳.۲. محاسبه محصولات فعال‌سازی

زمانی که آلومینیم موجود در هدف اورانیومی در راکتور مورد پرتودهی نوترون قرار می‌گیرد، واکنش‌های هسته‌ای زیر اتفاق می‌افتد:



تقریباً اکثر ناخالصی‌های پرتوزای تولید شده، دارای نیمه‌عمر کوتاه هستند. اگر چه ناخالصی‌های آلومینیم مانند C، Cr، Cu، Fe، Mn، Mg، Si، Ti و Zn هسته‌های پرتوزا با نیمه‌عمر بلند را تولید می‌کنند. تعداد هسته‌های پرتوزای به دست آمده بیش‌تر از ۶۸۸ است، اما در جدول (۲) تنها محصولات پرتوزایی که بعد از ۱۰ روز واپاشی، پرتوزایی دارند، ارائه شده است. در این جدول میزان پرتوزایی محاسبه شده محصولات فعال‌سازی بلافاصله پس از پرتودهی، ۱ روز، ۱ ماه و ۱ سال، ۲ سال و ۵ سال پس از پرتودهی ارائه شده است.

۱۰ مینی پلیت پرتودهی گردد، بنابراین در یک سال ۵۰ مرتبه پرتودهی انجام می‌گردد.

جدول (۱). مشخصات جرمی اجزای هدف اورانیومی.

ویژگی	کمیت	ویژگی	کمیت
غلای اورانیم (%)	19.0 ± 0.2	جرم کل Al (g)	۳۴٫۷۴
فرمول شیمیایی	U_2O_8	جرم مغز (g)	۲۰٫۹۰
شکل مغز	مربع	جرم صفحه (g)	۵۰٫۱۱
سوخت			
جرم ^{235}U (g)	۲٫۵۹	چگالی کل U در مغز (g/cm^3)	۲٫۹۴
جرم کل U (g)	۱۳٫۱۵	چگالی ^{235}U در مغز (g/cm^3)	۰٫۵۸
جرم کل UO_2 (g)	۱۵٫۳۷	چگالی مغز (gr/cm^3)	۴٫۶۷
جرم Al در غلاف (g)	۲۹٫۲۱	چگالی صفحه (g/cm^3)	۳٫۲۸
جرم Al در مغز (g)	۵٫۵۳	فرمول مغز (U_2O_8)	

۲.۲. تخمین پاره‌های شکافت، اکتینیدها و محصولات

فعال‌سازی

توان راکتور تحقیقاتی تهران برابر با ۴ MW و شار نوترونی آن حدود $2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ و مدت زمان پرتودهی برابر ۷ روز در نظر گرفته شده و پرتوزایی تمام هسته‌های تولید شده، در زمان‌های بلافاصله پس از پرتودهی، ۱ روز، ۱ ماه و ۱ سال، ۲ سال و ۵ سال پس از پرتودهی محاسبه شده است. تعداد هسته‌های پرتوزا که در طی خالص‌سازی و بازیابی ^{99}Mo به وجود می‌آیند، را می‌توان با داده‌های محاسبه شده برای هسته‌های موجود در ماده هدف، پس از تابش توسط نوترون‌ها در راکتور نشان داد. محاسبه هسته‌ای با استفاده از کد ORIGEN انجام می‌گیرد که قادر به محاسبه پارامترهای زیادی از جمله جرم

قطعات هدف و فرآیند بازیابی که در آن ^{99}Mo به روش شیمیایی از سایر محصولات شکافت در یک مرکز هات سل استخراج می شود. مقادیر پسماند براساس میزان تولید مورد نیاز خواهد بود.

۴.۲. فرآیند تولید ^{99}Mo شکافتی

فرآیند تولید ^{99}Mo شکافتی و پسماندهای تولید شده را می توان به چهار مرحله اصلی تقسیم نمود: ساخت و مونتاژ هدف اورانیومی، پرتو دهی هدف اورانیومی در راکتور، جدا کردن

جدول (۲). پرتوزائی محصولات فعال سازی و شکافت در واحد کوری (یک کوری معادل 3.7×10^{10} Bq است).

هسته پرتوزا	بلافاصله بعد از پرتو دهی	۱ روز خنک سازی	۱ ماه خنک سازی	۱ سال خنک سازی	۲ سال خنک سازی	۵ سال خنک سازی
^2H	7.75×10^{-3}	7.749×10^{-3}	7.713×10^{-3}	7.326×10^{-3}	6.927×10^{-3}	5.854×10^{-3}
^{23}Na	1.516×10^{-2}	5.002×10^{-3}	1.777×10^{-17}	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰
^{24}Mg	1.95×10^{-2}	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰
^{26}Al	3.28×10^{-2}	5.366×10^{-12}	2.316×10^{-22}	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰
^{56}Fe	6.337×10^{-7}	6.24×10^{-7}	3.931×10^{-7}	2.256×10^{-9}	8.153×10^{-12}	3.857×10^{-19}
^{60}Co	8.241×10^{-4}	8.245×10^{-4}	8.156×10^{-4}	7.229×10^{-4}	6.339×10^{-4}	4.2731×10^{-4}
$^{60\text{m}}\text{Co}$	1.76×10^{-1}	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰
^{61}Co	1.10×10^{-5}	4.616×10^{-10}	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰	۰.۰۰
^{63}Ni	1.707×10^{-6}	1.707×10^{-6}	1.706×10^{-6}	1.694×10^{-6}	1.682×10^{-6}	1.644×10^{-6}
^{133}Ba	5.535×10^{-6}	5.580×10^{-6}	5.637×10^{-6}	5.313×10^{-6}	4.982×10^{-6}	4.105×10^{-6}

