



## مقایسه تغییرات طیف گاما و دز سوخت های مصرف شده $ThO_2$ و $U_3O_8Al$ ضمن زمانهای مختلف خنک‌شوندگی به منظور امکانسنجی استفاده از سوخت توریومی در راکتور تحقیقاتی تهران

زهره\*، غلامزاده - جزءوزیری، عطیه - میروکیلی، سید محمد

سازمان انرژی اتمی، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده راکتور و ایمنی هسته‌ای

### چکیده:

از آنجائیکه امروزه به دلیل کاهش ذخایر اورانیوم جهان مجدداً استفاده از توریم در چرخه سوخت توریومی مطرح گردیده است، در این کار امکانسنجی استفاده از سوخت توریم در راکتور تحقیقاتی تهران از دیدگاه ایمنی پرتویی و آهنگ دز سوخت پرتودیده هدف واقع شده است. از کدهای *ORIGEN* و *MCNPX* برای محاسبه مصرف سوخت، بررسی طیف فوتون و نیز دز سوخت درون هوا و کسک سربی استفاده شده است. نتایج محاسبات نشان داد استفاده از سوخت توریم در راکتور تهران نیازمند بررسی دقیق دز در مراحل مختلف مصرف سوخت و نیز زمانهای متفاوت خنک‌شوندگی است و نیز این سوخت در مقایسه با سوخت اورانیومی راکتور در شرایط یکسان، دز گاهها بسیار بیشتری دارد.

کلمات کلیدی: راکتور تحقیقاتی تهران، کد *ORIGEN2.1*، کد *MCNPX2.6*، مقایسه دز سوخت توریم و اورانیوم

### Comparison of $ThO_2$ and $U_3O_8Al$ gamma Spectra and fuel dose during different Cooling times as a feasibility study of the use of Thorium fuel in Tehran Research Reactor

Gholamzadeh, Zohreh- Jozvaziri, Atieh- Mirvakili, Seyed Mohamad

### Abstract

Since the use of thorium in the thorium fuel cycle has been re-introduced today due to the reduction of uranium deposits in the world, the feasibility study of the use of thorium fuel in the Tehran Research Reactor has been targeted from the viewpoint of radiation safety and radiation dose rates. The *ORIGEN* and *MCNPX* codes have been used to calculate the fuel burnup, photon spectrum analysis, and fuel dose inside the air and lead transport cask. The results of the calculations indicated that the use of thorium fuel in the Tehran reactor requires a careful examination of the dose in different stages of fuel burnup and cooling times, and this fuel has much higher doses than the uranium fuel of the reactor under the same conditions.

**Keywords:** Tehran Research Reactor, *ORIGEN2.1*, *MCNPX2.6*, Thorium and uranium dose comparison



#### مقدمه :

فراوانی ذخایر توریم در طبیعت ۳ تا ۴ برابر ذخایر اورانیوم است و رفتار زاینده راکتورهای دارای سوخت توریم در طیف نوترون حرارتی، فوق حرارتی و سریع باعث گردیده است که استفاده از سوخت توریم مورد توجه خاص قرار گیرد. تحقیقات نشان داده است که در صورت استفاده از اورانیوم غنی شده تا حدود ۰.۵٪ از طریق چرخه سوخت باز، منابع اورانیوم کل جهان تنها می‌تواند تأمین‌کننده تقاضای رو به رشد انرژی تا چند دهه آینده باشد. از این رو توسعه چرخه سوخت‌های پیشرفته برای حل مشکل ضروری می‌باشد [۱ و ۲]. همچنین جرم بحرانی مورد نیاز  $^{233}\text{U}$  حدود ۱۵ کیلوگرم، جرم بحرانی مورد نیاز  $^{235}\text{U}$  حدود ۵۲ کیلوگرم و جرم بحرانی  $^{239}\text{Pu}$  ۱۰ کیلوگرم است [۳]. در سال ۲۰۱۵ Srinivasan et al سوخت اکسید توریم را به مدت ۵۰۸ روز در شار نوترون  $10^{14}$  n/s.cm<sup>2</sup> تابش دهی نمودند. همچنین این گروه طی انجام آزمایش‌ها و نیز محاسباتی توسط کد ORIGEN نشان دادند که مقدار دوز در میله سوخت اکسید توریم به علت سهم عناصری همچون  $^{232}\text{U}$ ،  $^{228}\text{Th}$ ،  $^{224}\text{Ra}$ ،  $^{220}\text{Rn}$ ،  $^{216}\text{Po}$ ،  $^{212}\text{Pb}$ ،  $^{212}\text{Bi}$  و  $^{208}\text{Tl}$  موجود در توریم تابش دیده است [۴]. همچنین به دلیل تجمع  $^{208}\text{Tl}$  در سوخت توریمی که گامای ۲/۶ MeV گسیل می‌کند، طیف سوخت توریمی تابش دیده سخت تر از طیف سوخت اورانیومی خواهد بود [۵]. با توجه به مزایای استفاده از سوخت توریم و نیز چالش‌های دز سوخت توریمی پرتودیده، در این کار دز دسته‌های سوخت توریمی که به روش شبیه سازی در راکتور تحقیقاتی تهران تابش دهی می‌گردند بررسی خواهد شد.

