



Kehittyneet polttoainekierrot UUDET EROTUSTEKNIIKAT

KYT2014-seminaari 18.3.2015

Risto Koivula, HYRL



Kehittyneet polttoainekierrot

UUDET EROTUSTEKNIIKAT

- Tutkimusaihe
- Tavoitteet
- Tutkimustyö
 - Tuotteiden synteesi
 - Alustava testaus
 - Karakterisointi
 - Eluutiokokeet
 - Sorptiomekanismin tutkimus
- Tulos vs. tavoitteet

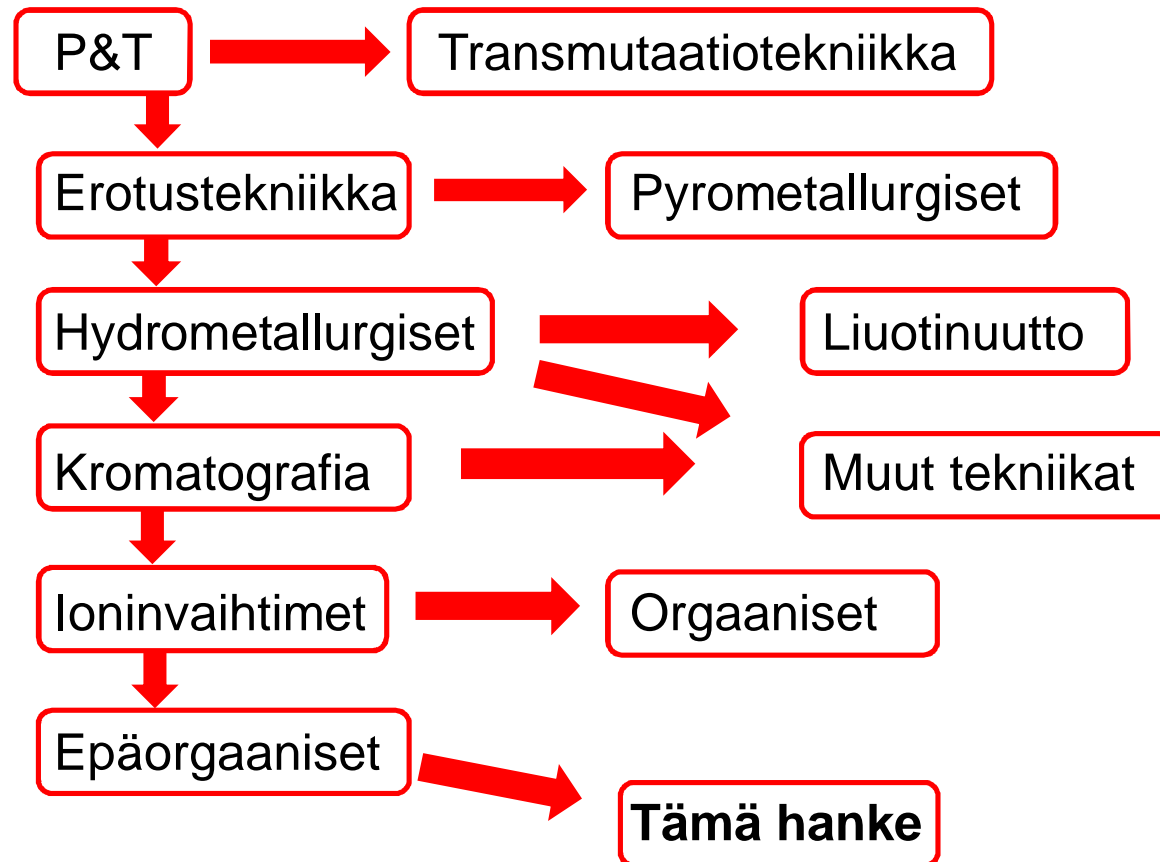


Tutkimusaihe

- 'Kehittyneet polttoainekierrot' sekä 'suljetut polttoainekierrot'
 - Maailmanlaajuista tutkimusta, lukuisia kansainvälisiä ja kansallisia tutkimusohjelmia
 - Ydinpolttoaineen kierrätystä tutkitaan sekä olemassa oleville että tuleville reaktorityypeille
- P&T-konsepti (partitioning & transmutation)
 - Erotustekniikka ja transmutaatiotekniikan kehitystä
 - Niin suljetun polttoainekierron kuin yleisestikin aktiivisen jätteenkäsittelyn sovelluksiin