۱.۴.۲. ساخت و مونتاژ هدف

مواد هدف (مینی پلیت اورانیم-۲۳۵ با غنای ۱۹٫۷ درصد) توسط شرکت سوره (ساخت سوخت راکتورهای هسته ای) تولید می گردد. ساخت هدف در داخل گلاوباکس انجام می شود که صفحات مینیاتوری با مغز آلیاژی اکسید اورانیم به فرم شیمیایی $\text{U}_3\text{O}_8/\text{Al}$ بین دو صفحه آلومینیمی ساندویچ شده است. باقیمانده حاصل از برش صفحات میتیاتوری بایستی وزن شود و سپس در ظرف استیل ضد زنگ بسته بندی شده و به منبع بازگردانده شود.

۲.۴.۲. پرتو دهی هدف

پرتو دهی هدف در راکتور تحقیقاتی تهران انجام می شود. خنک کردن هدف پرتو دیده در استخر راکتور تحقیقاتی تهران انجام می شود. یک مخزن مخصوص معمولاً برای حمل و نقل هدف پرتو دیده به تأسیسات هات سل برای اهداف فرآوری استفاده می شود. در هنگام انتقال هدف پرتو دیده از استخر راکتور به سالن راکتور و حمل و نقل آن از سالن راکتور به آزمایشگاه فرآوری، دزهای پرتوی بایستی کنترل شود. اگر زمانی هدف در طول پرتو دهی نوترون در راکتور آسیب دیده باشد، هدف از استخر خارج می شود و به عنوان پسماند پرتوزای جامد آمایش می شود.

۳.۴.۲. بازکردن هدف

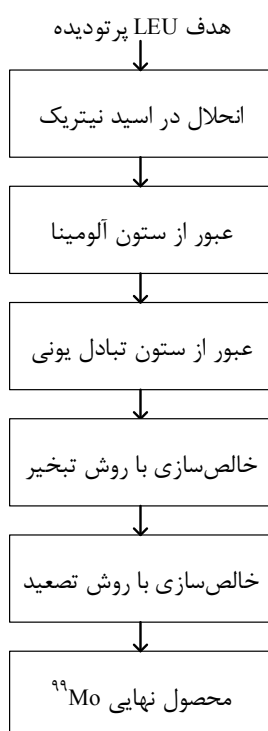
این کار به صورت مکانیکی در داخل هات سل انجام می شود. قسمت های آلومینیمی حداقل به مدت یک هفته در هات سل نگهداری می شوند تا زمانی که ^{24}Na به طور کامل واپاشی کند. قسمت های آلومینیمی به عنوان پسماند جامد پرتوزای سطح پایین آمایش می شوند.

۴.۴.۲. جداسازی ^{99}Mo

پس از پرتو دهی نوترونی هدف، فرآوری (بازیابی / استخراج) در هات سل حفاظدار صورت می گیرد، که ^{99}Mo از باقی مانده محصولات شکافت با انحلال شیمیایی و رسوب دهی استخراج می شود. فرآوری شامل چند مرحله است که از جمله آن ها حذف گازهای شکافت، افزودن محلول اسیدی برای حل کردن صفحات اورانیوم، جداسازی و خالص سازی ^{99}Mo و جمع آوری و بسته بندی پسماندها است. شکل (۱) فلوچارت فرآیند رادیوشیمیایی مورد استفاده برای استخراج و خالص سازی ^{99}Mo از پاره های شکافت و اکتینیدها را نشان می دهد [۴، ۱۹].

صفحات اورانیوم پرتودیده در نیتریک اسید ۶ مولار حل می شود. گازهای نجیب و ید با تقطیر از طریق یک تله سرد در دمای نیتروژن مایع از هدف خارج می شوند. محلول حاوی ^{99}Mo ، محصولات شکافت، اورانیوم و آلومینیم حل شده برای جداسازی ^{99}Mo ، ابتدا از ستون آلومینا عبور داده شده و به ترتیب به وسیله شوینده های نیتریک اسید ۰/۵ مولار، آب مقطر، محلول آمونیاک ۰/۰۱ و ۱ مولار شسته می شود. سپس از ستون تبادل یون عبور داده شده و به وسیله آب مقطر و آمونیم کربنات شسته شده و پسماند مایع پرتوزای حاوی محصولات شکافت، اورانیوم و آلومینیم نترات در مخزن پسماند مایع جمع آوری می شود. در نهایت برای خالص سازی ^{99}Mo محلول حاوی ^{99}Mo تبخیر و

سپس تصعید می شود. کیفیت ^{99}Mo بر اساس مشخصات فارماکوپه ایالات متحده که برای بارگذاری ژنراتورهای $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ مورد استفاده قرار می گیرد، بررسی می شود.