#### روش کار :

#### شبیه سازی با کد ORIGEN

کد ORIGEN 2.1 یک کد کامپیوتری Point-depletion برای محاسبات واپاشی مواد رادیواکتیو و مورد استفاده در شبیه سازی چرخه های سوخت هسته ای است که در آزمایشگاه ملی ORNL اوائل دهه ی ۱۹۷۰ توسعه داده شده است. این کد برای راکتورهای موجود، از جمله راکتورهای تحت فشار، راکتورهای آب جوشان، راکتورهای زاینده نمک مذاب و راکتورهای دوتریم-اورانیوم استفاده می‌شود [۶]. در ابتدا مصرف دسته های سوخت راکتور تهران و همچنین دسته های سوخت اکسید توریم در زمانهای مختلف و توان میانگین ۴ MW محاسبه گردید. طیف فوتون دسته های سوخت مصرف شده بر حسب زمان مصرف متفاوت (MWD متفاوت) و نیز زمانهای خنک شونده متفاوت بررسی شد.

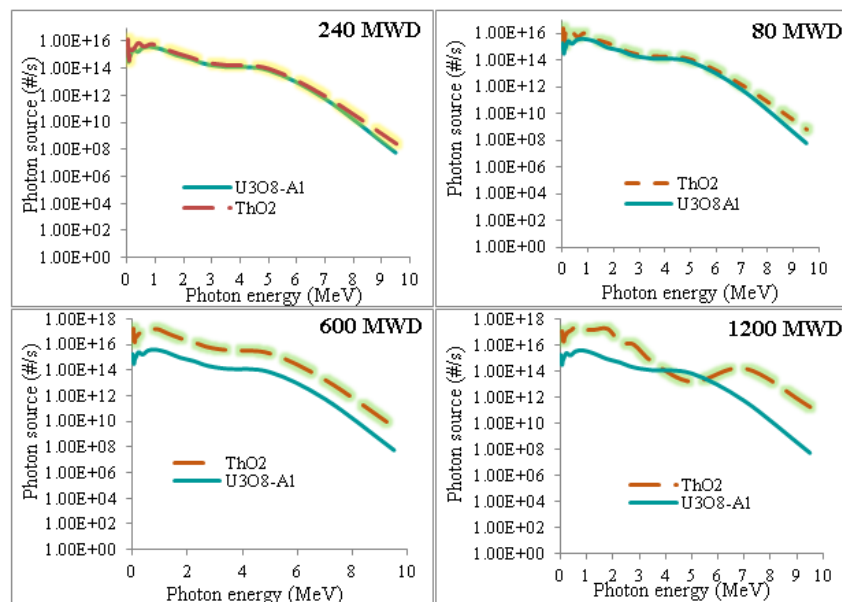


## شبیه سازی با کد MCNPX

کد MCNPX قادر به ترابرد ۳۴ ذره به روش مونت کارلو و نیز شبیه سازی انواع موضوعات مرتبط با راکتورهای هسته ای، شتابدهنده ها، بررسی تولید رادیوایزوتوپها، تصویربرداری های نوترون و گاما و بسیاری ماز موارد دیگر است [۷]. در این کار، با استفاده از