Tutkimusaihe





Tavoitteet

- I. Asiantuntijan (FT) kouluttaminen erotustekniikan alalle
- II. Epäorgaanisten ioninvaihtimien luominen aktinidilantanidierotukseen
 - Klassinen haaste käytetyn polttoaineen fraktioinnissa: kolmenarvoiset aktinidit (Am, Cm) ja lantanidit hyvin samankaltaisia käytökseltään
- III. Alan kehityksen seuranta (raportit yhteistyössä VTT:n kanssa)



Alkuperäinen suunnitelma

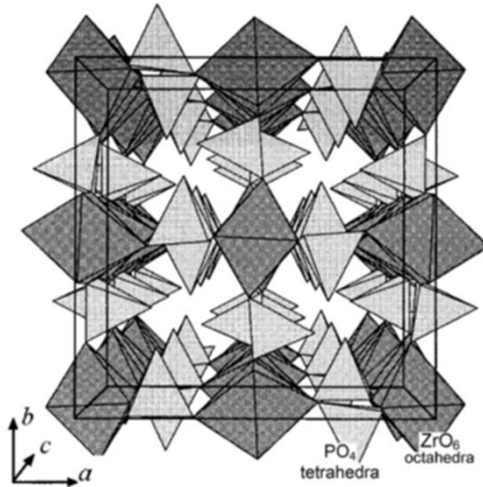
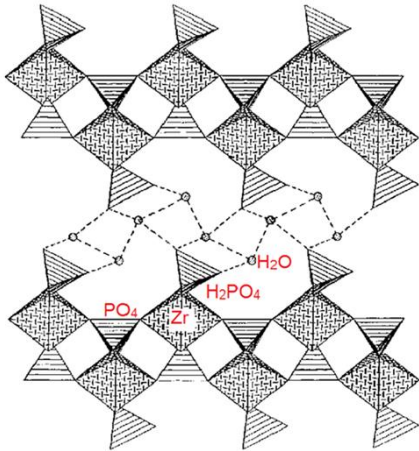
- Metallifosfaattien tutkimus aktinidi/lantanidi-erotuksiin
 1. Tuotteiden syntetisointi
 2. Alustava testaus
 3. Yhdisteiden karakterisointi
 4. Eluutiokokeet
 5. Matriisin vaikutuksen tutkimus
 6. Am:n ja Eu:n sorptiomekanismien tutkimus
 7. Am:n ja Eu:n sorption mallinnus
 8. Erotusprosessien suunnittelu ja arviointi (Flowsheet design)

- Asiantuntijan (FT) kouluttaminen erotustekniikan alalle
 - FM Elmo W. Wiikinkoski

- Alan kehityksen seuranta (raportit yhteistyössä VTT:n kanssa)