شکل (۱). فرآیند رادیوشیمیایی برای استخراج ^{99}Mo از محصولات شکافت.

۵.۴.۲. طبقه بندی پسماند پرتوزا

برای توسعه ایمنی هسته ای و حفاظت در برابر اشعه در کشور، مرکز نظام ایمنی هسته ای کشور (INRA) در مورد همه امور مرتبط راهنمایی می کند. مقررات مربوط به مدیریت پسماندهای پرتوزا، طبقه بندی پسماندهای پرتوزا را نشان می دهد (جدول ۳). طبقه بندی پسماندهای پرتوزای تعریف شده توسط INRA در طول مدیریت پسماند پرتوزای تولیدی در فرآیند مولیدن- ^{99}Mo شکافتی دنبال می شود.

جدول (۳). طبقه‌بندی پسماند پرتوزا توسط مرکز نظام ایمنی کشور (شناسه INRA-ME-RE-200-50/01-0-June).

ردیف	طبقه‌بندی پسماند	خواص نمونه
۱	پسماند معاف (EW)	که معیارهای پاکیزگی، معافیت و خروج از سیستم کنترل قانونی را دارا است.
۲	پسماند با پرتوزایی کم و متوسط (L & ILW)	پسماندهای با غلظت پرتوزایی بالاتر از حد پاکیزگی که به علت محتویات آن (به‌ویژه هسته‌های پرتوزا با نیمه عمر بالا) نیاز به جداسازی و حفاظت از محیط زیست تا چند سال داشته و در پسماندگاه‌های نزدیک سطح دفع می‌شوند. حرارت تولیدی توسط این پسماندها کم‌تر از 2 kW/m^3 است که این پسماندها به دو گروه پسماند با عمر کوتاه (LILW-SL) و پسماند با عمر بلند (LILW-LL) تقسیم می‌شوند.
۲-۱	پسماند با نیمه عمر کوتاه (LILW-SL)	که محتوی رادیونوکلئیدها با نیمه عمر تا ۳۰ سال و حد رادیونوکلئیدها آلفا از معادل 4000 Bq/g برای هر بسته و به‌طور متوسط برای کل تأسیسات دفع 400 Bq/g در آنها است.
۲-۲	پسماند با نیمه عمر بلند (LILW-LL)	شامل هسته‌های پرتوزا با عمر بلند.
۳	پسماند با پرتوزایی بالا (HLW)	این پسماندها به علت پرتوزایی بسیار بالا حرارت تولید کرده و محتوای مقادیر بسیار زیاد هسته‌های پرتوزا با نیمه عمر بالا است. حرارت تولیدی توسط این پسماندها بیش‌تر از 2 kW/m^3 است.

تذکر: این نوع طبقه‌بندی دارای اعداد و ارقام مشخص نیست و حدود اصلی براساس قوانین ملی و بر پایه محاسبات تحلیلی ایمنی برای سایت با سناریوهای متفاوت استخراج می‌شود.

۳. یافته‌ها و بحث

فرآوری اهداف اورانیم پرتودهی شده، دو مشکل خاص را از دیدگاه مدیریت پسماند ایجاد می‌نماید. اولین مشکل، زنون و کریپتون و همچنین ید (بسته به شرایط فرآیند) به‌شکل گازی هستند که در حین انحلال هدف آزاد می‌گردند. این گازها باید به‌شکل مؤثری از طریق جریان هوای هات‌سل دفع گردند تا از ورود آنها به محیط زیست جلوگیری شود.

در همه کشورها قوانین سخت‌گیرانه‌ای برای آزادسازی این هسته‌های پرتوزا به‌خصوص برای ^{131}I و ^{133}I (اغلب کمتر از یک کوری در سال در هر تأسیسات) اعمال می‌کنند. دومین مشکل، وجود هسته‌های پرتوزا با نیمه‌عمر بلند است که باید هنگام بازیافت و خالص‌سازی اورانیوم شکافته نشده (یک منبع با ارزش) در نظر گرفته شوند. برنامه‌ریزی دقیق و توسعه فرآیند جهت حفاظت پرسنل در مقابل دز پرتوی بالا در حین کار کردن،

انجام فرآیند، انبارش و دفع پسماند و یا جلوگیری از تولید حجم بالای پسماند (که متعاقباً باید دفع گردد) از موارد ضروری است که باید در نظر گرفته شوند. در ادامه براساس تجربیات کشورهای دیگر به نحوه مدیریت پسماند احتمالی برای برنامه تولید ^{99}Mo در داخل کشور خواهیم پرداخت.

۱.۳. پسماند پرتوزای گازی

عمده پسماند گازی و آئروسول که در طی فرآوری اهداف پرتو دیده (سرد شده برای مدت کوتاه) آزاد می‌شوند؛ گازهای نجیب (عمدتاً زنون) و هسته‌های پرتوزای ید هستند. برای جلوگیری از رهاسدن کنترل نشده آنها در محدوده داخل سلول، باید کلیه مراحل فرآیند تولید ^{99}Mo در دستگاه‌های ساخته شده سر بسته و بی‌منفذ انجام شود. زنون و سایر گازهای نجیب آزاد شده در مرحله انحلال را می‌توان در مخازن استیل ضدزنگ از پیش تخلیه شده، به دام انداخت. به دام انداختن بیش‌تر گازهای نجیب

توسط جذب کریوژنیک (در دمای نیتروژن مایع) روی ذغال فعال انجام می‌شود. معمولاً ید با جذب قلیایی و جذب روی ذغال پوشش داده شده با نقره به دام می‌افتد.