طیف فوتون استخراج شده از کد ORIGEN دز دسته های سوخت اورانیوم و توریم در فاصله ۱ m هوا بر حسب زمانهای خنک شوندگی متفاوت و نیز مصرف سوخت متفاوت محاسبه و با یکدیگر مقایسه شد. همچنین دز سطح کسک انتقال دسته های سوخت هنگامیکه سوخت درون کسک سربی قرار داده می شوند محاسبه و با یکدیگر مقایسه گردید.

### نتایج :

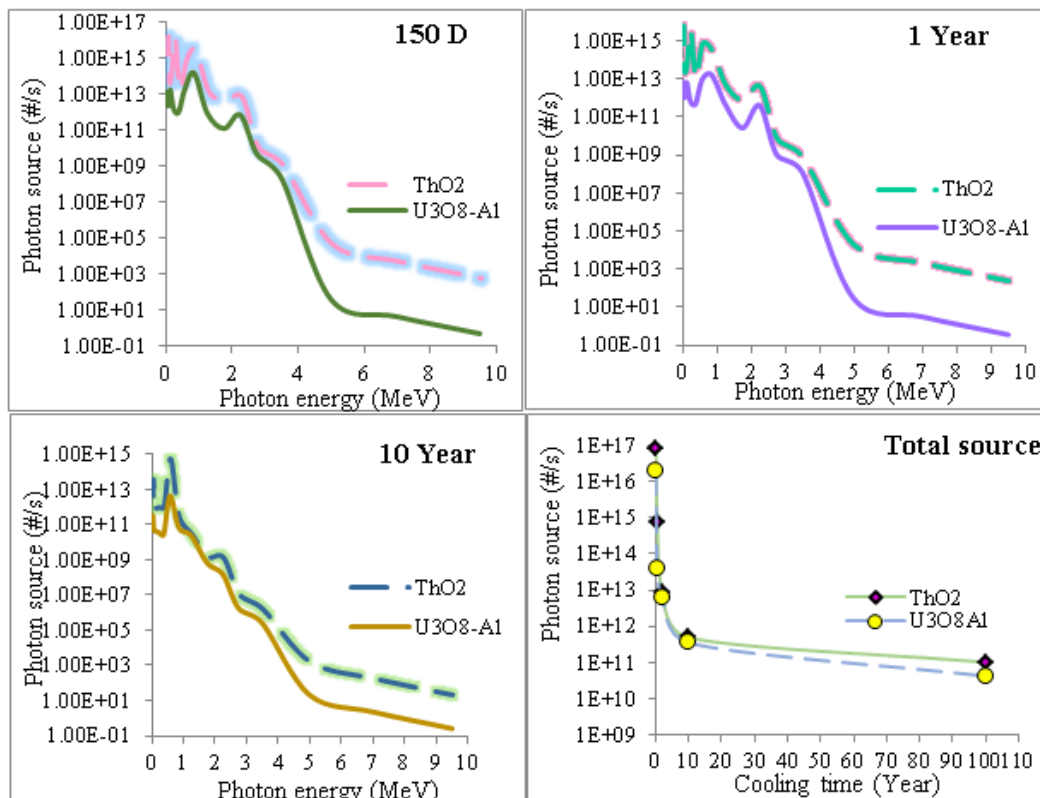
در شکل زیر تغییرات طیف فوتون دسته‌های سوخت  $U_3O_8Al$  و  $ThO_2$  با استفاده از کد ORIGEN محاسبه و با یکدیگر مقایسه شده است. همچنان که ملاحظه می‌شود بلافاصله پس از پایان تابش دهی در توان میانگین ۴ MW به مدت ۲۰ روز طیف دسته سوخت  $ThO_2$  اندکی شدیدتر است لذا می‌توان نتیجه گرفت برای استفاده از مجتمع‌های توریمی در راکتور تهران باید مسائل دز و حفاظ استخر راکتور تحقیقاتی تهران بررسی شود. همچنانکه در شکل ۱ ملاحظه می‌گردد افزایش مصرف سوخت توریمی باعث افزایش قابل ملاحظه چشمه فوتون در مقایسه با سوخت اورانیومی می‌گردد چنانچه در ۶۰۰ MWD و ۱۲۰۰ MWD کارکرد راکتور این اختلاف حدود ۱۰۰ مرتبه است.