Tuotteiden synteesisistä



HELSINGIN YLIOPISTO
HELSINGFORS UNIVERSITET
UNIVERSITY OF HELSINKI

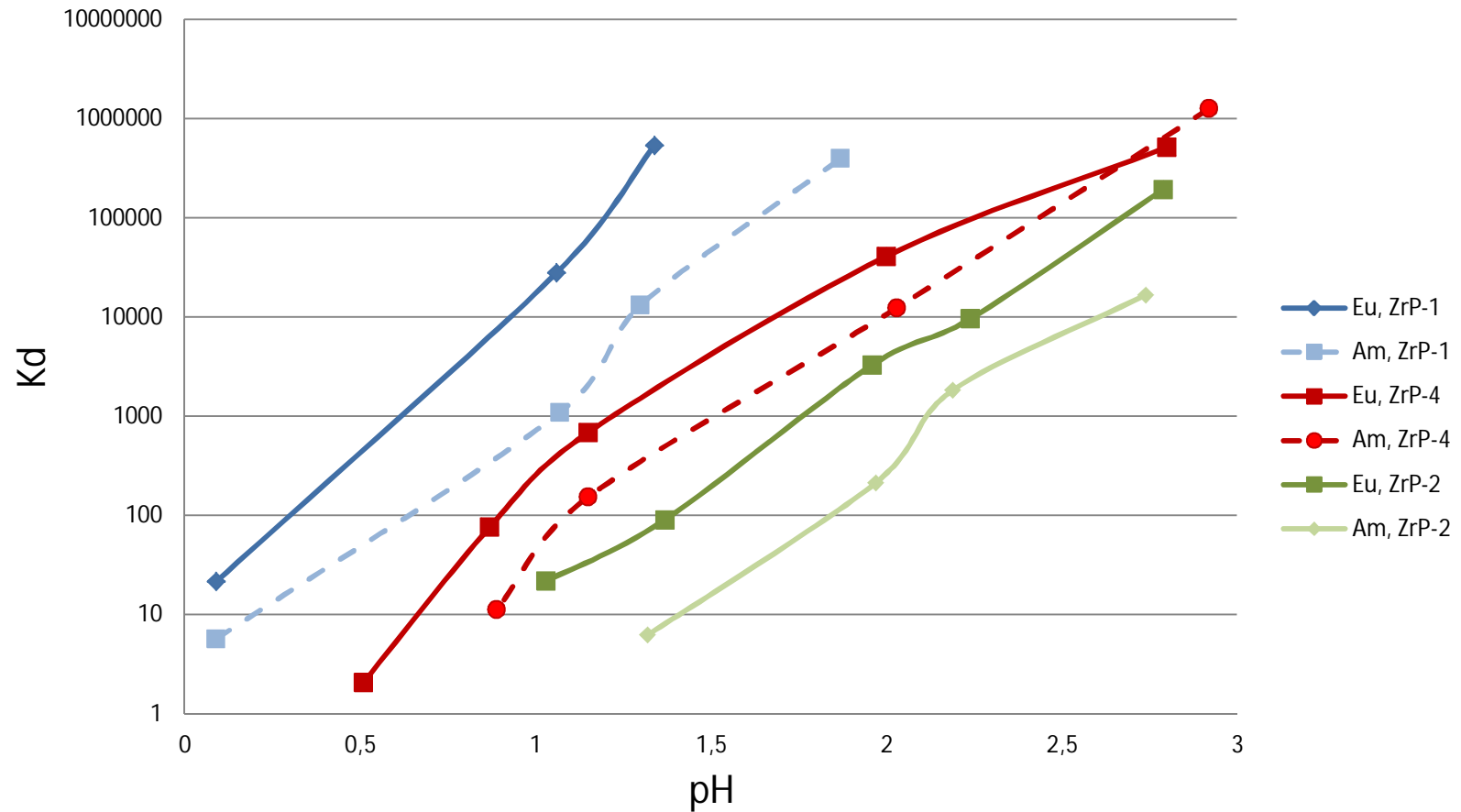


- Zr-fosfaatit
 - Kerrosrakenteiset (2D α -ZrP) $\text{Zr}(\text{H}_2\text{PO}_4)(\text{PO}_4) \cdot 2\text{H}_2\text{O}$
 - Nanohuokoiset (3D τ -ZrP)
- Titaani- ja sekafosfaatit TiP, ZrTiP
- Muut (NH_4MoP , SiAlPO , SiSb)
- Fosfaattien osalta synteessipuolen haasteena ollut alusta asti rakeisen kolonnikelpoisen tuotteen aikaansaaminen
- Silikaan sidottu 2D ZrP



