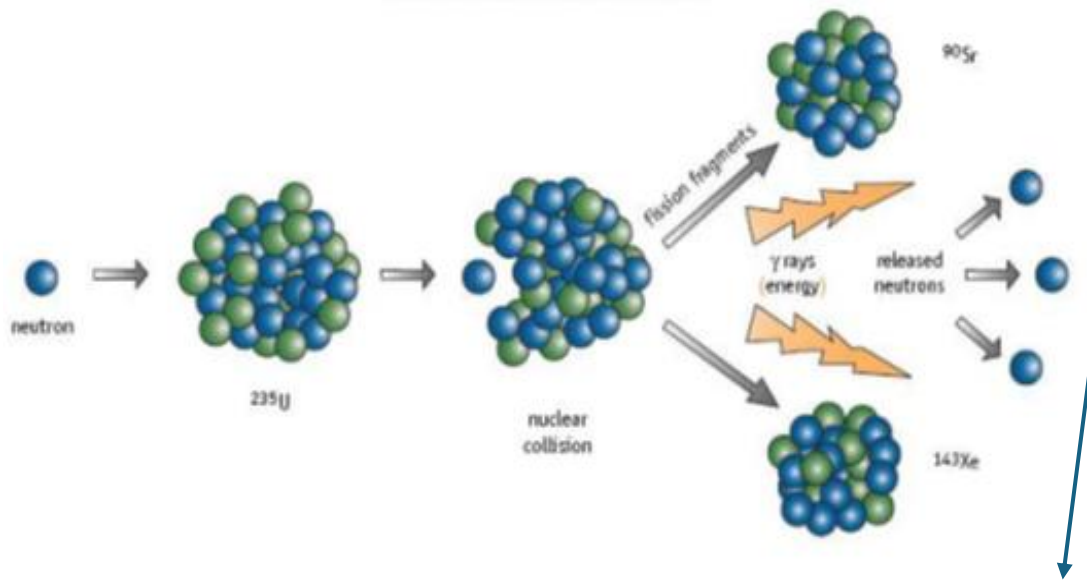


# **IL TRATTAMENTO del COMBUSTIBILE IRRAGGIATO e il RICICLO dello SPENT FUEL :**

## **Aspetti di Radioprotezione**

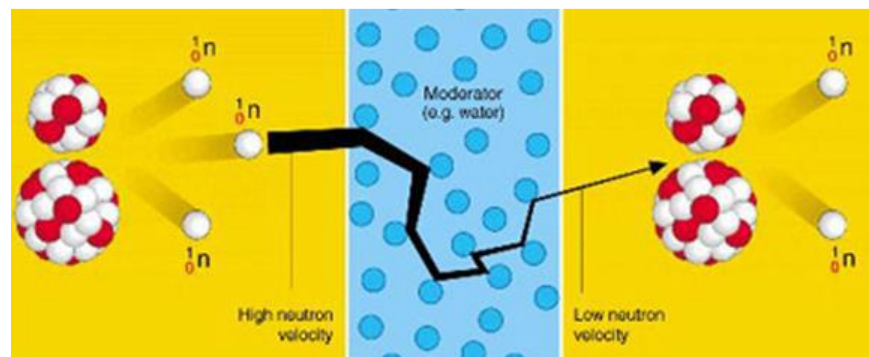
**Maria Letizia Terranova**  
**Un. Tor Vergata - Roma**

# IL PROCESSO di FISSIONE

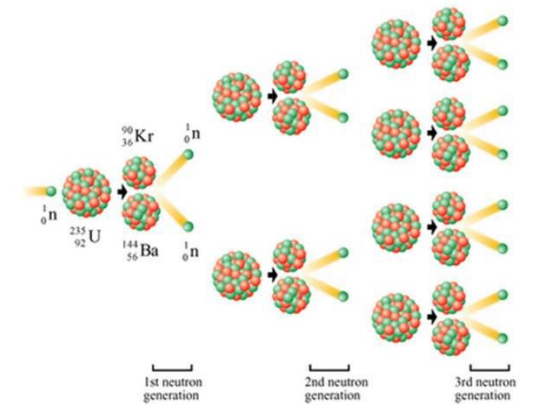


Isotopi FISSILI :  $^{233}\text{U}$   $^{235}\text{U}$   $^{239}\text{Pu}$   
Neutroni termici : 0.025eV