برای جلوگیری از انتشار ید و آئروسول‌های ذرات بتازا به محیط اطراف، معمولاً فیلترهای جذبی اضافی (یا فیلترهای آئروسول) استفاده می‌شوند. پس از به دام انداختن هسته‌های پرتوزای زنون و ید، این هسته‌ها جهت فروپاشی به مدت ۶ ماه در سلول نگهداری می‌شوند. پس از آن، مخازن نگهداری از طریق سیستم تهویه تخلیه می‌شوند. ید و زنون در صورت نیاز، بیشتر خالص‌سازی شده و به صورت جداگانه به فروش می‌رسند.

تأسیسات تولید ایزوتوپ به چندین نوع مانیتور اندازه‌گیری برای گازهای نجیب، ^{131}I و ذرات بتازا مجهز می‌شوند که بعد از فیلترها و در سیستم خروجی گاز قرار دارند. اندازه‌گیری‌ها به صورت پیوسته از زمان آغاز تولید ^{99}Mo انجام می‌شود تا هیچ‌گاه میزان انتشار گازهای پرتوزا و آئروسول به محیط زیست از محدودیت‌های سخت‌گیرانه اجرا شده توسط واحد قانونی فراتر نرود.

۲.۳. پسماند پرتوزای جامد

پسماند جامد در طی فرآیند تولید ^{99}Mo ، شامل تکه‌های بریده شده غلاف هدف اورانیومی (البته در بعضی موارد غلاف نیز کامل در اسید نیتریک غلیظ حل می‌شود)، ستون‌های کروماتوگرافی استفاده شده و چندین مورد از انواع فیلترهای سیستم به‌دام‌اندازی گازهای خروجی و سایر مواد مصرفی مورد استفاده در فرآیندهای داخل هات‌سل هستند. غلاف اهداف اورانیومی و ستون‌های کروماتوگرافی استفاده شده معمولاً درون قوطی‌های پلی‌اتیلنی ۱۰ یا ۱۵ لیتری بسته‌بندی شده و در پسماندگاه زمینی کم عمق حفاظ‌گذاری شده با بتن نگهداری می‌شوند.

معمولاً پسماندهای قابل فشرده‌سازی در هات‌سل از قبل فشرده شده و در قوطی‌ها جمع‌آوری می‌شوند. بسته به میزان دز (حداکثر ۱ Sv) بسته‌ها برای یک مدت زمان واپاشی چند ماهه یا چند ساله ذخیره می‌شوند تا میزان دز آن‌ها به کم‌تر از 2 mSv/h یا بین 2 mSv/h و 200 mSv/h برسد.

سرنگ‌های یک‌بار مصرف از حجم‌های مختلف برای افزودن معرف‌ها به محلول و ستون‌ها در طی فرایند جداسازی ^{99}Mo استفاده می‌شود. این سرنگ‌ها نیز آلوده می‌شوند و پس از بسته‌بندی در ظروف مناسب برای ذخیره‌سازی مناسب به شرکت پسمانداری صنعت هسته‌ای ایران تحویل داده می‌شوند. معمولاً برای به دام انداختن رادیوزنون یک‌بار از تله سرد استفاده می‌شود، در حالی که برای به دام انداختن رادیوید ممکن است برای چند دفعه از توری مسی استفاده شود. این تجهیزات نیز به‌عنوان پسماند جامد آمایش می‌شوند. پس از مدت زمان مشخصی، فیلتر HEPA و فیلتر کربن فعال در به دام انداختن ذرات و رادیوید ناکارآمد می‌شوند. اگر سطح پرتوی آن‌ها بیش از حد مجاز افزایش یافته یا عملکرد آن‌ها بر فشار منفی تأسیسات هات‌سل تأثیر بگذارد، این فیلترها نیز تعویض می‌گردند.

پسماندهای جامد پرتوزا شامل دستمال کاغذی/بسترهای جاذب، وسایل شیشه‌ای، پوشش‌های حفاظتی مانند دستکش، روکش‌های، قطعات فلزی فرسوده، تجهیزات و جاروبرقی است. آن‌ها با توجه به سطح پرتوزائی، محتوای گرما، خطرات احتمالی و یا روش آمایش طبقه‌بندی می‌شوند. برای اهداف عمومی، پسماندها به‌عنوان پسماند سطح پایین، سطح متوسط، سطح بالا و آلفازا نشانه‌گذاری می‌شوند. پسماند جامد پرتوزا با محتوای پرتویی نسبتاً بالا در ظروف حفاظ‌دار مناسب جمع‌آوری می‌شوند. جدول (۴) حجم و مقدار تقریبی

پسماندهای جامد تولیدی با توجه به مرتبه استفاده و طبقه‌بندی آن‌ها را بر اساس مقدار پرتوزائی نشان می‌دهد.