Alustava testaus

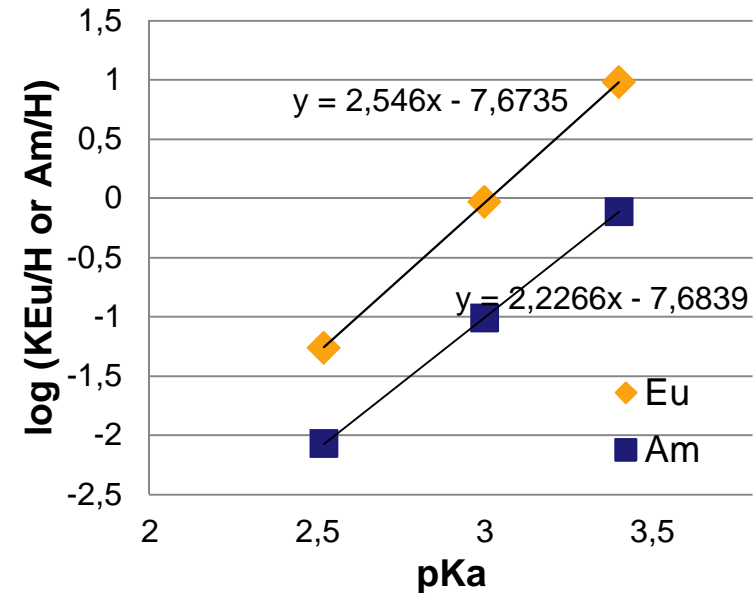
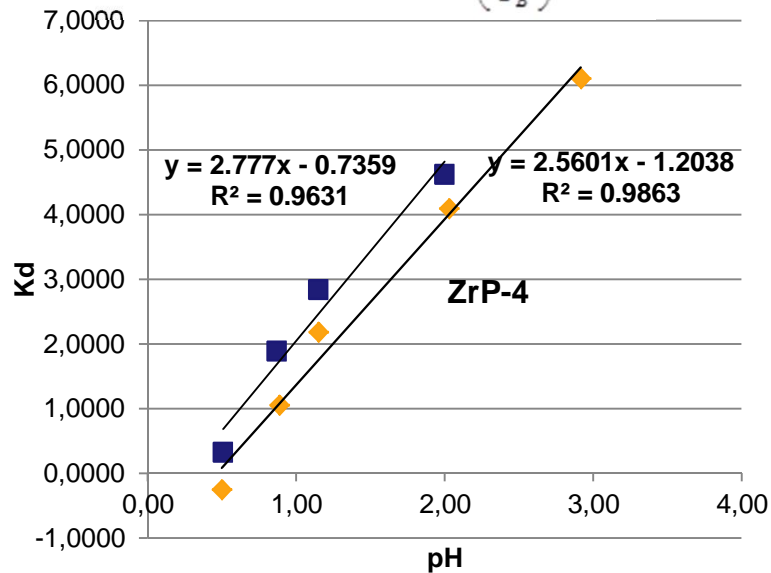
(jakaantumiskertoimet Eu-152/Am-241 -typpihapossa)