## Moderazione/Termalizzazione



## Processo a catena

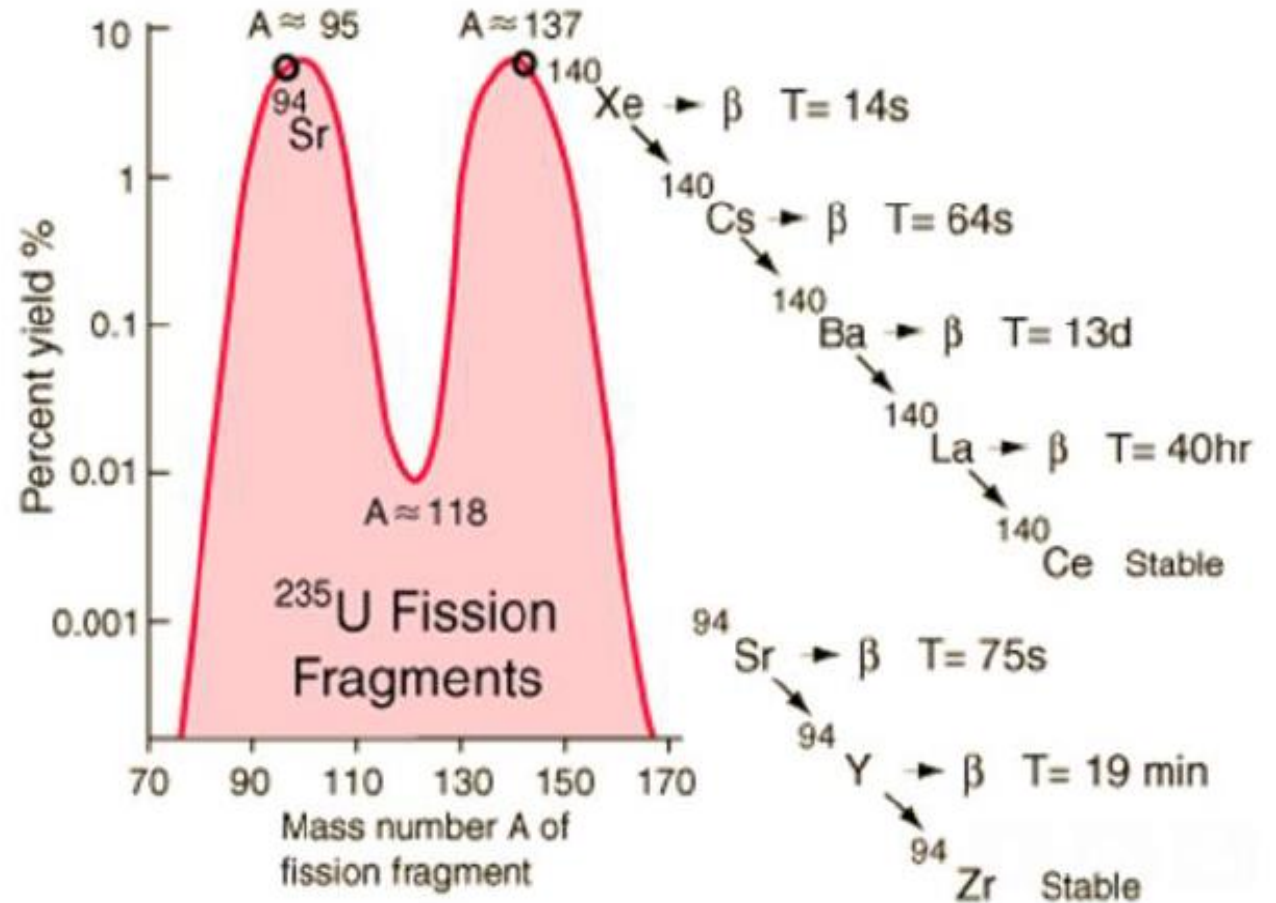


# UN ESEMPIO di FISSIONE

**$^{238}\text{U}$  + 3-5 %  $^{235}\text{U}$  ( LEU)**

**$^{235}\text{U}$  si fissiona in  $^{94}\text{Sr}$  e  $^{140}\text{Xe}$   
(frammenti primari )**