شکل ۱- مقایسه تغییرات طیف فوتون دسته‌های سوخت  $U_3O_8Al$  و  $ThO_2$  بلافاصله پس از تابش دهی برحسب مصرف متفاوت

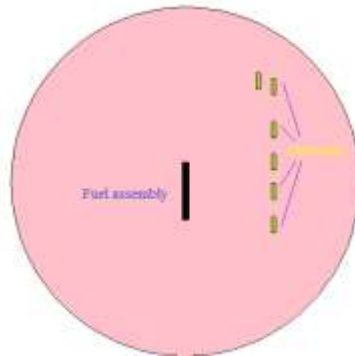


در شکل ۲ تغییرات طیف فوتون دسته‌های سوخت توریمی و اورانیومی مصرف شده (۱۲۰۰ MWD کارکرد راکتور، مصرف دسته سوخت: ۴۵ MWD) بر حسب زمان خنک شونده‌گی نشان داده شده است. همچنانکه ملاحظه می‌گردد در زمانهای خنک شونده‌گی یکسان طیف سوخت توریمی تابش دیده بسیار سخت تر از سوخت اورانیومی مصرف شده است و شدت کل سوخت توریمی مصرف شده پس از ۱۰۰ سال از خنک شونده‌گی هنوز ۲ برابر سوخت اورانیومی است.



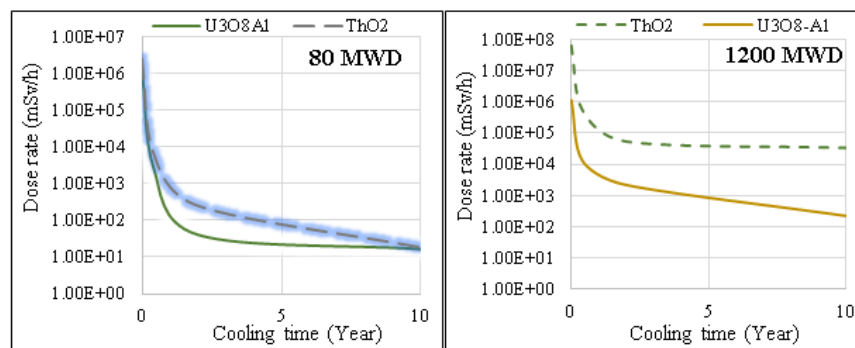
شکل ۲- مقایسه تغییرات طیف فوتون دسته‌های سوخت ThO<sub>2</sub> و U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>Al دارای مصرف ۴۵ MWD بر حسب زمان خنک شونده‌گی

در شکل زیر دز دسته‌های سوخت اورانیومی و توریمی در فاصله ۱ m هوا با استفاده از کد MCNPX محاسبه گردید.

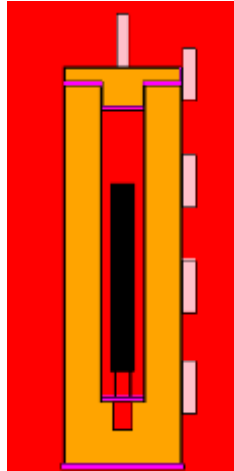


شکل ۳- شماتیک قراردادن آشکارساز گایگر مولر در فاصله ۱ m دسته سوخت برای محاسبه دز دسته سوخت