Am:n ja Eu:n sorptio- mekanismien tutkimus

$$\log K_D = \log(k_{A,B} [Q]^{z_A}) - \left(\frac{z_A}{z_B} \right) \log [B]$$

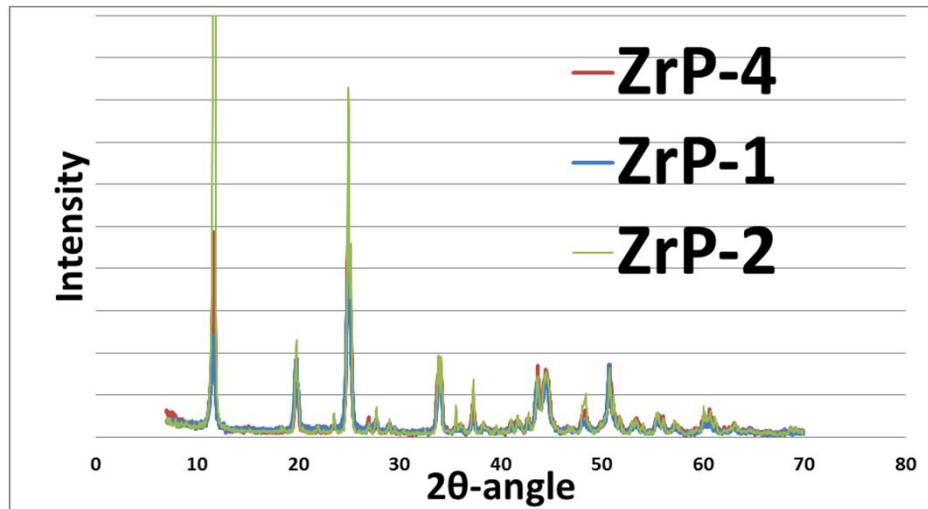


- Sorptio M^{3+}/H^+ - ioninvaihtoa
- Lisäksi titrauskokeita (happo-emäs, Nd, Pr): kapasiteetti 6 meq/g

- Yhteys materiaalin happamuuden ja Am/Eu selektiivisyyden kanssa



Karakterisointi (PXRD, FTIR, FESEM)



- Eri menetelmillä valmistettujen tuotteiden rakenne (alfa-ZrP) ja koostumus sama
- Miksi hyvin poikkeavat jakaantumiskertoimet?

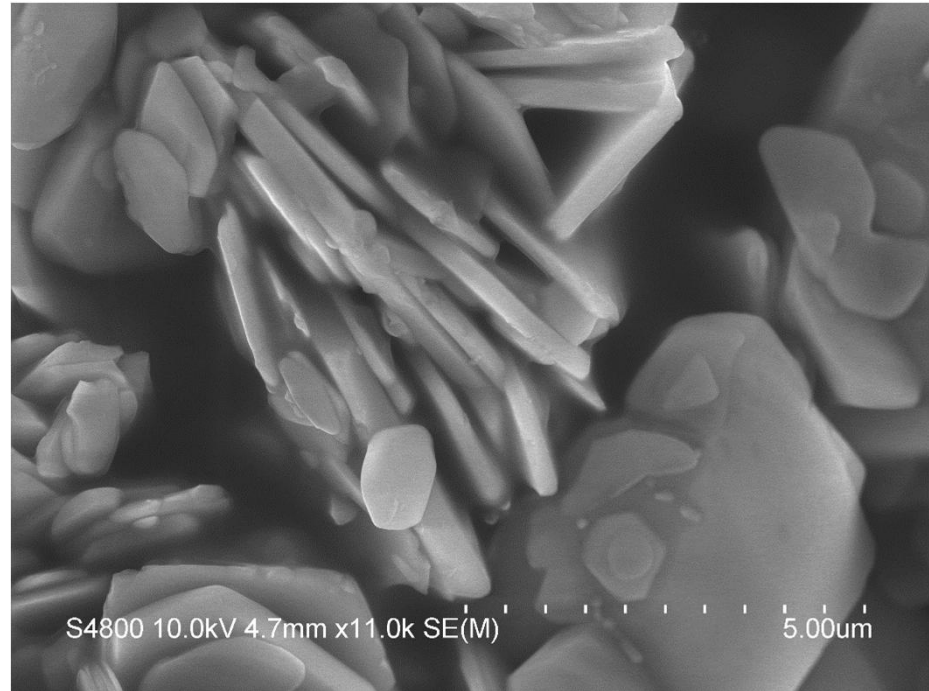
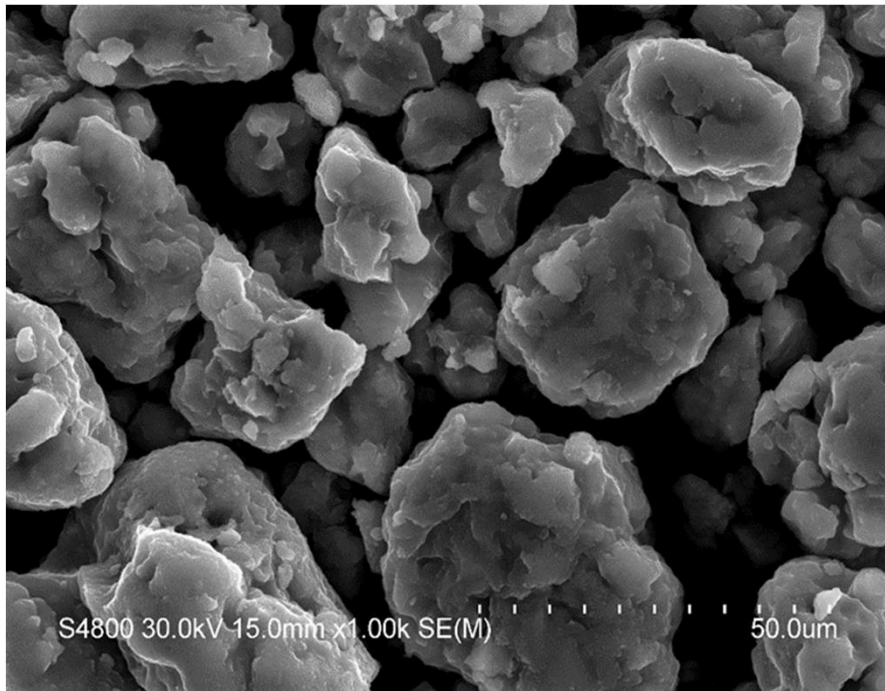
PXRD