**Frammenti di fissione : distribuzione bimodale**



# UNA VARIETA' di MODI di FISSIONE

**235-U :**

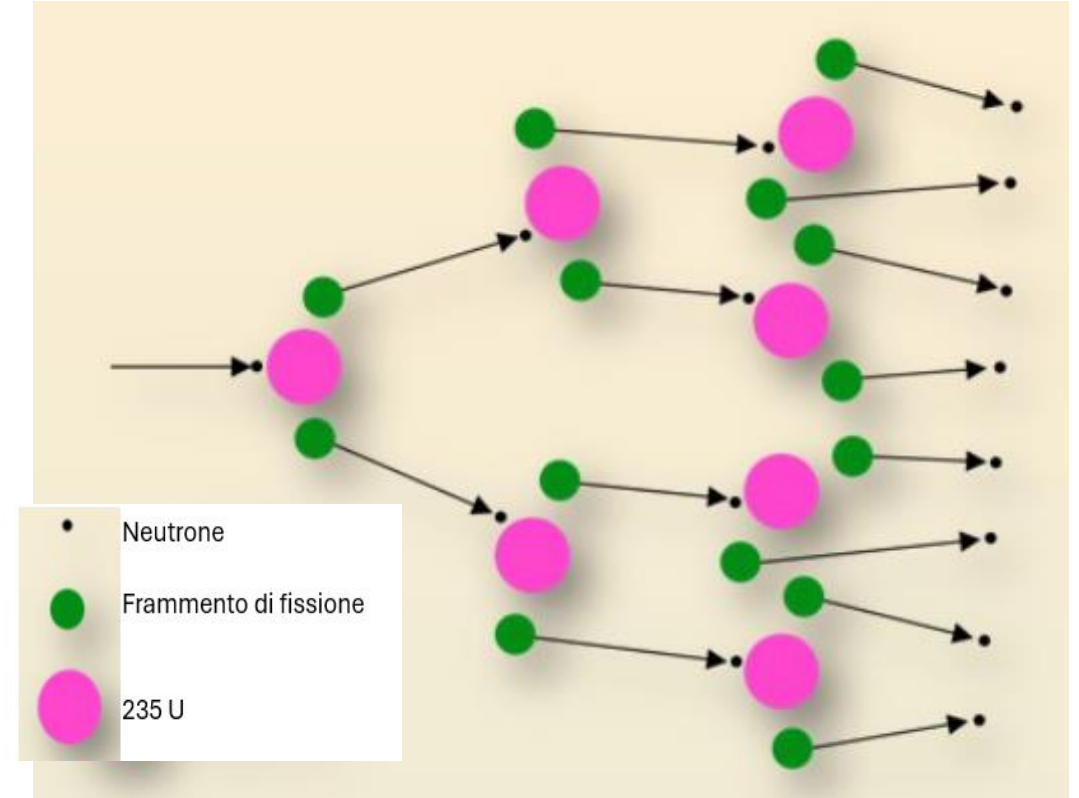
*-oltre 50 modi differenti di fissione*



- *Decine di differenti catene di decadimento*
- *Reazioni secondarie indotte da neutroni*