جدول (۴). مشخصات پسماند جامد احتمالی تولید شده از فرآیند تولید ^{99}Mo برای ۱ مرتبه فرآوری.

ردیف	نوع پسماند	مقدار پسماند	طبقه‌بندی پسماند
۱	ستون آلومینا مصرف شده	۱ قطعه ۱۲۰×۲۵mm	ILW-LL
۲	ستون رزینی مصرف شده	۱ قطعه ۱۲۰×۲۵mm	ILW-LL
۳	پسماندهای ناشی از سیستم تصفیه گاز (تعویض یکبار در سال)	۵ Kg	ILW-SL
۴	پسماند هات سل	۱۰۰ g	ILW-LL

۳.۳. پسماند پرتوزای مایع

در طی مراحل انحلال و بازیابی ^{99}Mo ، جریان‌های پسماند مایع مختلفی تولید می‌شود. جدول (۵) مقدار و حجم تقریبی پسماندهای مایع پرتوزای تولید شده از فرآیند تولید ^{99}Mo با توجه به مرتبه استفاده و برای یک مینی پلنت را نشان می‌دهد. براساس محتوای هسته‌های پرتوزای احتمالی موجود در هر پسماند و براساس محاسبات پرتوزایی و گرمای احتمالی تولید شده، پسماندهای هر مرحله طبقه‌بندی شده است.

پسماند مایع قابل شکافت، حاوی اورانیم و محصولات شکافت تولید شده از فرآیند تولید ^{99}Mo ، مربوط به محلول ناشی از فرآیند انحلال هدف و شویش اولیه ستون آلومینا است. این پسماندهای مایع با توجه به میزان پرتوزائی شان به‌عنوان پسماندهای سطح متوسط (ILW) طبقه‌بندی می‌گردند.

پسماندهای مایع غیرشکافت که در طول فرآیند تولید ^{99}Mo تولید می‌گردند، مانند محلول‌های شویش‌های دوم و بعدی ستون

آلومینا و همچنین محلول‌های اسکرابر با توجه به میزان پرتوزایی به‌عنوان پسماند سطح پایین (LLW) طبقه‌بندی می‌گردند.

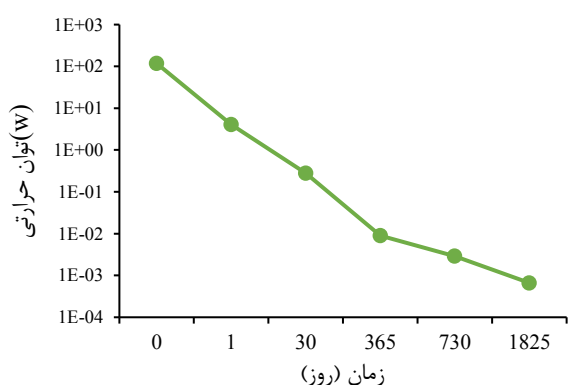
جدول (۵). مشخصات پسماند مایع احتمالی تولید شده از فرآیند تولید ^{99}Mo برای فراوری یک مینی پلنت

ردیف	نوع پسماند	حجم پسماند	طبقه‌بندی پسماند
۱	پسماند فرآیند انحلال هدف (HNO_3 ۶ مولار)	mL ۸۰۰	ILW-LL
۲	پسماند شویش ستون آلومینا (مرحله اول- HNO_3 ۰٫۵ مولار)	mL ۱۰۰	ILW-LL
۳	پسماند شویش ستون آلومینا (مرحله دوم- آب H_2O)	۵۰ mL	ILW-LL
۴	پسماند شویش ستون آلومینا (مرحله سوم- NH_4OH ۰٫۰۱ مولار)	mL ۱۰۰	ILW-LL
۵	پسماند محلول عبوری از ستون تبادل یون ($(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ ۱ مولار)	mL ۱۰۰	LLW
۶	پسماند شویش ستون تبادل یون (مرحله اول- آب H_2O)	۲۰ mL	LLW
۷	پسماند شویش ستون تبادل یون (مرحله دوم- آب H_2O)	۲۰ mL	LLW
۸	پسماند فرآیند خالص‌سازی ^{99}Mo ($(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ ۱ مولار)	۲۰ mL	LLW
۹	پسماندهای مایع حاصل از رفع آلودگی تجهیزات فرآیند	mL ۱۰۰	LLW

پسماندهای مایع همچنین در حین رفع آلودگی سطح داخل سل ممکن است ایجاد گردند که این پسماندها به‌عنوان پسماند سطح پایین (LLW) طبقه‌بندی می‌شوند و می‌توان آن‌ها را با دیگر پسماندهای مایع سطح پایین تولید شده در تأسیسات مخلوط کرد.

