

Přepřacování ozářeného jaderného paliva – separace lanthanoidů a minoritních aktinoidů

Nela Sedláčková¹, Ondřej Haluza², Zdeněk Zapletálek³
Gymnázium Jiřího z Poděbrad¹, Gymnázium Děčín²,
Gymnázium Jakuba Škody³
e-mail: nelca.sedlackova@seznam.cz¹,
ondra.haluza2001@seznam.cz², zapletalek.z@gmail.com³

Abstrakt:

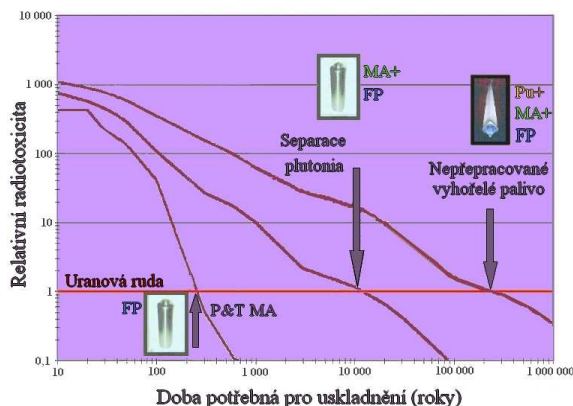
Tato práce se zabývá přepřacováním ozářeného jaderného paliva s využitím separační metody – kapalinové extrakce. Dochází k oddělení minoritních aktinoidů od lanthanoidů, které značně přispívají k radiotoxicitě. Byla provedena metoda SANEX (Selective Actinide Extraction). Vzorky byly analyzovány na alfa a gama spektrometru a byly sledovány závislosti na koncentraci HNO₃, koncentraci extrakčního činidla CyMe₄-BTPPhen a na době kontaktování jednotlivých fází.

1 Úvod

Přestože se sklady radioaktivního jaderného odpadu stále plní, neexistuje efektivní způsob jak jej dále využít. To je společně s možností radiační havárie jednou z největších nevýhod jaderných elektráren. Nicméně toto vyhořelé palivo má potenciál na recyklaci. Metoda SANEX umožňuje oddělení méně radioaktivních lanthanoidů od minoritních aktinoidů, které lze přimísit do MOX (Mixed Oxides) používaných v lehkovodních reaktorech. Uzavření palivového cyklu by vedlo k ekologizaci jaderné energie.

2 Teorie

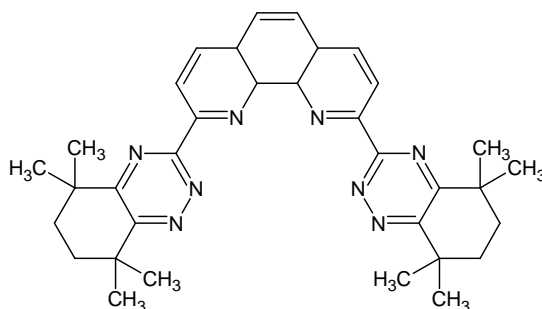
Ozářené jaderné palivo se skládá z aktinoidů, lanthanoidů a dalších štěpných produktů. Lanthanoidy začínají prvkem lanthan a nabývají hodnoty protonového čísla 57-71, zatímco aktinoidy prvkem aktinium a nabývají hodnot protonového čísla 89-103. Ozářené jaderné palivo při vyjmutí obsahuje stále 93 % ²³⁸U, přibližně 0,7 % štěpitelného ²³⁵U a 1 % Pu a 0,1 % minoritních aktinoidů. Minoritní aktinoidy způsobují dlouhodobou radioaktivní toxicitu vyhořelé paliva, která se pohybuje v řádu statisíců až milionů let. [1]



Graf č. 1: Možné scénáře nakládání s ozářeným jaderným palivem

Jak je zobrazeno na grafu č. 1, první možností je počkat, dokud se radionuklidy nepřemění na neradioaktivní nuklidy. Naopak druhou možností je přepracování ozářeného jaderného paliva, čímž by se zkrátila doba čekání řádově o desetitisíce let a bylo by umožněno do určité míry znovu efektivněji využít toto vyhořelé palivo.

Při procesu **SANEX** se odstraňují minoritní aktinoidy z ozářeného paliva. Pro separaci minoritních aktinoidů od lanthanoidů se používají dusíkatá činidla, např. CyMe₄-BTPhen, které na sebe vážou ionty extrahovaných kovů. To je zobrazeno na obrázku č. 1.



