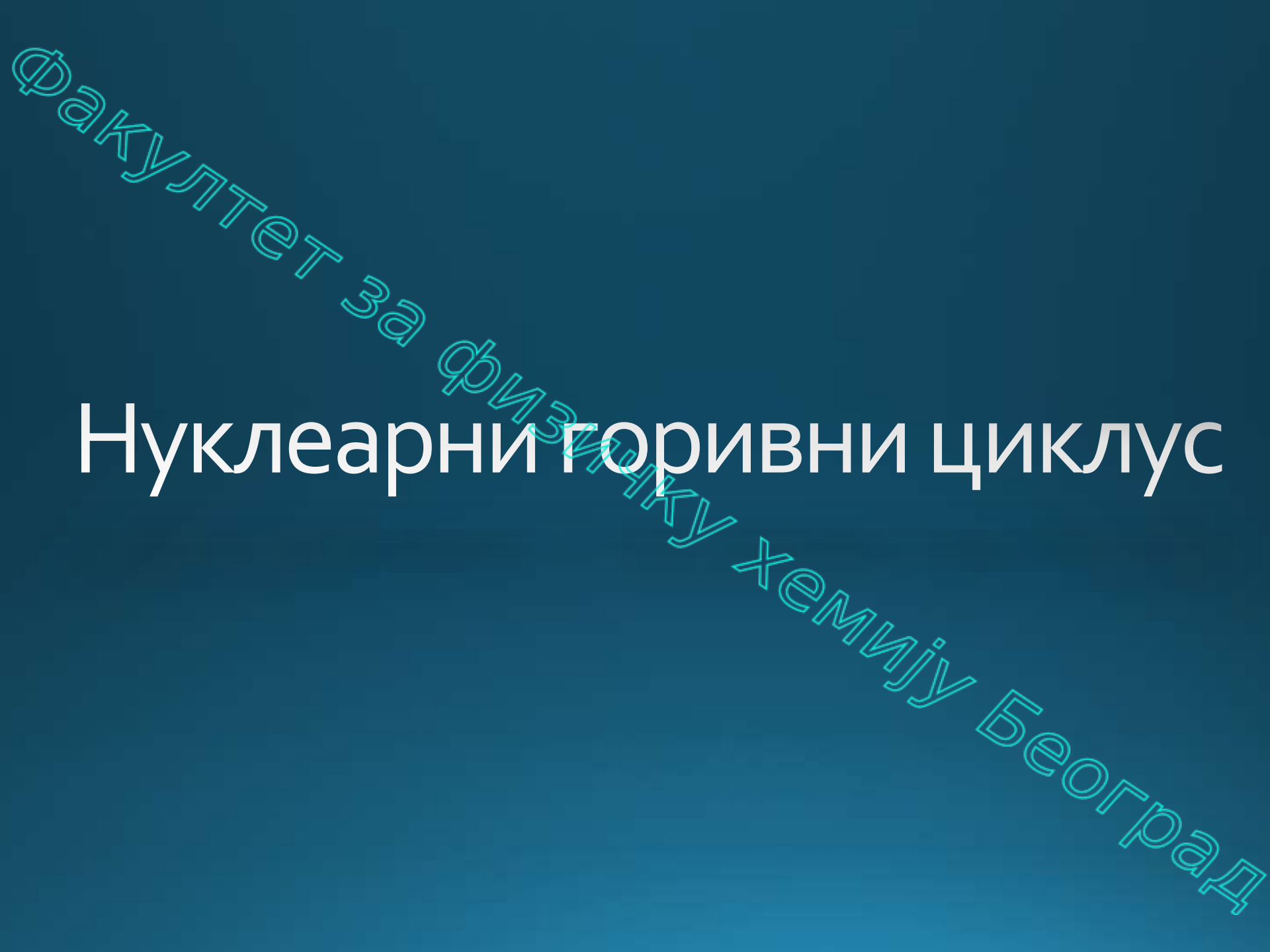
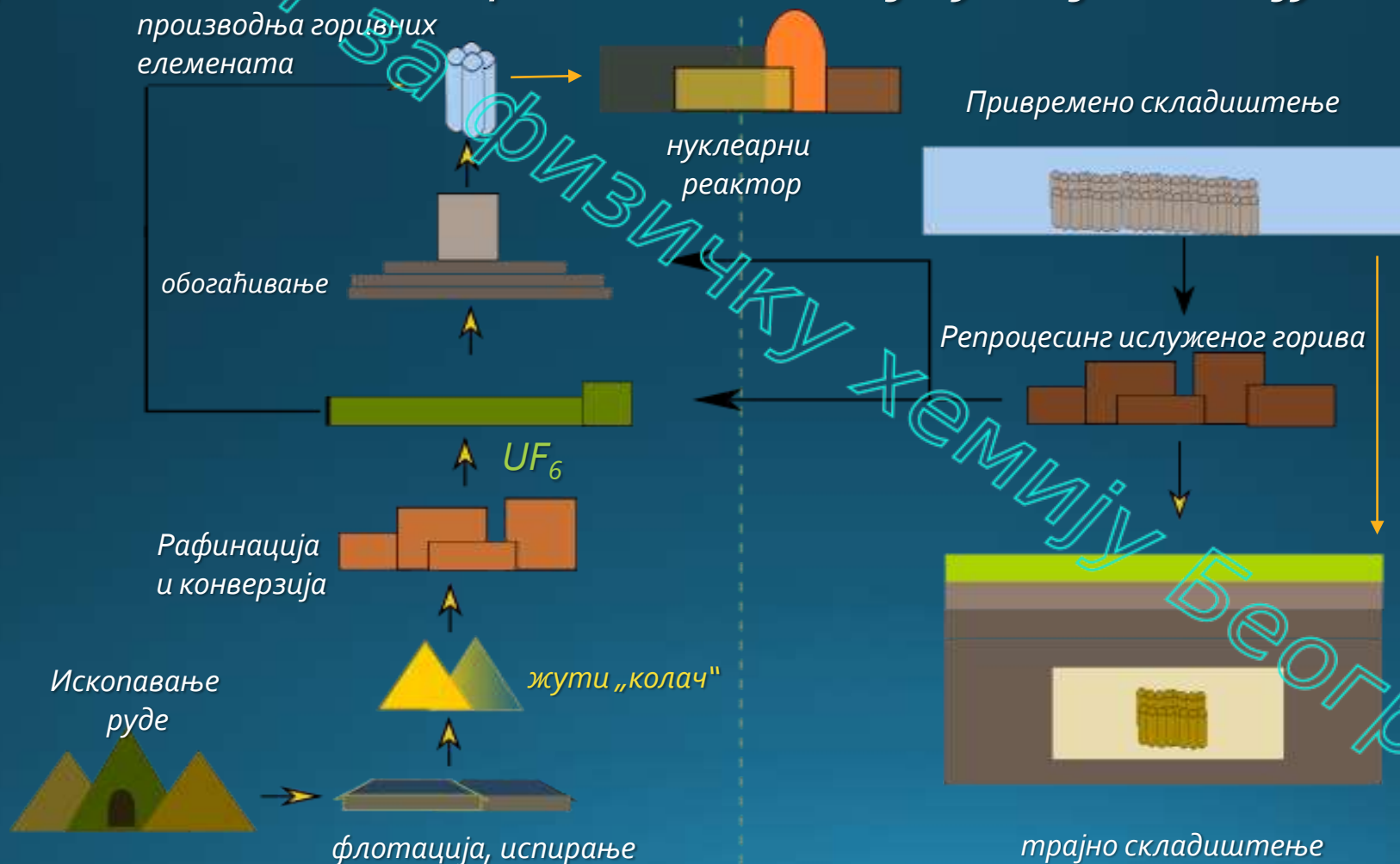




Нуклеарни горивни циклус

- Нуклеарни горивни циклус сачињавају све операције над свим фисилним и фертилним материјалима неопходним за производњу нуклеарне енергије и радиоактивним производима који у њој настају.