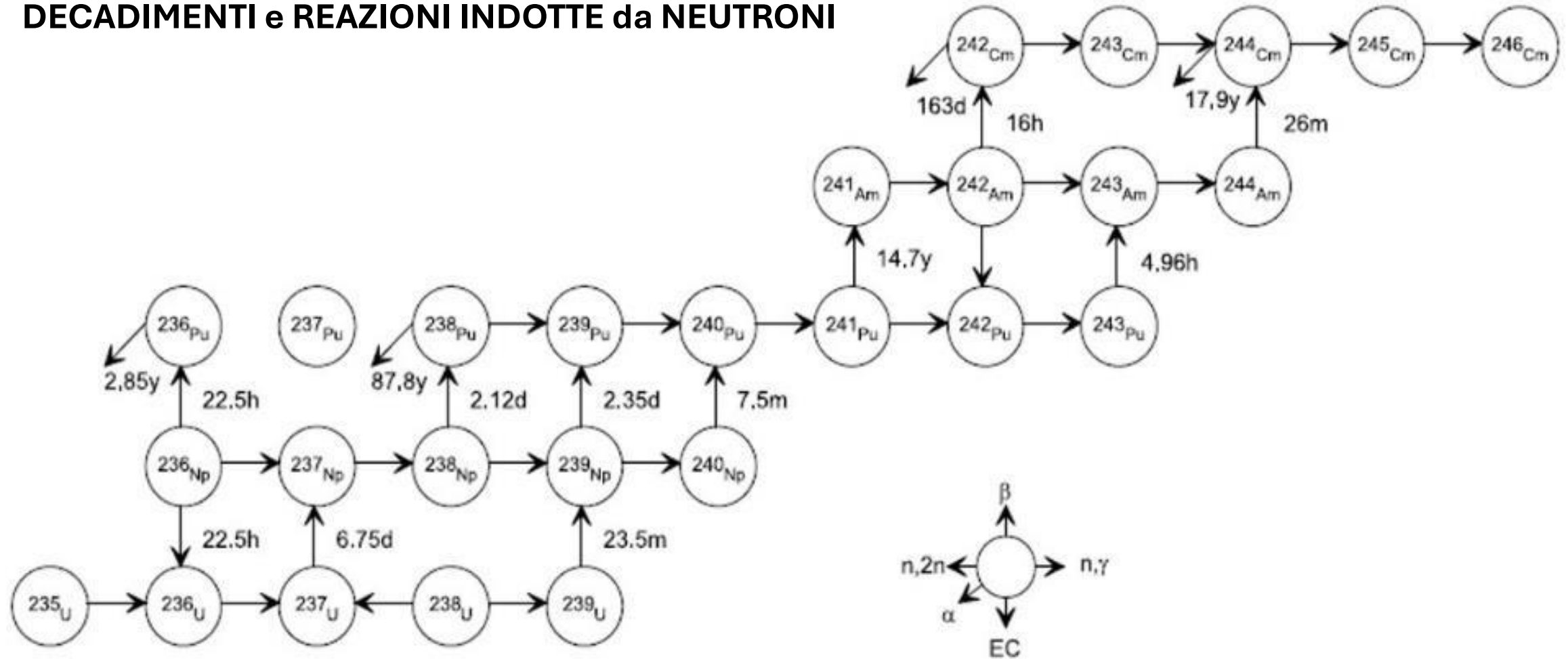


*-centinaia di radioisotopi e isotopi stabili di molti elementi della Tavola Periodica*



# UNA VARIETA' di PROCESSI degli ATTINIDI

## DECADIMENTI e REAZIONI INDOTTE da NEUTRONI

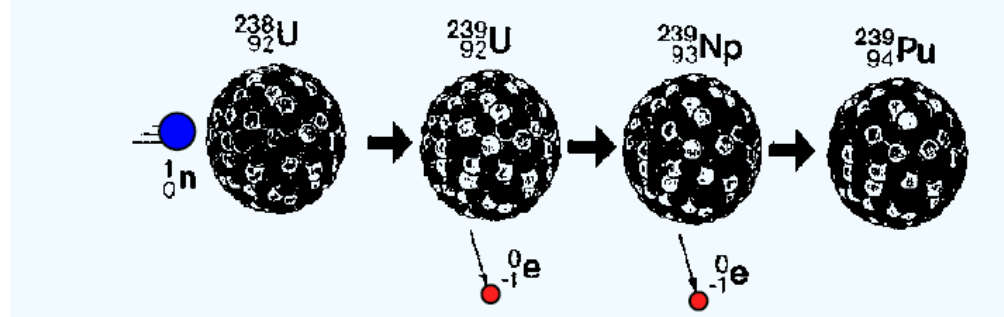


# COSA ACCADE DOPO la FISSIONE

1) -DECADIMENTI  $\beta$  dei **FRAMMENTI di FISSIONE** primari (neutron-rich, instabili )