Obrázek č. 1: Vzorec CyMe₄-BTPhen

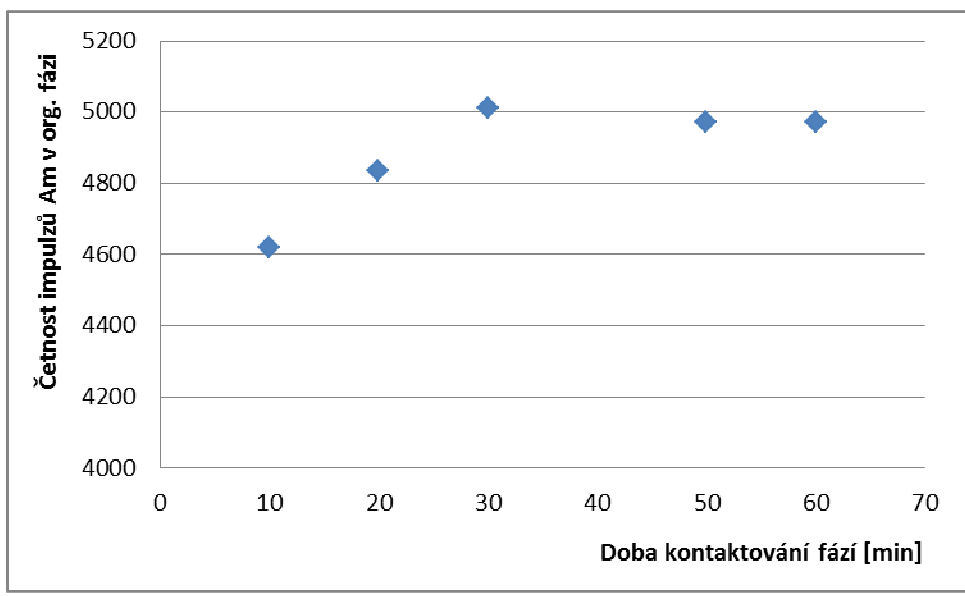
Mezi další procesy patří i proces zvaný **PUREX** (Plutonium Uranium Redox Extraction), kde jsou kovové ionty U^{+VI} a Pu^{+IV} separovány z vysoce kyselých roztoků HNO₃ do organické fáze, která obsahuje tributylfosfát jako extrakční činidlo. Tento proces se v současnosti využívá v průmyslovém měřítku a je jím přepracována zhruba 1/3 ozářeného paliva. [2]

3 Metodologie a výsledky

Vzorky lanthanoidů (Eu) a aktinoidů (Cm, Am) byly přidány do roztoku HNO₃ a byly pomocí třepačky kontaktovány s organickou fází - roztokem CyMe₄-BTPhen, na který se radionuklidy vážaly. Byly vytvořeny vzorky o různých koncentracích kyseliny, nebo extrakčního činidla, a nebo byly fáze třepány různou dobu. Tyto vzorky byly po třepání odděleny a změřeny na alfa a gama spektrometru.

1) Kinetika extrakce sledovaných kovů

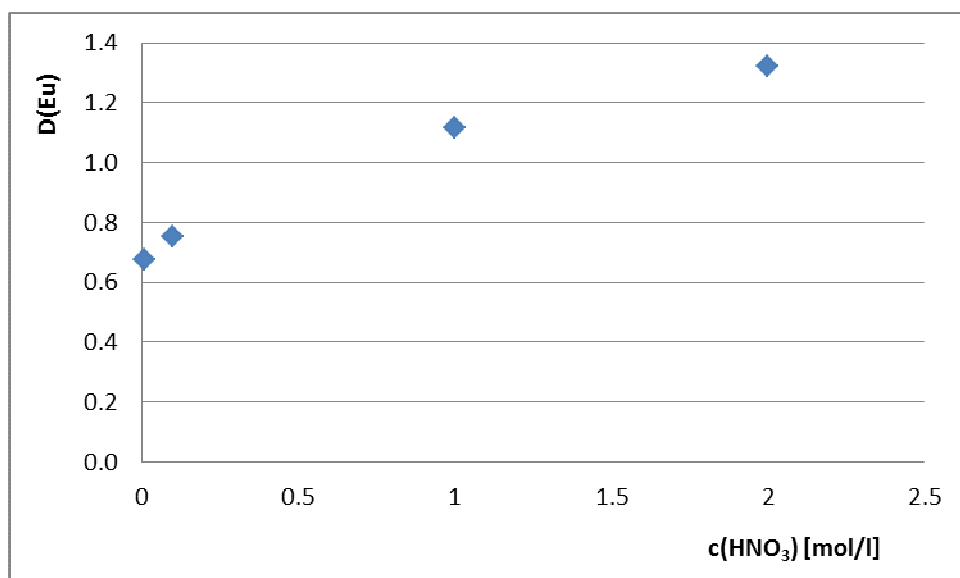
Jedním z důležitých parametrů je rychlost ustanovení chemické rovnováhy. Proto byla zkoumána časová závislost přechodu kovů z vodné do organické fáze. Byly sledovány časy 10 – 20 – 30 – 40 – 50 a 60 minut. V grafu č. 2 je vynesena závislost četnosti impulzů Am v organické fázi na době kontaktování fází. Z uvedených hodnot lze vidět, že rovnováha byla ustanovena do 30 minut.