Рудници уранијума

- Руде

- Уранинит (Западна Европа, Централна Африка, Канада, Аустралија)
- Карнотит (САД, Русија, Казахстан)



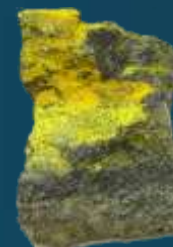
Уранинит



50-90 % U



крист. уранинит



карнотит



54 % U



Jachymov, CZ



Olympic Dam (AU)



Katanga, Kongo

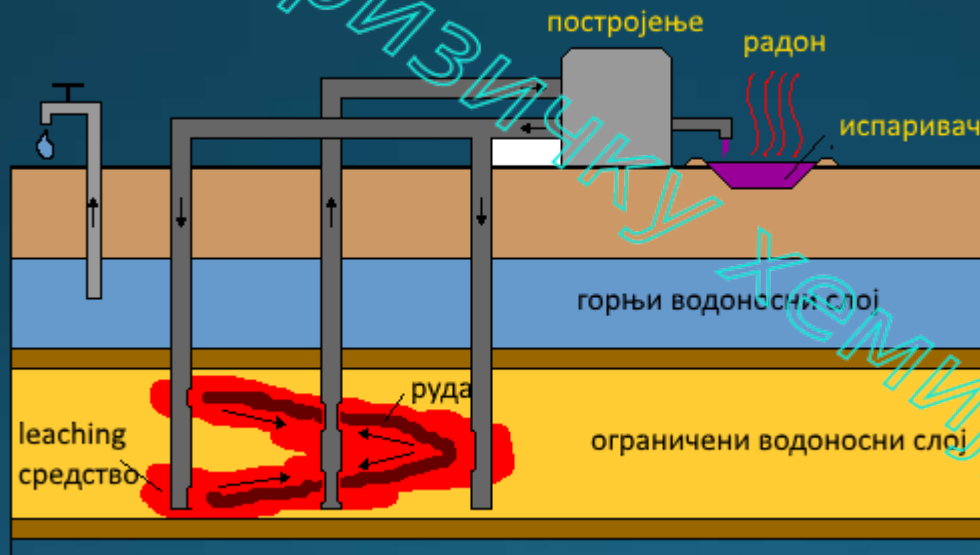
Годишња производња уранијума

- У земљишту ~3 ppm, гранитне стене до 10 ppm
- Светске залихе уранијума ~ 4,7 Mt

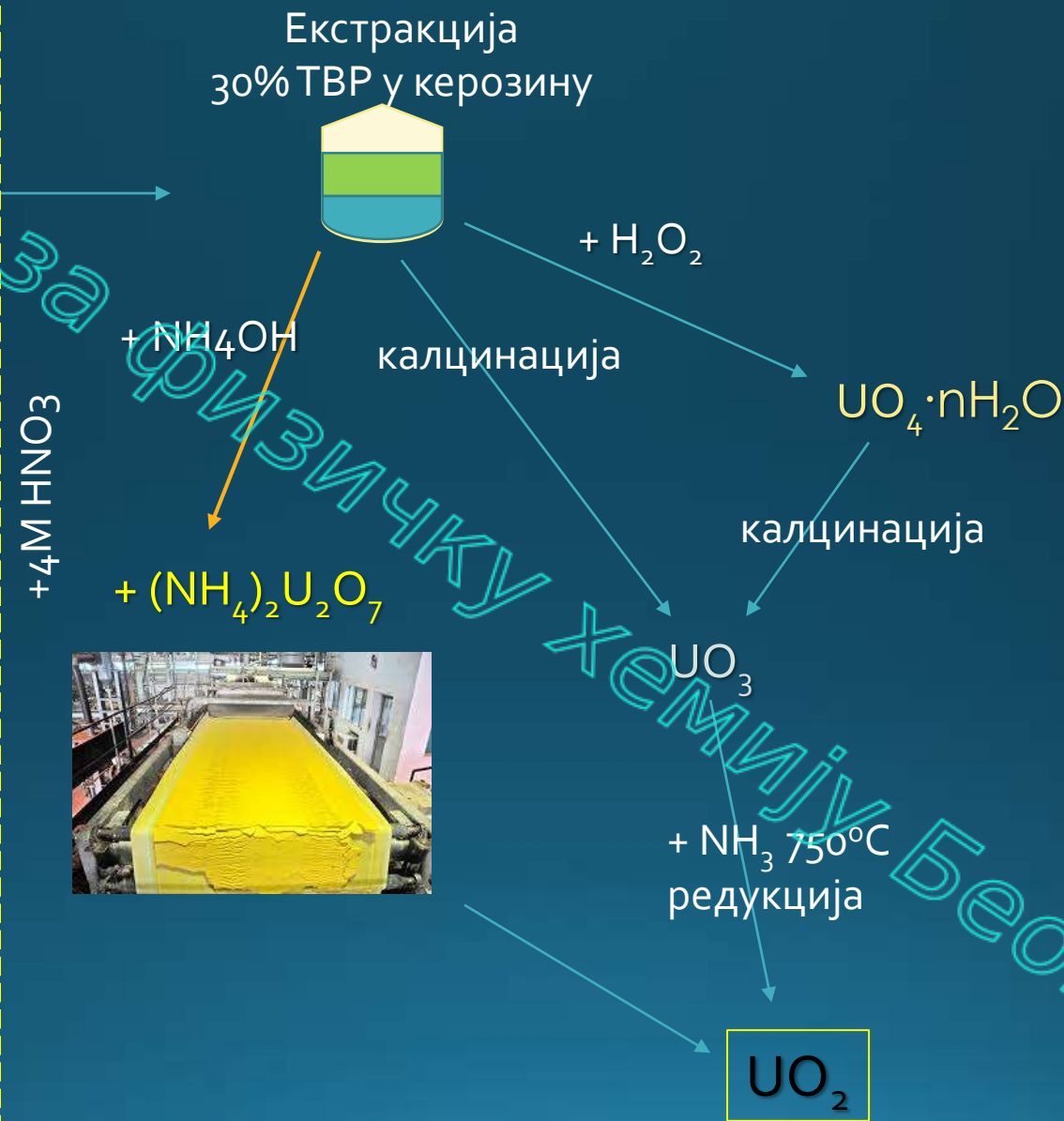
Земља	маса у тонама	Процената св. производње
Kazakhstan	17803	33.18
Canada	9783	18.23
Australia	5900	10.99
Namibia	4496	8.378
Niger	4198	7.823
Russia	3562	6.638
Uzbekistan	2400	4.472
USA	1660	3.093
Ukraine	850	1.584
China	827	1.541
Malawi	670	1.249
South Africa	583	1.086
India	400	0.745
Czech Rep.	254	0.473
Brazil	148	0.276
Romania	77	0.143
Pakistan	45	0.084
France	7	0.013
Укупно	53663	100