لازم به ذکر است در این کار فقط بیشترین دز یعنی دز آشکارساز مقابل وسط دسته سوخت گزارش شده است و به دلیل حجم بالای داده ها از گزارش عدد سایر آشکارسازها صرف نظر گردیده است. همچنانکه در شکل ۴ دیده می شود دز دسته سوخت توریمی بسیار بیشتر از دسته سوخت اورانیومی مصرف شده است و نیز در مصرف سوخت کم (MWD ۱۲۰۰) دز دسته سوخت توریمی و اورانیومی به هم نزدیک می شود. درحالیکه در مصرف سوخت زیاد (MWD ۱۲۰۰) دز دسته سوخت توریمی پس از ۱۰ سال حدود ۱۰۰ برابر دز دسته سوخت اورانیومی مصرف شده است. در شکل ۵ شماتیک کسک سربی انتقال سوخت که توسط کد MCNPX شبیه سازی شده است را نشان می دهد. در این حالت نیز فقط دز سطح خارجی کسک در مورد آشکارساز مقابل وسط دسته سوخت گزارش شده است. ضخامت کسک انتقال ۱۵ cm (معمول راکتور تهران) فرض گردید.



شکل ۴- مقایسه دز گامای دسته های سوخت توریمی و اورانیومی (مصرف ۴۵ و ۳) بر حسب زمان خنک شوندگی و نیز مصرف متفاوت



شکل ۵- محاسبه دز دسته سوخت (مصرف ۴۵ MWD) درون کسک سربی انتقال با ضخامت ۱۵ cm

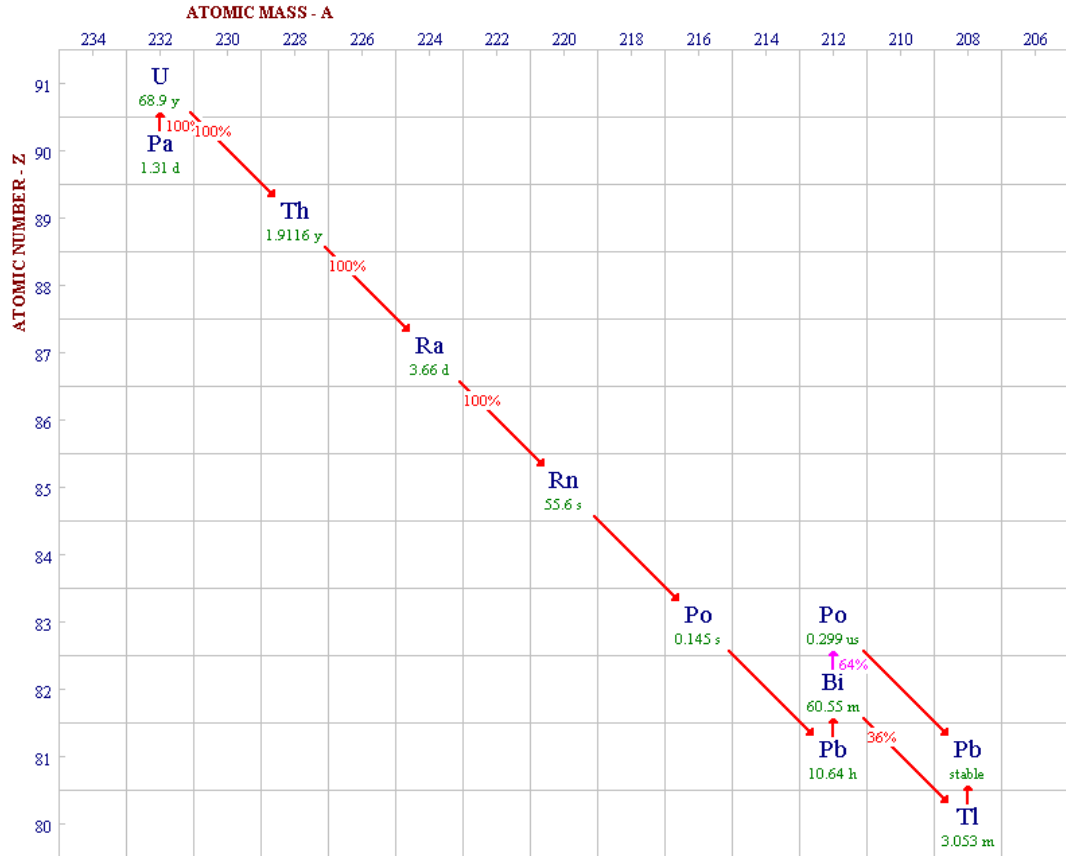
همچنانکه اشاره شد کسک های متداول راکتور تهران دارای ضخامت بدنه ۱۵ cm هستند. افزایش ضخامت بدنه کسک یا زمان خنک شونده می تواند باعث گردد که سوخت توریمی مصرف شده توسط این کسک ها قابل حمل باشد. طبق جدول زیر دز سطح کسک در داغ ترین نقطه زمانی که سوخت مصرف شده اورانیومی را حمل می کند پس از ۴ ماه حدود ۷/۵ mSv/h است و سوخت با کسک ۱۵ cm سرب دیواره قابل حمل است. در مورد سوخت توریمی حتی پس از ۱ سال دز بالا است ولی پس از ۱ سال با کسک با ضخامت ۱۷ cm قابل حمل خواهد بود زیرا دز داغ ترین نقطه این کسک ۶/۵ mSv/h خواهد بود.