Graf č. 2: Závislost četnosti naměřených impulzů pro Am na době kontaktování. Org. fáze: 5 mmol/l CyMe₄-BTphen, aq. fáze: 1 mol/l HNO₃.

2) Závislost rozdělovacích poměrů na koncentraci HNO₃

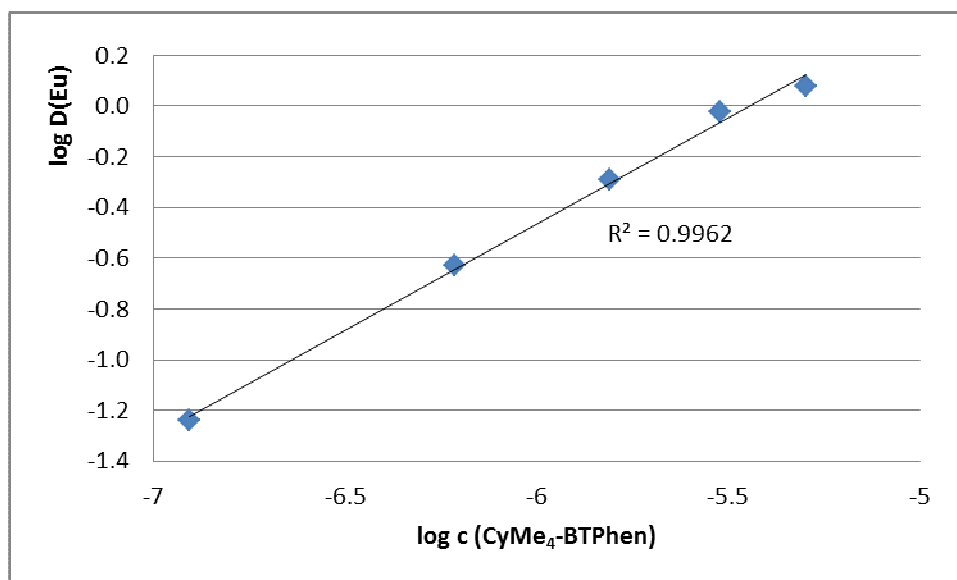
Dále byl zkoumán vliv koncentrace rozdělovacích poměrů pro kovy na koncentraci HNO₃. Rozdělovací poměr je definován jako koncentrace radionuklidu v organické fázi dělená koncentrací radionuklidu ve vodné fázi. Ukázka pro závislost $D_{(Eu)}$ na $c_{(HNO_3)}$ je zobrazena na grafu č. 3. Z něj vyplývá, že s rostoucí koncentrací HNO₃ rostou hodnoty rozdělovacího poměru pro Eu ve sledované oblasti 0,01 – 0,1 – 1 a 2 mol/l HNO₃.



Graf č. 3: Závislost rozdělovacího poměru pro Eu na koncentraci HNO₃. Org. fáze: 5 mmol/l CyMe₄-BTphen.

3) Závislost rozdělovacích poměrů na koncentraci extrakčního činidla

V grafu č. 4 je zobrazena logaritmická závislost rozdělovacího poměru pro europium na koncentraci extrakčního činidla CyMe₄-BTPPhen. Získaná data mají vysoký koeficient regrese (0,99). Získané výsledky byly ve shodě dřívějšími studiemi, že ion europia tvoří komplexy se dvěma molekulami CyMe₄-BTPPhen. [2]



Graf č. 4: Závislost rozdělovacího poměru pro Eu na koncentraci CyMe₄-BTPPhen.

4 Shrnutí

Naučili jsme se pracovat v radiochemické laboratoři, prohloubili znalosti o radioaktivních látkách a o vybavení laboratoře a měřili radioaktivní vzorky a vyhodnocovali spektra. Zkoumali jsme tři hlavní faktory, které jsou důležité při studiu separace různých kovů. Seznámili jsme se s metodami přepracování ozářeného jaderného paliva.

Poděkování

Poděkování mně a sobě samým. Děkujeme Fakultě jaderné a fyzikálně inženýrské za organizaci Týdne vědy na Jaderce.

Reference:

- [1] DISTLER, P.: *Studium extrakčních systémů pro separaci lanthanoidů a minoritních aktinoidů*. Disertační práce. ČVUT v Praze, 2017.
- [2] PANAK, P. – GEIST, A.: *Complexation and Extraction of Trivalent Actinides and Lanthanides*. Chemical Reviews - American Chemical Society, 2013, 113 (2), 1199–1236.