In situ “leaching” техника

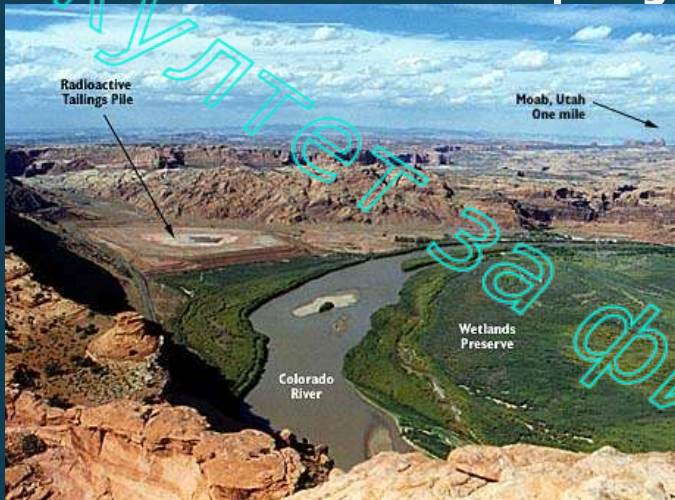
- Раствори за издвајање уранијума
 - Слаби раствор сумпорне киселине
 - Базни поступак – упумпување бикарбоната/карбоната
 - Комбинација бикарбоната и CO_2



Технике издвајања уранијума из руде



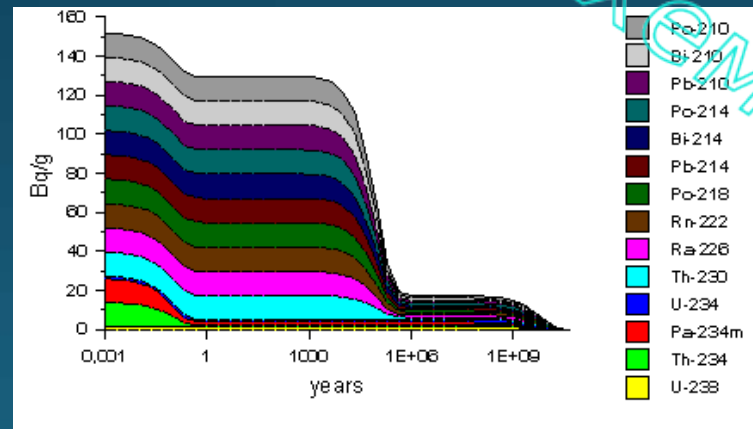
Отпадни материјал при преради уранијума



Колорадо, САД



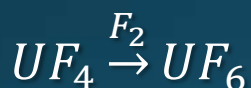
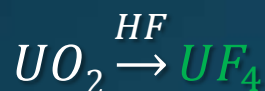
Olympic Dam, Australia



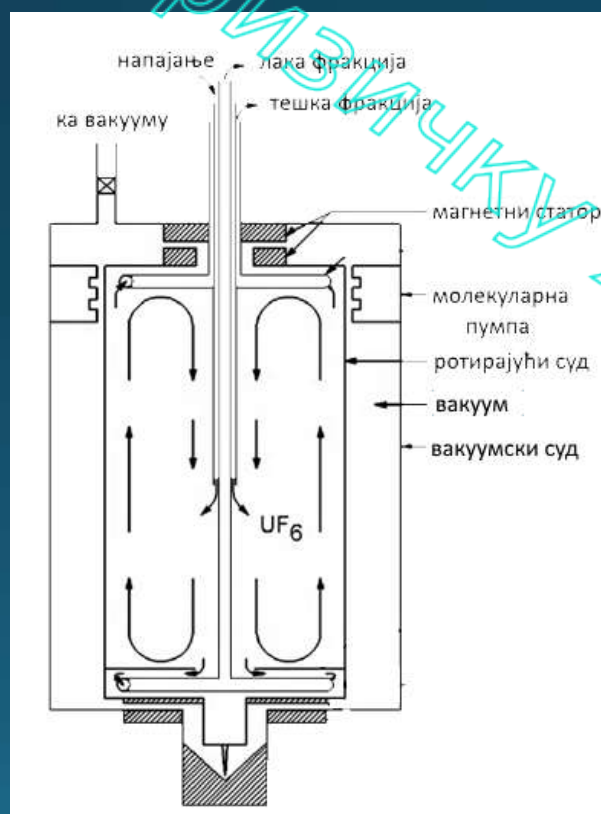
Активност у отпадном материјалу

Обогаћивање уранијума

ИЗОТОП	w%	$t_{1/2}$ (y)	С.Ф. %	σ_n (barn)	σ_f (barn)	I_r (barn)
^{233}U	0	$1,6 \cdot 10^5$	$6,0 \cdot 10^{-11}$			
^{234}U	0,0056	$2,46 \cdot 10^5$	$1,7 \cdot 10^{-9}$	99,7	0,006	6,7
^{235}U	0,7205	$7,02 \cdot 10^8$	$7,0 \cdot 10^{-9}$	98,8	534	278
^{238}U	99,2783	$4,45 \cdot 10^9$	$5 \cdot 10^{-5}$	2,7	$1,2 \cdot 10^{-6}$	2,0



$$t_{\text{sub}} = 56^\circ\text{C}$$



намена	% ^{235}U
LWR	3-5
HWR	0,7205
експериментални	12-19,75
Нукл. експлозиви	20-80

Постројења за обогаћивање уранијума



Танк са UF_6



Гасне центрифуге



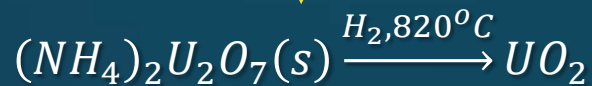
Georges Besse I постројење,
Француска

Капацитети постројења за обогаћивање уранијума

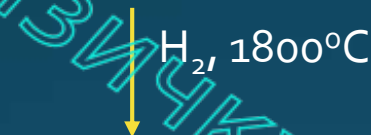
Земља	Компанија/Постројење	2013	2015	2020
Француска	Areva, Georges Besse I & II	5500	7000	7500
Немачка-Холандија-В. Британија	Urenco: Gronau, Немачка Almelo, Холандија Sellafield, В. Британија.	14,200	14,400	14,900
Јапан	JNFL, Rokkasho	75	75	75
САД	Urenco, New Mexico	3500	4700	4700
Руска федерација	Тепех: Ангорск, Новоуралск, Зеленогорск, Северск	26,000	26,578	28,663
Кина	CNNC, Hanzhun & Lanzhou	2200	5760	10,700+
Остали	Аргентина, Бразил, Индија, Пакистан, Иран	75	100	170
	Укупно SWU/години приближно	51,550	58,600	66,700

Израда горивних елемената

- Захтеви које мора да испуни материјал који служи као гориво у нуклеарним реакторима
 - Стабилност при високим температурама без физичких и хемијских промена у самом материјалу
 - Добра топлотна проводљивост
 - Отпорност на корозију
- Кандидати
 - Метални уранијум ($t_{\text{toplj}} = 1130\text{ }^{\circ}\text{C}$)
 - Метални плутонијум ($t_{\text{toplj}} = 640\text{ }^{\circ}\text{C}$)
 - UN ($t_{\text{toplj}} = 2850\text{ }^{\circ}\text{C}$)
 - UO_2 ($t_{\text{toplj}} = 3138\text{ }^{\circ}\text{C}$)
 - PuO_2 ($t_{\text{toplj}} = 2663\text{ }^{\circ}\text{C}$)
 - ThO_2 ($t_{\text{toplj}} = 3663\text{ }^{\circ}\text{C}$)
 - UC ($t_{\text{toplj}} = 2525\text{ }^{\circ}\text{C}$)