Exchanger	P:Zr-ratio	Error	Rel. error (%)
ZrP-1	2.47	0.05	2.1
ZrP-2	2.37	0.08	3.2
ZrP-4	2.44	0.09	3.6

FESEM



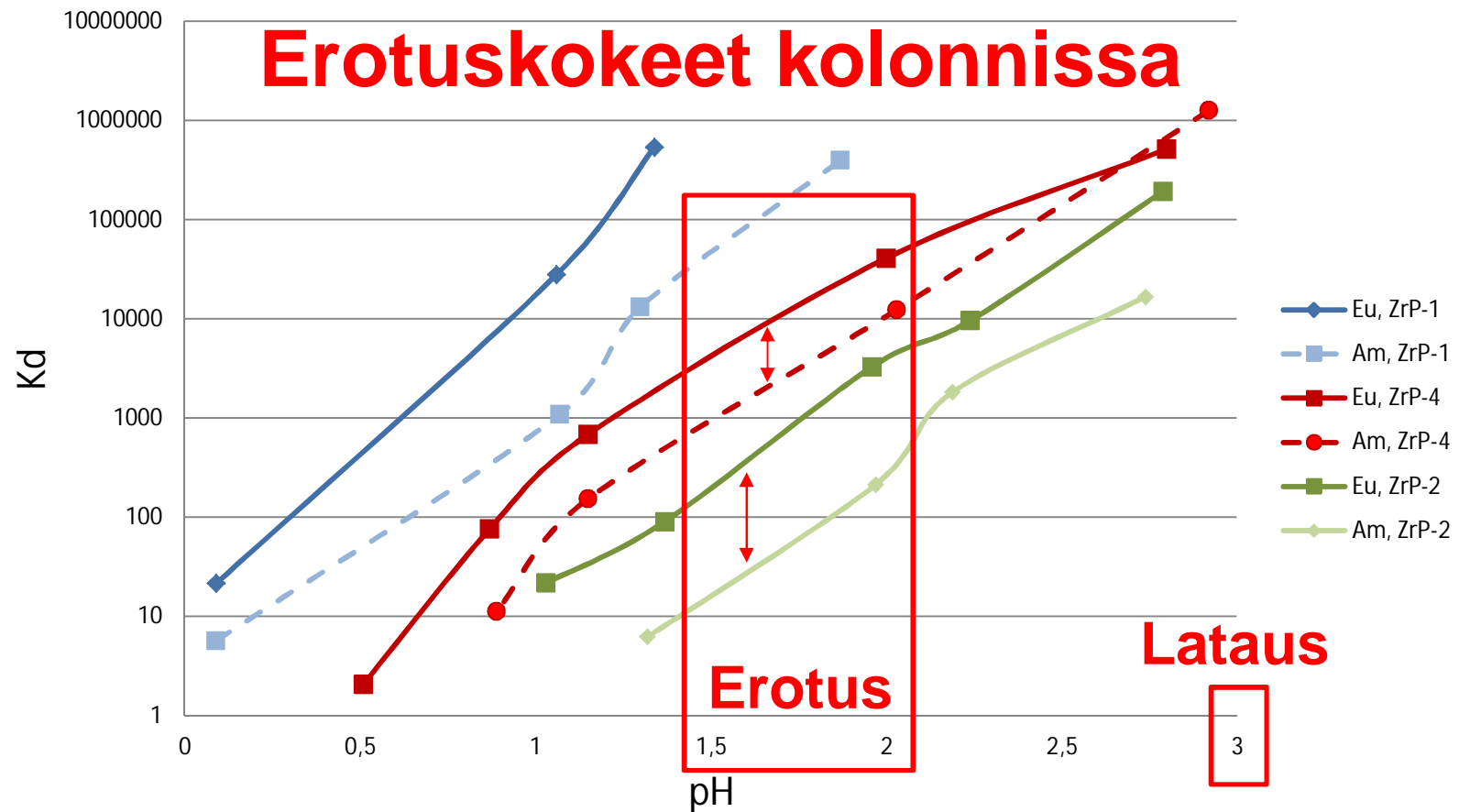
Karakterisointi (PXRD, FTIR, FESEM)