جدول ۱- تغییرات دز داغ ترین نقطه کسک ۱۵ cm دربردارنده دو سوخت  $U_3O_8-Al$  و  $ThO_2$  (مصرف ۴۵ MWD) در مدت زمان خنک شونده متفاوت

دز بر حسب زمان خنک شونده	۲۱ روز (mSv/h)	۳۵ روز (mSv/h)	۶۰ روز (mSv/h)	۹۰ روز (mSv/h)	۱۲۰ روز (mSv/h)	۱۵۰ روز (mSv/h)	۳۶۵ روز (mSv/h)
$U_3O_8-Al$	۲۳۹	۱۴۱	۳۵	۱۲	۷/۵	۶/۴	۳/۶
$ThO_2$	۴۸۴	۲۸۴	۱۳۵	۸۹	۷۴	۶۴	۳۳

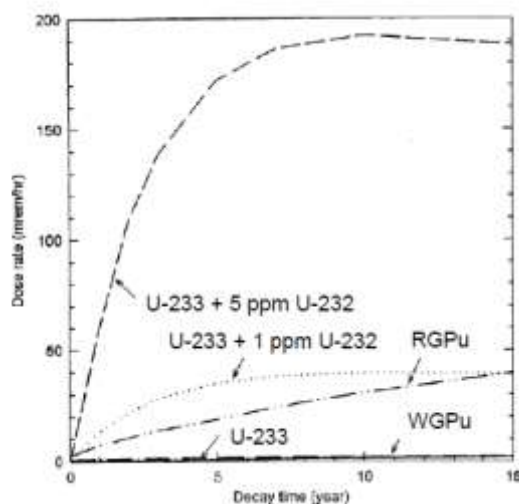
لازم به ذکر است که برای انتقال سوخت دز سطح کسک باید کمتر از ۲ mSv/h باشد و نیز در حالتی که مصرف سوخت پیوسته محاسبه شود دز دسته سوخت ۲-۳ برابر بیشتر از مقدار واقعی و یا اندازه گیری شده است [۸-۱۰]. لذا بر این اساس زمانهای ۳ ماه و ۱ سال برای انتقال سوخت اورانیومی و توریمی (مصرف ۴۵ MWD) با کسک های مذکور پیشنهاد شده است.

لازم به ذکر است که خود  $^{232}U$  به رادیوایزوتوپهایی واپاشی می کند که دارای گاماهاى پر انرژی هستند (مواردی که در مقدمه اشاره شد). لذا تجمع بیشتر  $^{232}U$  به معنی دز بیشتر سوخت مصرف شده خواهد بود.



شکل ۶- زنجیره واپاشی رادیوایزوتوپیهای موثر در دز گامای دسته‌های سوخت توریمی مصرف شده [۱۱].