Пресовање у пелете



Синтеровање

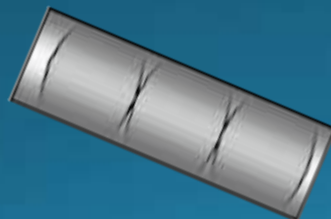


Димензије 1x1 cm

$\rho = 10,4 \text{ gcm}^{-3}$

Порозност 5%

UO_{2+x}



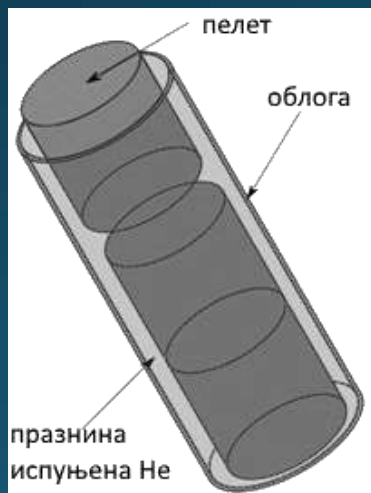
Паковање у облоге

• Улога канистера је да заштити гориво од корозије и спречи контаминацију модератора/хладиоца фисионим производима

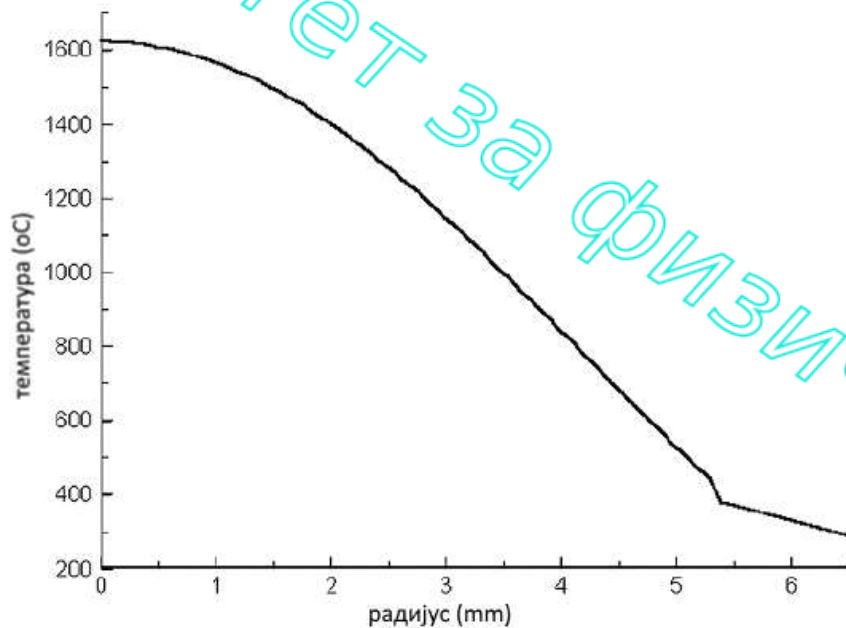
• Материјали облога-канистера

- Алуминијум
- Легура цирконијума (zircalloy 2 – 1,58 % Sn, 0,3% Cr, Ni, Fe)
- Нерђајући челик (најчешће тип 302В)
- Магнезијум и његове легуре када је гориво у облику металног уранијума

за UO_2



У току рада реактора: температурски профил у гориву



Температурски градијент $300\text{ }^{\circ}\text{C/mm}$
индукује градијент термичког
ширења:



и доводи до хетерогене дистрибуције фисионих продуката у горивном елементу:

Cs и I се концентришу на граници пелет-канистер

Zr и Nb мигрирају ка центру пелета

Ислужено нуклеарно гориво

- Када удео фисилног ^{235}U падне испод 0,5-0,9 % (LWR) горивни елементи су уклањају из реактора.
- Годишње се замењује 1/6 до 1/4 горивних елемената
- Састав ислужених горивних елемената зависи од типа реактора

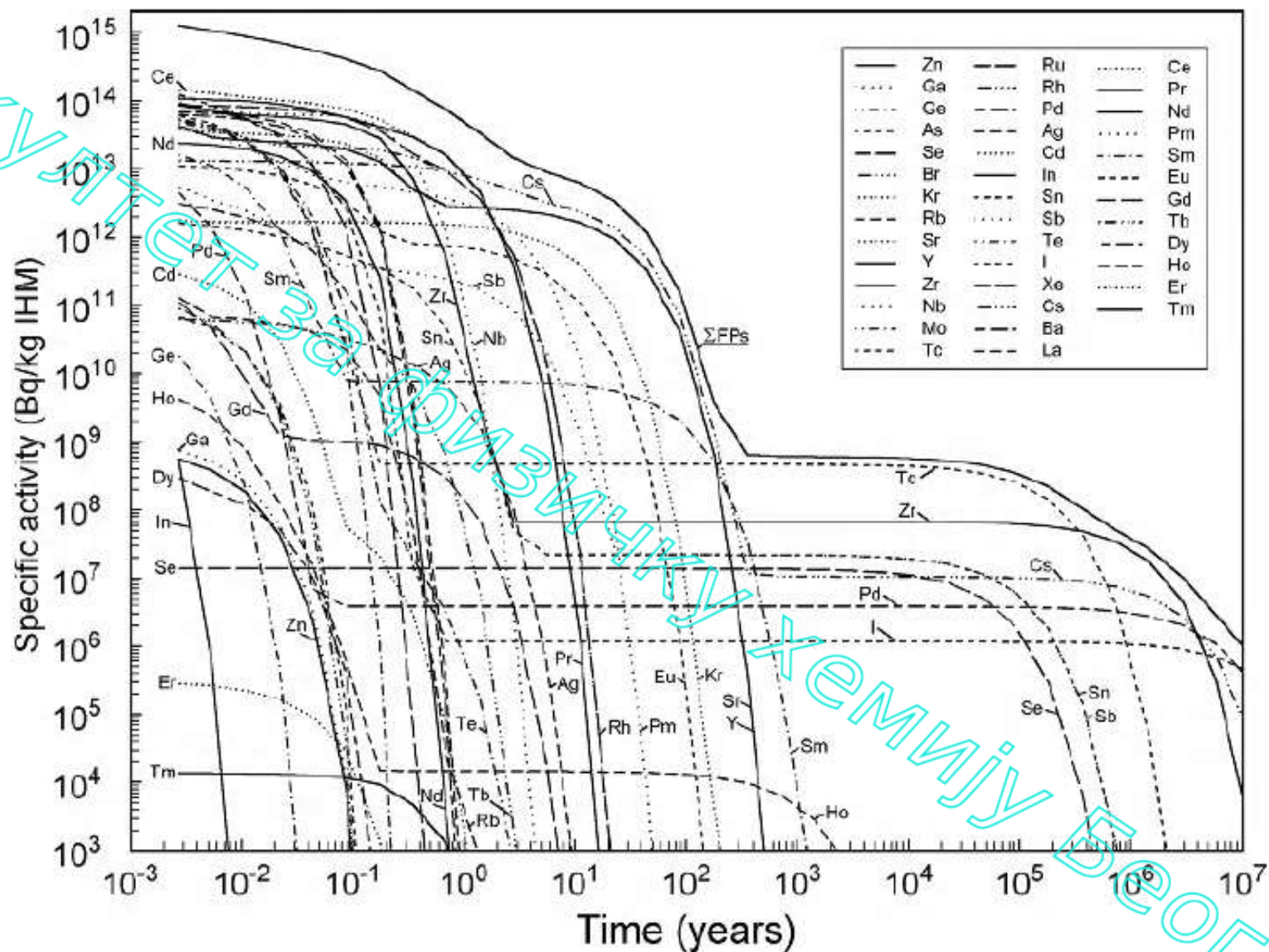
H																	He
Li	Be											B	C 0.14 0.04	N 134.5 0	O 134.5 0	F	Ne
Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge 8·10 ⁻⁴ 0	As 2·10 ⁻⁴ 0	Se 0.096 0.025	Br 0.038 0	Kr 0.88 1830
Rb 0.44 2·10 ⁻⁶	Sr 1.3 3900	Y 0.72 3900	Zr 5.7 54	Nb 9·10 ⁻⁵ 190	Mo 0.2 0	Tc 1.1 0.71	Ru 4.0 5900	Rh 0.53 5900	Pd 3.5 0.010	Ag 0.12 7.3	Cd 0.39 2·10 ⁻⁶	In 0.001 4·10 ⁻¹³	Sn 0.12 11	Sb 0.028 270	Te 0.99 0.004	I 0.44 0.062	Xe 9.8 4·10 ⁻¹⁰
Cs 4.8 15000	Ba 3.3 6·10 ⁻⁶	Ln	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl 3·10 ⁻¹² 0.041	Pb 6·10 ⁻⁷ 5·10 ⁻⁴	Bi 3·10 ⁻¹² 5·10 ⁻⁴	Po 2·10 ⁻¹⁵ 8·10 ⁻⁴	At 5·10 ⁻²² 3·10 ⁻⁸	Rn 1·10 ⁻¹⁴ 5·10 ⁻⁴
Fr 6·10 ⁻¹⁰ 3·10 ⁻⁶	Ra 2·10 ⁻¹⁰ 5·10 ⁻⁴	An	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Cn	113	Fl 115	115	Lv 117	117	118