Makromuoto FESEM:lla, ZrP-1 (vas) ja ZrP-2/4 levymäisiä rakenteita



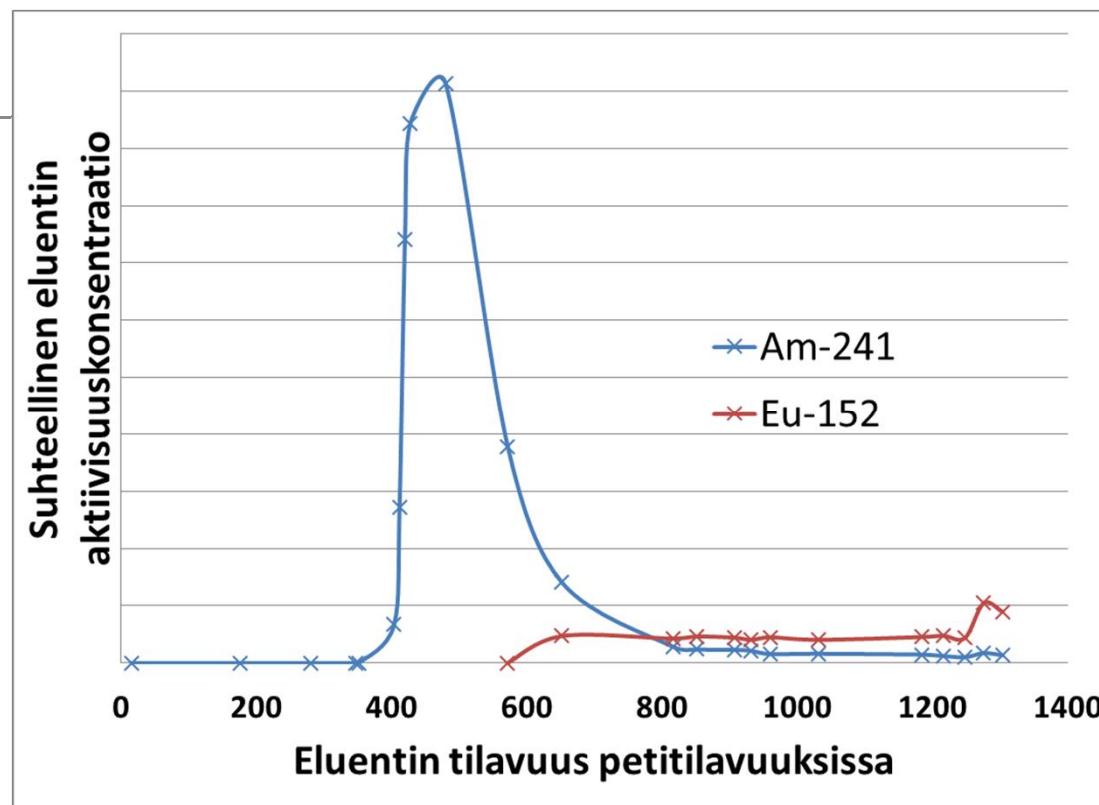
Alustava testaus (Eu-153/Am-241-sorptio typpihapossa