2) -DECADIMENTI  $\alpha$ ,  $\beta$ , EC degli **ATTINIDI**

3) -**CATTURA** di neutroni da parte dei vari **NUCLIDI** e **REAZIONI SECONDARIE**



La cattura di neutroni da parte di  $^{238}\text{U}$  genera  $^{239}\text{Pu}$

Questi processi determinano la **composizione delle scorie** in un reattore convenzionale a **URANIO**

# COMBUSTIBILE : dall'INIZIALE all' ESAUSTO

**238-U + 3% 235-U ( LEU)**



*1% di 235-U non fissionato/ prodotto da reazioni secondarie*

*1% di 239-Pu prodotto da reazioni secondarie*

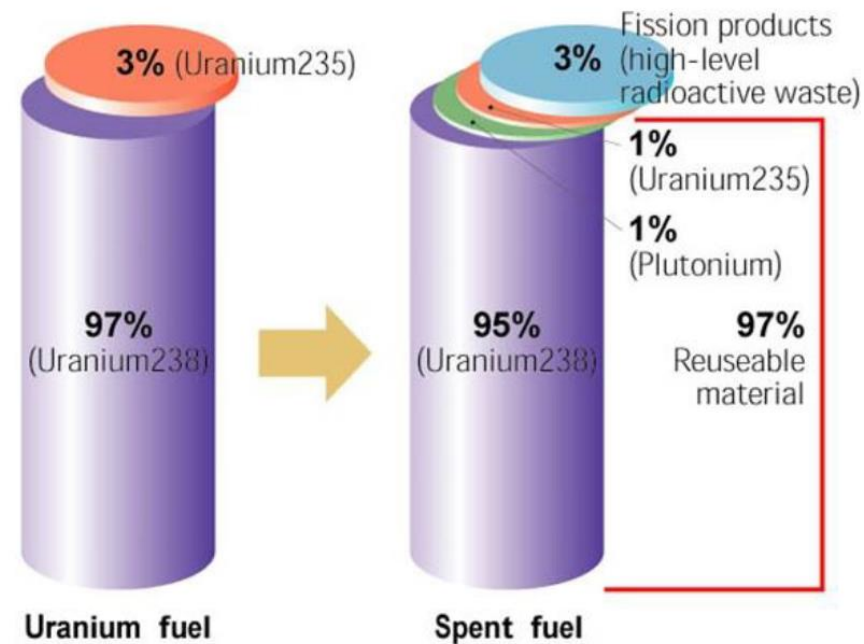
**2% MATERIALE FISSILE RIUTILIZZABILE**

*95% di 238-U*

**MATERIALE in parte RIUTILIZZABILE**

*3% di altri prodotti ( da fissione o reazioni secondarie )*

**3% MATERIALE non fissile potenzialmente RICICLABILE**



## MATERIALE non fissile POTENZIALMENTE RICICLABILE

- 95% del  $^{238}\text{U}$  iniziale
- Isotopi degli Attinidi
- Isotopi di altri Elementi (metalli di transizione, Lantanidi...)

### ATTINIDI

$^{232}\text{U}$   
 $^{234}\text{U}$   
 $^{236}\text{U}$   
 $^{238}\text{Pu}$   
 $^{239}\text{Pu}$   
 $^{240}\text{Pu}$   
 $^{241}\text{Pu}$   
 $^{242}\text{Pu}$   
 $^{237}\text{Np}$   
.....