*Lanthanides	La 2.2 8·10 ⁻⁷	Ce 4.3 4000	Pr 2.0 4000	Nd 7.1 5·10 ⁻¹⁰	Pm 0.061 2100	Sm 1.3 9.3	Eu 0.33 1600	Gd 0.52 0.32	Tb 0.005 0.36	Dy 0.003 2·10 ⁻¹³	Ho 0.008 0	Er	Tm	Yb	Lu
**Actinides	Ac 6·10 ⁻¹¹ 2·10 ⁻⁷	Th 3·10 ⁻⁹ 0.012	Pa 7·10 ⁻¹¹ 0.042	U 923 0.79	Np 1.2 3.6	Pu 12 6500	Am 0.74 37	Cm 0.44 1500	Bk 4·10 ⁻⁷ 0.027	Cf 2·10 ⁻⁶ 0.005	Es 8·10 ⁻¹² 8·10 ⁻⁷	Fm 2·10 ⁻¹⁹ 5·10 ⁻¹²	Md	No	Lr

Састав ислужених горивних елемената за BWR реактор после 1 године хлађења. Почетно обогаћење уранијума 3,5%

Фисиони продукти у ислуженом гориву

- $\sim 34 \text{ kg/t}$ инцијалног горива фисионих производа настаје при „burn-up”-у од $33 \text{ MWd}^{-1} \text{ kg}^{-1}$
- Обично се маса насталих продуката нормализује на масу инцијално присутних тешких метала у гориву (INM).
- И трансурани настали као производ β^- распада нуклида насталих у (n, γ) реакцијама су подложни фисији
- После годину дана хлађења у укупној маси фисионих производа са 70% доминирају Xe, Zr, Mo, Nd, Cs и Ru
- $10 < t < 1000$ година хлађења доминирају Cs и Sr
- > 1000 година доминирају ^{79}Se , ^{87}Rb , ...



Специфична активност фисионих производа у PWR реактору при „burn-up“-у
 $33 \text{ MWd}^{-1}\text{kg}^{-1}$

Актиноиди у нуклеарном реактору

- Поред фисије у језгру реактора се дешавају и (n,γ) , $(n,2n)$... реакције.
- У sukcesивним захватима неутрона и β^- распадима настају трансурани



- Многи настали актиониди су фисилни али такође имају и кратко време полураспада

$$x = \frac{\varphi \sigma_f}{[\lambda + \varphi(\sigma_f + \sigma_{n,\gamma})]}$$

x је количних броја атома радионуклида који подлежу фисији и броја атома који подлежу радиоактивном распаду ; φ је флуks неутрона

- Велики флукс неутрона (breeder реактор) погодује фисији актиноида тако да у њему настаје мало актиноида
- Мали флукс и мања енергија неутрона погодује настанку актиноида

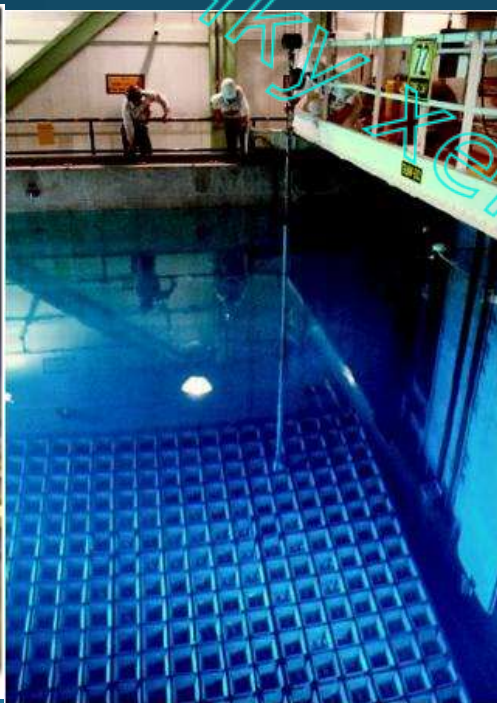
Тип реактора	Укупно Pu	Фисилног Pu
LWR	0,26	0,18
HWR	0,51	0,25
GMR	0,58	0,43
AGCR	0,22	0,13
Брзи breeder реактор	1,35	0,7-10

маса произведеног Pu у различитим реакторима у току једне године

Обрада исслуженог нуклеарног горива

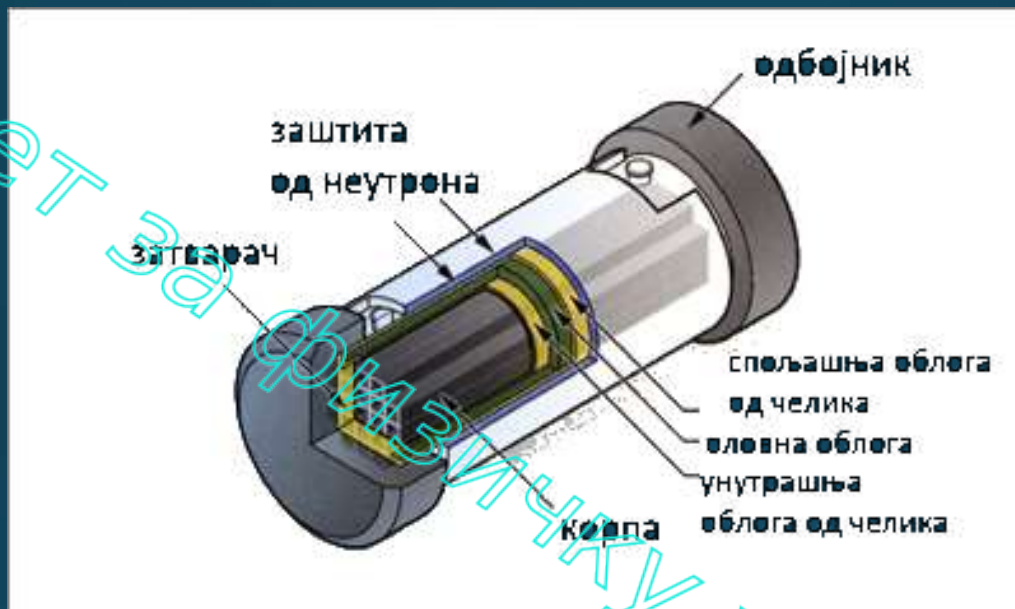
- Привремено складиштење у базенима или сувим складиштима
- Процесирање да би се из њега издвојили фисилни (Pu и U) и остали корисни радионуклиди
- Одлагање у подземна складишта у геолошким формацијама
- Избацивање у свемир