پسماند پرتوزای مایع، ابتدا معمولاً در مخازن نگهداری از جنس استیل ضدزنگ جمع‌آوری شده و به‌طور موقت در هات سل به مدت حدود ۶ ماه تا یک سال ذخیره می‌شوند تا

گرفته توسط کد ORIGEN، میزان حرارت تولید شده از هدف پرتودیده ناشی از حرارت مربوط به محصولات شکافت، فعال‌سازی و اکتینیدها بلافاصله پس از پرتودهی برابر با ۱۱۸ وات می‌باشد. این میزان حرارت پس از یک روز خنک‌سازی و یک هفته خنک‌سازی به ترتیب به $4/06$ و $1/12$ وات کاهش می‌یابد. پس از انحلال هدف و جداسازی ^{99}Mo از محصولات شکافت، حجم عمده هسته‌های پرتوزا در پسماند مایع حاصل از انحلال هدف تجمع پیدا می‌کنند. میزان حرارت تولید شده در پسماند مایع پس از یک هفته واپاشی به حدود $0/78$ وات می‌رسد. این میزان حرارت پس از یک ماه واپاشی به حدود $0/27$ وات خواهد رسید. با توجه به حجم پسماند ناشی از انحلال هدف اورانیومی (800 میلی‌لیتر)، میزان حرارت تولید شده از آن کمتر از 1 kW/m^3 بوده و لذا براساس طبقه پسماندهای پرتوزا در دسته پسماندهای با پرتوزایی کم و متوسط (LLW & ILW) قرار می‌گیرند. در جدول (۷) تخمینی از میزان پسماند تولیدی از فرآیند تولید ^{99}MO در یک سال ارائه شده است.



شکل (۳). توان حرارتی تولید شده محصولات شکافت، فعال‌سازی و اکتینیدها طی زمان.

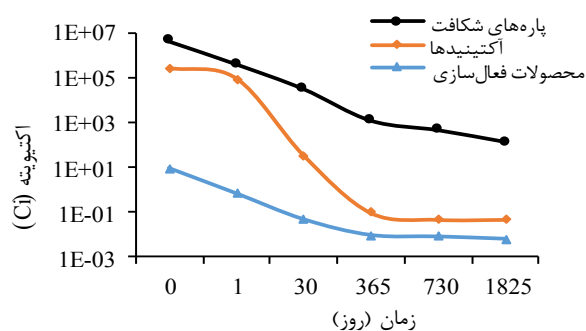
۴.۳. بازیابی محصولات جانبی

علاوه بر استخراج ^{99}Mo از تعداد زیادی از محصولات شکافت و اکتینیدها، جداسازی برخی هسته‌های پرتوزای مفید مانند ^{131}I ،

سطح پرتوزایی آن‌ها کاهش پیدا کند و امکان حمل آسان‌تری فراهم شود. پس از آن به تأسیسات فرآوری پسماند در شرکت پسمانداری صنعت هسته‌ای ایران برای تغلیظ و ذخیره‌سازی موقت بعدی منتقل می‌شوند. برای اجتناب از رسوب نمک‌های محلول و ممانعت از خوردگی مخازن نگهداری، بهتر است محلول‌های پسماند به صورت اسیدی (بدون خنثی‌سازی) ذخیره شوند. این پسماند شامل تمام اورانیم مصرف نشده (حدود $25/8$ گرم) و $11/48$ میلی‌گرم ^{239}Pu (جدول ۶) خواهد بود. پس از آمایش و تثبیت متداول (رسوب دهی، عبور از ستون تبادل یون و تثبیت در سیمان)، پسماند آمایش شده به محل دفع پسماند ارسال می‌شود. شکل (۲) واپاشی پرتوی محصولات فعال‌سازی، اکتینیدها و محصولات شکافت با زمان را نشان می‌دهد.

جدول (۶). مقدار کل ^{239}Pu در هر بار پرتودهی ۱۰ مینی پلنت.

جرم (mg)	نیمه عمر	پرتوزایی پس از پایان پرتودهی (Ci)	هسته پرتوزا
4,86	2,355 روز	$1,13 \times 10^3$	^{239}Np
6,56	$2,411 \times 10^4$ سال	$4,08 \times 10^{-4}$	^{239}Pu



شکل (۲). پرتوزایی محصولات شکافت، فعال‌سازی و اکتینیدها طی زمان.

میزان حرارت محصولات شکافت، فعال‌سازی و اکتینیدها طی زمان در شکل (۳) ارائه شده است. براساس محاسبات انجام

محصولات شکافت و اکتینیدها جهت تولید مجدد اهداف پرتودهی، بسیار اهمیت دارد. ولی به دلایل خاص کشورمان (معاهده برجام) تا مدت زیادی امکان بازیابی اورانیوم وجود ندارد. به دلیل هزینه بالای غنی سازی اورانیوم، بازیابی آن جهت استفاده مجدد در چرخه تولید مولیدن بسیار ارزشمند است. فرآیند بازیابی اورانیوم منجر به تولید جریان های پسماند مایع حاوی محصولات شکافت و اکتینیدها می شود. با توجه به سطح پرتو زایی نسبتاً بالای این جریان های پسماند، باید مدیریتی بهینه بر روی فرآیند تثبیت این نوع پسماند جهت نگه داری و دفع آن انجام گیرد.