### ALTRI ELEMENTI

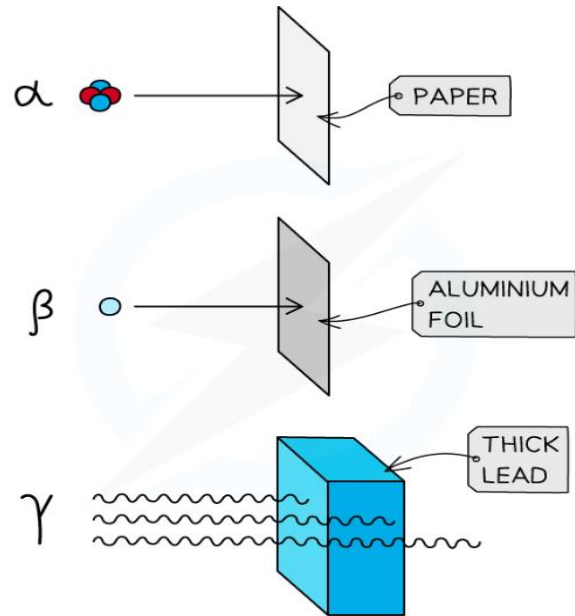
$^{79}\text{Se}$   
 $^{89}\text{Sr}$   
 $^{90}\text{Sr}$   
 $^{99}\text{Tc}$   
 $^{106}\text{Ru}$   
 $^{134}\text{Cs}$   
 $^{137}\text{Cs}$   
 $^{144}\text{Ce}$   
 $^{147}\text{Pm}$   
 $^{154}\text{Eu}$ .....

INOLTRE un ELEVATO NUMERO di ISOTOPI STABILI

# PERICOLOSITA' dei RADIONUCLIDI

Dipende da :