- Фисиони производи имају високу активност и као такви при распадима ослобађају велику количину енергије
- Непосредно пре вађења из реактора испужени горивни елементи се у реактору хладе форсираном циркулацијом (око две недеље)
- Након тога се премештају у базене у оквиру реакторске инсталације где, у зависности од планова за одлагање/прераду, остају 3-12 месеци



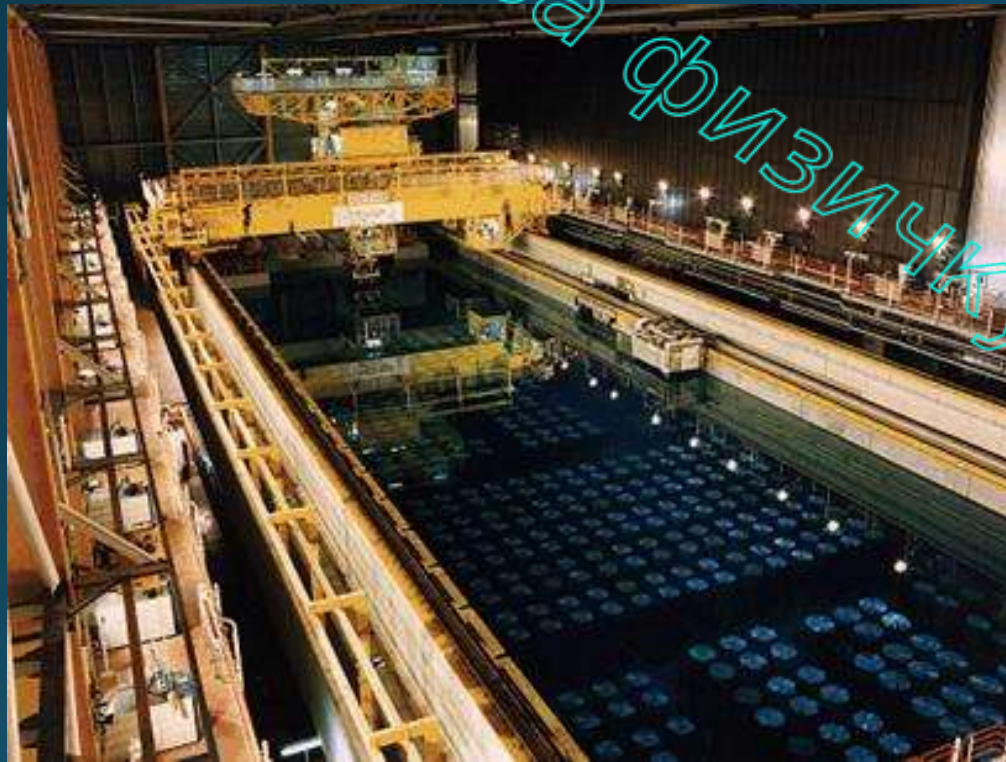
Суво складиште

Транспорт ислуженог нуклеарног горива



Привремена складишта

- У случају да се исслужено гориво даље не процесира (once trough cycle) оно се одлаже у привремена складишта