تولید پسماند مایع برای هر دو نوع هدف سوختی (اهداف LEU و HEU) مورد استفاده برای تولید ^{99}Mo بر پایه شکافت متفاوت است. در ایران این فرآیند با استفاده از اهداف اورانیومی با غنای پایین (LEU) انجام گرفته که در آن میزان اورانیوم مصرفی ۵ برابر بیش تر از مقدار اورانیوم موجود در هدف HEU به منظور تولید همان مقدار ^{99}Mo می باشد. در نتیجه میزان جریان های پسماند مایع تولید شده در این فرآیند به مراتب بیش تر از روش HEU است. پسماندهای مایع تولید شده در این روش تقریباً تمام اورانیوم مصرف نشده و ^{239}Pu را شامل می شود. مطابق با گزارش آژانس بین المللی انرژی اتمی، ^{239}Pu در اهداف LEU در حدود ۲۶ برابر بیش تر از اهداف HEU با بازده قابل مقایسه ^{99}Mo ، تولید می شود، که هزینه های دفع را به طور قابل توجهی افزایش می دهد. پسماندهای جامد، مایع و گازی تولید شده در این فرآیند ترکیبی از پسماندهای سطح پایین، متوسط و حاوی اورانیوم غنی شده و سایر محصولات شکافت و اکتینیدها می باشند. با این وجود هیچ پسماند سطح بالایی از تأسیسات تولید ^{99}Mo تولید نمی شود، زیرا این پسماند شامل هسته های پرتو زای بلند عمر یا آلفا زا با پرتو زایی بیش از 400 Bq/g که حرارت آن ها بیش از 2 kW/m^3 نیست.

^{137}Cs ، ^{90}Sr و ^{133}Xe و غیره نیز ممکن است برای کاربرد آن ها در زمینه پزشکی و صنعتی انجام شود. در جدول (۸) پرتو زایی این هسته های پرتوزا در پایان پرتو دهی هدف LEU در راکتور تحقیقاتی تهران ارائه شده است. جداسازی این رادیونوکلیدها علی الخصوص رادیونوکلیدهای با نیمه عمر بلند مانند ^{90}Sr و ^{137}Cs که دارای نیمه عمر های بلند می باشند به پسمانداری فرآیند کمک شایان توجهی می نماید. با این حال در مطالعه حاضر، جداسازی محصولات جانبی از پسماند حین فرآیند تولید ^{99}Mo انجام نشده است و طبقه بندی پسماندهای تولیدی با فرض حضور این هسته های پرتوزا انجام گرفته است.

جدول (۷). میزان پسماند تخمینی از فرآیند تولید ^{99}MO در یک سال.

نوع پسماند	اجزای پرتو زای اصلی پسماند	مقدار پسماند
پسماند حاصل از آمایش گازهای پرتوزا	^3H , Xe, I, Kr	۲۰۰ کیلوگرم
پسماند آبی پرتوزا ILW	Pu, U و محصولات شکافت	۵۰۰ لیتر
پسماند آبی پرتوزا LLW	سطح پایینی از محصولات شکافت	۱۵۰ لیتر
پسماند جامد پرتوزا	مقادیر کم Pu, U و محصولات شکافت	۵۰ قطعه ستون آلومینا ۵۰ قطعه ستون تبادل یون سایر لوازم و تجهیزات مصرفی ۵۰ Kg

۴. نتیجه گیری

بررسی های انجام شده نشان می دهد که در یک هفته پرتو دهی اهداف اورانیومی و پس از گذشت یک سال از خنک شدن آن، غنای اورانیوم از ۱۹٫۷٪ به ۱۹٫۶٪ می رسد یعنی تنها ۰٫۷٪ ^{235}U در این مدت مصرف می شود. بنابراین بازیابی اورانیوم از جریان های پسماند مایع و جامد حاوی اورانیوم غنی شده و سایر

جدول (۸). پرتوزائی بعضی از هسته‌های پرتوزای مفید از پرتو دهی ۲۵٫۹ گرم هدف ^{235}U برای ۷ روز پرتو دهی در راکتور تحقیقاتی تهران.

کاربرد	پرتوزائی در پایان پرتو دهی (Ci)	نیمه عمر	بهره شکافت (%)	هسته پرتوزا
درمانی	$4,35 \times 10^{-1}$	۲۹٫۱ سال	۵٫۸۹	^{90}Sr (مادر)
-	$2,69 \times 10^{-1}$	۲٫۶۷ روز		^{90}Y (دختر)
تشخیصی	$8,30 \times 10^2$	۲٫۷۴۷ روز	۶٫۱۴	^{99}Mo (مادر)
-	$7,26 \times 10^2$	۶ ساعت		$^{99\text{m}}\text{Tc}$ (دختر)
درمانی - تشخیصی	$2,12 \times 10^2$	۸ روز	۲٫۸۳۵	^{131}I
تشخیصی	$5,82 \times 10^2$	۵٫۲ روز	۶٫۶۲	^{133}Xe
تشخیصی	$4,52 \times 10^{-1}$	۳۰ سال	۶٫۱۸	^{137}Cs (مادر)
-	$4,71 \times 10^{-1}$	۲٫۶ دقیقه		$^{137\text{m}}\text{Ba}$ (دختر)
صنعتی	$7,65 \times 10^2$	۲۸۵ روز		^{144}Ce
پزشکی	$4,79 \times 10^1$	۱٫۰۲ سال		^{106}Ru
صنعتی	$1,83 \times 10^1$	۲٫۶ سال		^{147}Pm

مشابهت این جریان پسماند با جریان‌های پسماند حاصل از بازفرآوری سوخت مصرف شده در راکتورهای هسته‌ای و تجربه موفق کشورهای مختلف در خصوص تثبیت این جریان‌های پسماند با سطح پرتوزایی پایین و متوسط (LILW)، در ماتریس شیشه بوروسیلیکات، تثبیت پسماندهای حاصل از فرآیند تولید ^{99}Mo مبتنی بر شکافت اهداف LEU در ماتریس شیشه بوروسیلیکات راه‌حلی عملی و قابل توجه به نظر می‌رسد.