Eluutiokokeet

ZrP-4



Viimeisin eluutiokoe. Olosuhteet: lataus 0,001 M HNO₃/0,1 M NaNO₃, elutio 0,01 HNO₃/0,1 NaNO₃, petitilavuus 2 mL (1,4 g), eluutionopeus 4 petitil./h
Nuklideita ladattu sama määrä (kuvaajassa pinta-ala) aktiivisuutta



Alkuperäinen suunnitelma

- Metallifosfaattien tutkimus aktinidi/lantanidi-erotukseen

 1. Tuotteiden syntetisointi
 2. Alustava testaus
 3. Yhdisteiden karakterisointi
 4. Eluutiokokeet
 5. Matriisin vaikutuksen tutkimus
 6. Am:n ja Eu:n sorptiomekanismien tutkimus
 - ~~7. Am:n ja Eu:n sorption mallinnus~~
 8. Erotusprosessien suunnittelu ja arviointi (Flowsheet design)

- Asiantuntijan (FT) kouluttaminen erotustekniikan alalle
 - FM Elmo W. Wiikinkoski

- Alan kehityksen seuranta (raportit yhteistyössä VTT:n kanssa)
 - S. Häkkinen, E. Wiikinkoski, *Kehittyneiden polttoainekiertojen tutkimus maailmalla*, VTT-R-00431-15



Kehittyneet polttoainekierrot - Uudet erotustekniikat

- Projektin päätulos vs. tavoite
 - Löydettiin mielenkiintoisia materiaalisynteesin, happamuuden ja selektiivisyyden välisiä yhteyksiä (1,2,3,6) ja osoitettiin materiaali käytännön erotuskolonneihin ja mallinuklideille soveltuvaksi (4)
 - Mahdollisuus räätälöidä happamuutta/selektiivisyyttä optimaalisen materiaalin valmistamiseksi erotusprosesseihin (yksi seuraavan hankkeen pääaihe)
 - Sovellusalueita laajasti radionuklidien/hivenmetallien sorptiossa
 - Ln/An käytännön erotusprosessien (matriisi 5, prosessi 8) suunnittelu jäivät aikataulusta
- S. Häkkinen, E. Wiikinkoski, *Kehittyneiden polttoainekiertojen tutkimus maailmalla*, VTT-R-00431-15



Seuraava hanke

Kehittyneet polttoainekierrot – Uudet erotustekniikat



Kehittyneet polttoainekierrot – Uudet säädettävät erotusmateriaalit (SERMAT)

”...Zr-fosfaatti-ioninvaihtimien synteesiolosuhteiden ja selektiivisyyden välisten yhteyksien tutkimus ja optimaalisen aktinidi/lantanidi-erotusmateriaalin ja **erotusprosessin kehittämisen**. Pääpaino on aktinidien erotuksessa **sekundäärijäteliuoksista...**”



Seuraava hanke

Kehittyneet polttoainekierrot – Uudet säädettävät erotusmateriaalit (SERMAT)

- I. **systemaattinen** synteesiolosuhteiden ja selektiivisyyden välisten yhteyksien tutkimus
- II. sorptiomekanismien tutkimus, uudet: EXAFS ja LIF
- III. käytännön erotusprosessien suunnittelu ja optimointi