Складиште под водом

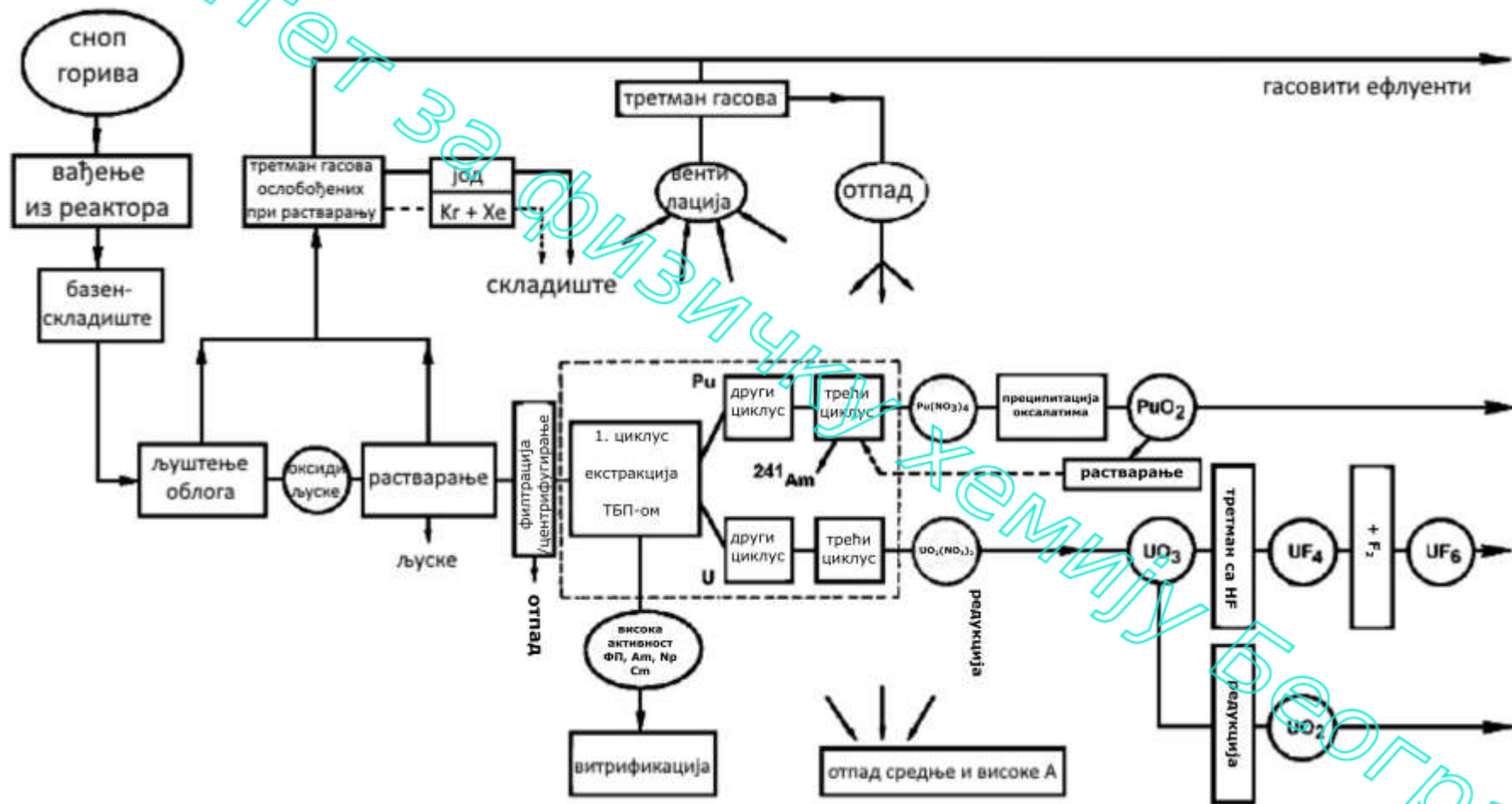


Суво складиштење

Репроцесинг ислуженог нуклеарног горива

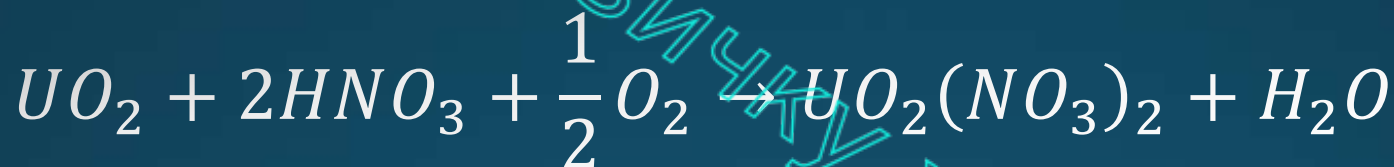
- Ислужено гориво из LWR реактора обично садржи 0,9 % ^{235}U 0,5-0,7% Pu (^{239}Pu и ^{241}Pu).
- Издајање фисилних радионуклида и њихово поновно укључивање у горивни циклус смањује до 30% трошкове производње новог горива и обогаћивања уранијума.
- Издвојени уранијум се обогаћује или се од њега праве горивни елементи типа мешаних оксида (MoX , $\text{PuO}_2 + \text{UO}_2$).
- Издвојени плутонијум се може користити за прављење MoX или у брзим "breeder" реактора

Типична шема постројења за репроцесинг ислуженог горива



Фазе у процесу репроцесирања

- 1. отварање канистера са горивом и „љуштење“ заштитне облоге
- 2. сечење горивних елемената
- 3. кување у 6-11 М HNO_3



4. Сепарација

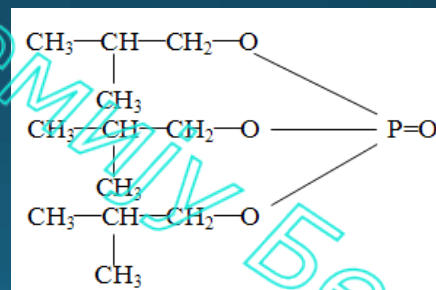
- базирана на оксидоредукционим процесима
- екстракција комбинована са оксидоредукционим процесима
- Pu : 3+, 4+, 5+, 6+, 7+
- U: 2+, 4+

Екстракциони агенси

- Органски молекули који формирају неутралне адукте са комплексима уранијума и полонијума, али не и са комплексима фисионих фрагмената и већине актиноида



- Адукти су добро растворљиви у органским растварачима
- Неки од агенаса
 - Метил изобутил кетон („хексон“)
 - Дибутил карбитол („бутекс“)
 - Трибутил фосфат (ТБП) у 30% керозину

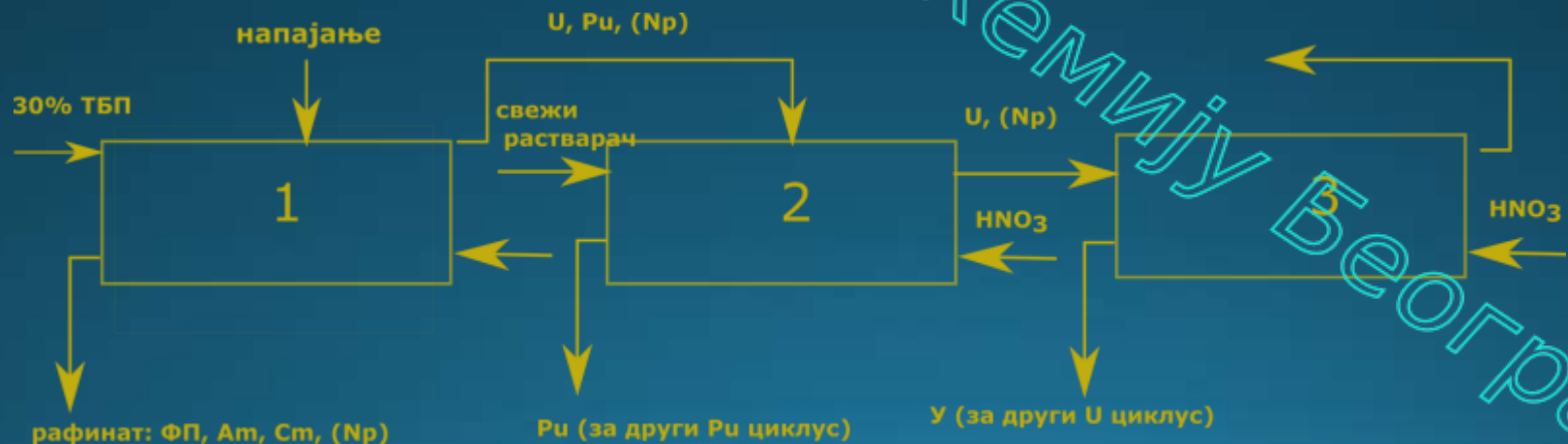


трибутил фосфат

- Неки од алтернативних процеса одвајања
 - Одвајање базирано на различитој испарљивости халида
 - Електролитичко одвајање

“Purex” процедура екстракције

- Екстракциони агенс ТБП
- Из киселог раствора (6 -12 М HNO_3) раствора у ТБП прелазе плутонијум и уранијум и мало фисионих фрагмената
- Кад је концентрација киселине мала сви актиноиди прелазе у неорганску фазу



• **Фаза 1.** Екстракција 99,8 % уранијума и плутонијума у органску фазу.

• 99% фисионих производа и актиноида (велики део активности) остаје у воденој фази и чини отпад високе активности

• **Фаза 2 (партиција).** Редукција Pu до оксидационог стања 3+ помоћу U(IV)-нитрата и Fe(II)-сулфамата. Pu прелази у водену фазу.

• Уранијум у облику 4+ и 6+ јона остаје у органској фази

• Фаза 2а. Пречишћавање уранијума помоћу реакције



• **Фаза 3.** Екстракција уранијума из органске фазе помоћу разблажене HNO_3

• Фаза 3а. Отклање (евентуалног) присуства фисионих фрагмената пропуштањем кроз колону од силикагела.

• Аналоги ступњеви у пречишћавању плутонијума

• Проблеми...

Отпад у процесу издвајања U и Pu

- Отпад високе активности
- 99,5 % фисионих фрагмената,
 - Водена фаза из првог степена сепарације
 - Деконтаминација опреме
- Отпад средње радиоактивности $< 40 \text{ GBq/l}$
- Потиче из процеса пречишћавања растварача, пречишћавања гасова...
- Отпад ниске радиоактивности $< 0,1 \text{ GBq/m}^3$
- Потиче из различитих процеса у преради
- Генерална стратегија је да се отпад средње активности упаравањем концентрује и додаје високоактивном отпаду

Гасовити отпад у процесу екстракције

- Највећим делом настају у процесу сечења и растварања испужених горивних елемената
- Од неактивних гасних продуката одвајају се испиралицама испуњеним NaOH и филтрацијом кроз зеолит и активни угаљ
- Главни конституенти ^{131}I (у облику I_2 , HI и HIO), RuO_2 , ^{85}Kr , ^3H (HT, HTO) и ^{14}C
 - Јод и RuO_2 заостају у испиралицама/систему за пречишћавање гасова
 - ^{85}Kr се одстрањује помоћу активног угља или ликвефакцијом уз течни азот
 - 90 % ^3H је у облику HTO, остатак се (контролисано) испушта у атмосферу
 - 80% $^{14}\text{CO}_2$ се може „ухватити“ у облику CaCO_3 , остатак се испушта у атмосферу