این پژوهش کمک شایان توجهی نمودند تشکر و قدردانی می‌نمایند.

یکی از روش‌های متداول مدیریت این نوع جریان پسماند که در کشورهای مختلف نیز مورد استفاده قرار می‌گیرد، تثبیت آن در ماتریس سیمان است. با این حال با توجه به حجم زیاد جریان پسماند تولیدی و غلظت بالای محصولات شکافت و اکتینیدها در آن یکی از روش‌های پیشنهادی جهت تثبیت جریان پسماند حاصل از فرآیند تولید ^{99}Mo مبتنی بر شکافت اهداف LEU، استفاده از ماتریس شیشه بوروسیلیکات است. با توجه به

۵. تشکر و قدردانی

نویسندگان از شرکت مدیریت پسماندهای پرتوزای ایران که در

۶. مراجع

1. E. Basmanov, W. Baehr, V. M. Efremkov, J. Holub, P. Luycx, F. Maton, A. F. Tsarenko, H. V. Ruiz, R. Van Kleef, W.V. de Villers, P. Wong. Management of Radioactive Waste from ^{99}Mo Production. IAEA- TECDOC-1051, Vienna, 1998.
2. A. A. Sameh, H. J. Ache. Fission Molybdenum for Medical Use. IAEA-TECDOC-515, Vienna, 1989.
3. J. C. Hutter, B. Srinivasan, M. Vicek, G. F. Vandegrift. Production of Mo-99 using low-

- enriched uranium silicide. No. ANL/CMT/CP--84245. Argonne National Lab. 1994.
4. R. Münze, O. Hladik, G. Bernhard, W. Boeßert, R. Schwarzbach. Large-scale production of fission ⁹⁹Mo by using fuel elements of a research reactor as starting material. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* 35 (8) (1984) 749-754.
 5. A. Mushtaq, M. Iqbal, A. Muhammad. Management of radioactive waste from molybdenum-99 production using low enriched uranium foil target and modified CINTICHEM process. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 281 (3) (2009) 379-392.
 6. L. W. Thomson. The Molybdenum-99 production facility annual safety review 2003. Rep. AECL-MISC-303-03, 2003.
 7. A. J. Bakel, G. F. Vandegrift, K. J. Quigley, S. B. Aase, M. K. Neylon, K. P. Carney, A. Travelli. ANL progress in minimizing effects of LEU conversion on calcination of fission-product ⁹⁹Mo acid waste solution. No. INIS-XA-C-007, 2003.
 8. M. M. Osterhout. Decontamination and decommissioning of nuclear facilities. Springer Science & Business Media, 2012.
 9. M. Laraia. Pending issues in decommissioning of nuclear installations in developing countries. InProc. 4th US Department of Energy Int. Decommissioning Symp., Knoxville, TN, 2000.
 10. International Atomic Energy Agency. Decommissioning of Nuclear Facilities: Decontamination, Disassembly and Waste Management, Technical Reports Series (TRS), IAEA, Vienna (230) 1983.
 11. F. Helus. *Radionuclides Production*. Vol. 2 (Routledge Revivals). 1st ed. Boca Raton, CRC Press, 2019.
 12. International Atomic Energy Agency. Radioisotope Production and Quality Control, Technical Reports Series (TRS), IAEA, Vienna (128) (1971) 698-701.
 13. International Atomic Energy Agency. Quality Assurance for Radioactive Waste Package, Technical Reports Series (TRS) IAEA, Vienna (376) 1995.
 14. International Atomic Energy Agency. Inspection and Testing in Conditioning of Radioactive Waste. IAEA TECDOC, IAEA, Vienna (959) 1997.
 15. International Atomic Energy Agency. Characterization of Radioactive Waste Forms and Packages, Technical Reports Series (TRS), IAEA, Vienna (383) 1997.
 16. International Atomic Energy Agency. Requirements and Methods for Low and Intermediate Level Waste Package Acceptability. IAEA TECDOC, IAEA, Vienna (864) 1996.
 17. International Atomic Energy Agency. Minimization and Segregation of Radioactive Wastes. IAEA TECDOC, IAEA, Vienna (652) (1992).
 18. International Atomic Energy Agency. Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, IAEA Safety Standard, Safety Series, Vienna (6) (1990).
۱۹. م. طبسی، ع. بهرامی سامانی، س. د. شیروانی آرانی، م. قنادی مراغه، ا. محمدی. ارزیابی زنجیره تامین رادیونوکلید مولیبدن-۹۹ از طریق شکافت اورانیم با غنای پایین در ایران. مجله علوم و فنون هسته‌ای ۴۲ (۳) (۱۴۰۰) ۱۰۴-۱۱۰.