لازم به ذکر است در سوخت توریمی مصرف شده به دلیل واپاشی رادیوایزوتوپیهای مختلف به  $^{232}\text{U}$  دز دسته سوخت به کندی کاهش می‌یابد. طبق مطالعات انجام شده سایر محققان، در شکل ۷ مقایسه میزان حضور  $^{232}\text{U}$  درون سوخت و تاثیر آن بر دز دسته سوخت مقایسه شده است. همچنانکه ملاحظه می‌گردد در صورت تغییر میزان  $^{232}\text{U}$  از ۱ ppm به ۱ ppm ۵ دز بر حسب زمان خنک شوندگی بسیار بیشتر خواهد بود.



شکل ۷- تاثیر تجمع رادیوایزوتوپ اورانیوم-۲۳۲ بر دز دسته سوخت توریمی [۴].

### بحث و نتیجه گیری :

سوخت توریمی دارای جذابیت های فراوانی برای ورود به چرخه سوخت هسته ای است که از جمله این موارد می توان به فراوانی بیشتر، انتقال حرارت بالاتر و نیز زاینده بودن در راکتورهای حرارتی و سریع را نام برد. با این حال برخی از چالش های این سوخت برای استفاده در چرخه سوخت هسته ای باید در نظر گرفته شود. بررسی های انجام شده در این کار نشان داد در صورتیکه قرار باشد سوخت توریمی در راکتور تهران استفاده شود باید رفتار دز آن برای زمانهای خنک شوندگی متفاوت و نیز مقدار مصرف متفاوت به دقت محاسبه گردد. همچنین در صورت نیاز به انتقال سوخت مصرف شده، کسک سربی حمل و نقل در مقایسه با کسک حمل و نقل سوخت مصرف شده اورانیومی باید ضخامت بیشتر داشته باشد.

### مراجع :

1. X.X. Li, X.Z. Cai, D.Z. Jiang, Y.W. Ma, J.F. Huang, C.Y. Zou, C.G. Yu, J.L. Han, J.G. Chen Analysis of thorium and uranium based nuclear fuel options in Fluoride salt-cooled High temperature Reactor, Prog. in Nucl. Energ.78 (2015) 285-290.
2. J. Breza, P. Darčilek, V. Nečas, Study of thorium advanced fuel cycle utilization in light water reactor VVER-440, Annal. of Nucl. Energ. 37 (2010) 685-690.





3. P. Srinivasan, S. Ganesan\*, D. N. Sharma and H. S. Kushwaha, Estimation of dose rates on the PHWR irradiated thorium oxide bundles based on BARC updated nuclear data, BARC Golden Jubilee DAE-BRNS National Workshop on Nuclear Data for Advanced Nuclear Systems, Nuclear Databases and Applications, NWND-2006, 8-11 November 2006.
4. Wolfgang Rosenstock and Olaf Schumann, Thorium for Nuclear Energy – a Proliferation Risk? Fraunhofer-Institut für Naturwissenschaftlich-Technische Trendanalysen (INT), 2013
5. Perspectives on the Use of Thorium in the Nuclear Fuel Cycle, NUCLEAR ENERGY AGENCY, 2015
6. A. G. Croff, A USER'S MANUAL FOR THE ORIGEN2 COMPUTER CODE, ORNL, 1980
7. Pelowitz DB. "Users' manual versión of MCNPX2.6.0," LANL, LA-CP-07-1473, 2008.
8. M. Bace, D. Grgic, Calculation of spent fuel storage cask parameters, Nuclear society of Slovenia, 2nd regional meeting, 11.Sep 1995.
9. K.A. Gruss, G. Hornseth, M.W. Hodges, U.S. Nuclear Regulatory Commission acceptance criteria and cladding considerations for the storage and transportation of high burnup and damaged spent fuel, IAEA-CN-102/55
10. Z. Gholamzadeh, A. Jozvaziri, E. Abedi, S. M. Mirvakili, N. Tehrani, Design of transport cask for SFE and CFE fuel assemblies of Tehran Research Reactors, HND2018, Croatia, 2018.
11. "Radiation Decay" (RadDecay), VERSION 4