Течни отпад

Течни отпад

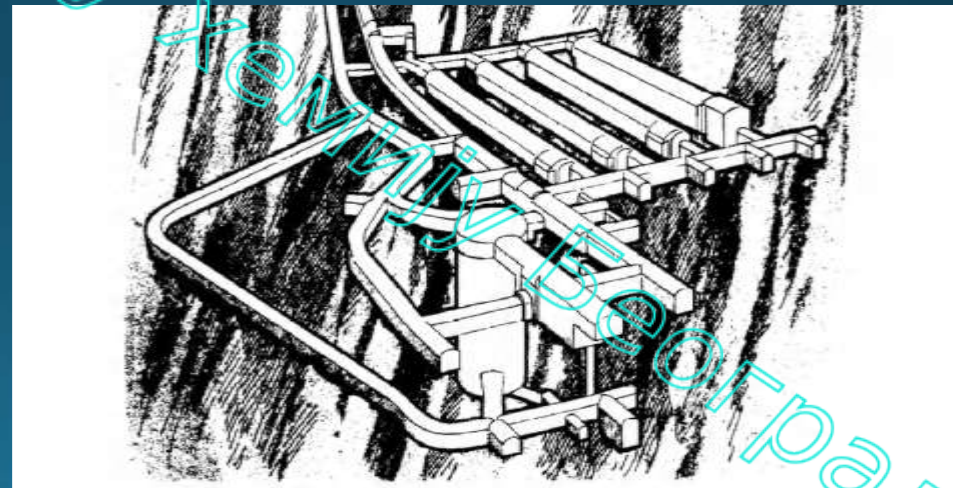
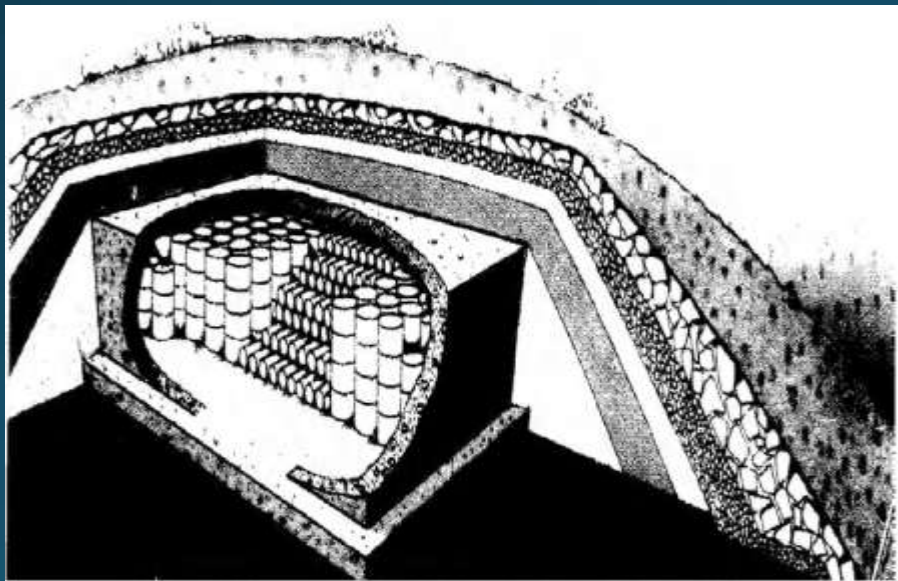
- високе активности чини 99,5% фисионих производа, 0,5% U, 0,2% Pu.
- средње активности
- ниске активности
- течни органски отпад (ТБП, керозин...)
- Односи количина радиоактивног отпада:

ТОНА >>ТОСА>>ТОВА

- Чврсти отпад (отпад високе активности) настаје при растварању горивних шипки и укључује продукте активације и малу количину уранијума и плутонијума

Складиштење отпада ниске и средње активности

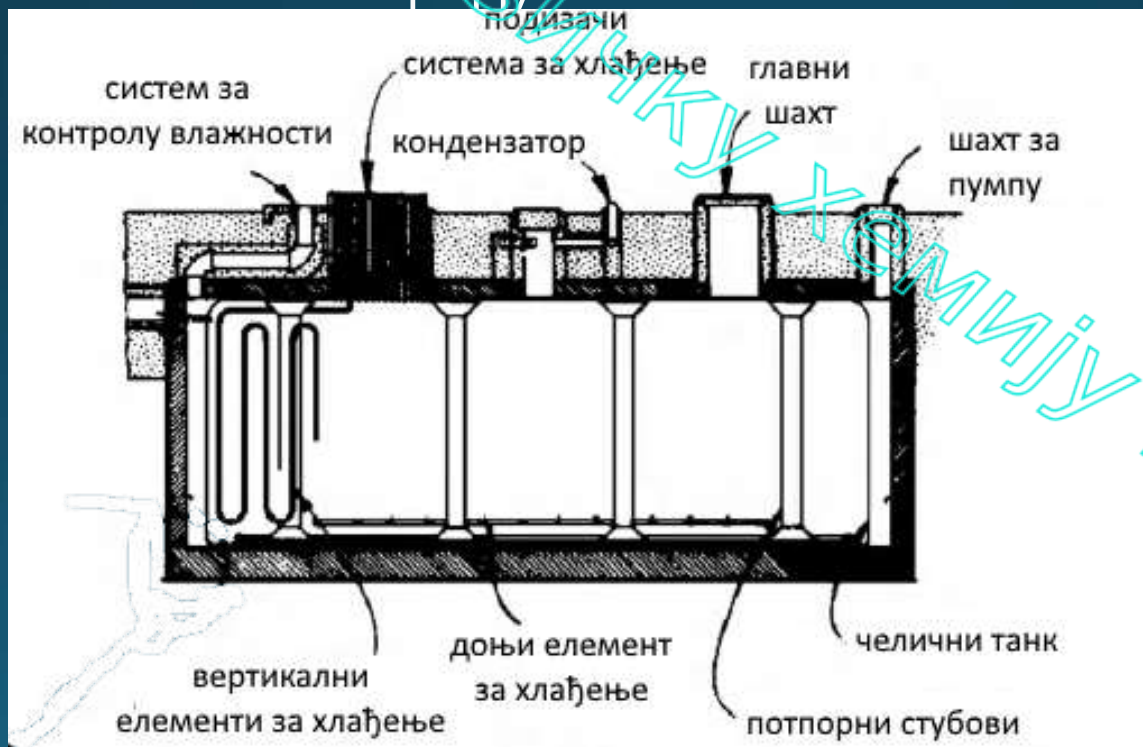
- Већина земаља складишти овај тип отпада у бетонираним рововима дубине 5-8 метара који се затим затрпавају земљом.
- Дозе на површини изнад складишта на растојању од 30 cm морају бити мање од $0,01 \text{ mGy/h}$
- Алтернатива – коначно складиштење у геолошким формацијама



Складиште у Forsmark-у, Шведска

Привремено складиштење отпада високе активности

- На 1 t ислуженог горива настаје око 5 m^3 отпада високе активности који се даље концентрује на $1/5$ запремине (специфична активност око 10^7 GBq/m^3)
- Отпад се пакује у танкове запремине $50\text{-}500 \text{ m}^3$ од нерђајућег челика са бетонском облогом са контролом хлађења и контролом гасовитих продуката.



Солидификација чврстог отпада



Стратегије за коначно одлагање отпада високе активности

- Депоновање у океанима на великим дубинама
- Избацивање у свемир
- Нуклеарна трансмутација отпада
- Солидификација и похрањивање у геолошки стабилне формације