-tipo di decadimento



-emivita

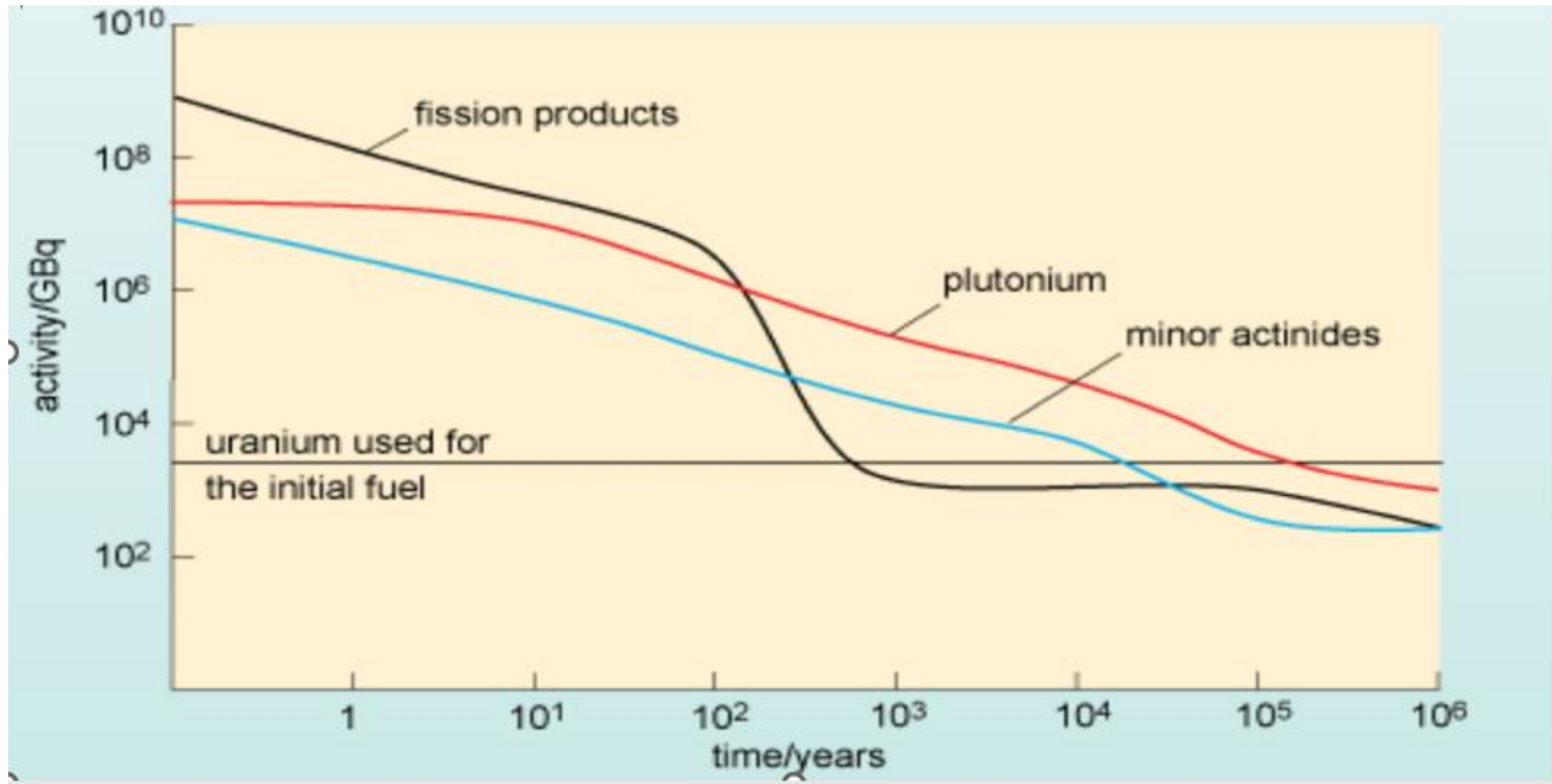
da pochi secondi a Ml di anni

Queen Elizabeth : HARWELL 1957

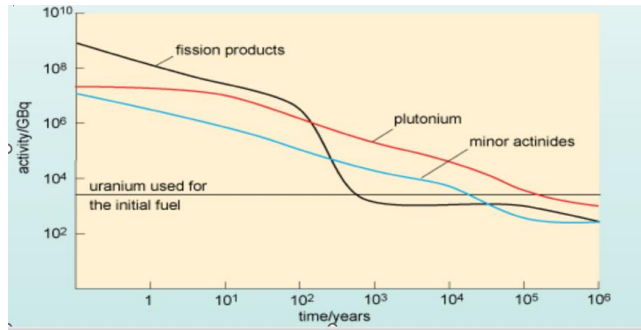


CAMPIONE di  **$^{239}\text{Pu}$**

## RADIOATTIVITA' nel TEMPO



## RADIOATTIVITA' nel TEMPO



- Il 98% si riduce entro ~ 600 anni

Primi 10 anni : **244-Cm** che decade ( $t_{1/2} \sim 18$  anni) a **240-Pu**

Primi 100 anni: **241-Am** : **79-Se** , **90-Sr** , **93-Zr**, **99-Tc**, **107-Pd**, **126 Sn**, **129-I** , **135-Cs**

Tra i 100 e i 100.000 anni : vari isotopi di **Pu** e **Am**

Dopo 100.000 anni: **237-Np** che decade ( $t_{1/2} \sim 10$  Ml anni ) a **209-Bi** ( considerato stabile )

**Le scorie nucleari costituiscono un pericolo per la salute, l'ambiente....**

# IL TRATTAMENTO delle SCORIE NUCLEARI

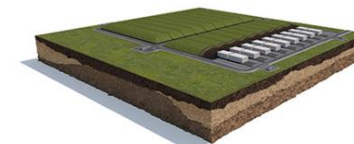
|                          | By Volume | By Radioactive Content |
|--------------------------|-----------|------------------------|
| High Level Waste         | 3%        | 95%                    |
| Intermediate Level Waste | 7%        | 4%                     |
| Low Level Waste          | 90%       | 1%                     |

**Low level waste** : oggetti contaminati dalle operazioni nell'impianto (anche da trattamenti medici)

**Intermediate level waste** : filtri e altri componenti provenienti dall'interno del reattore, effluenti del sistema di raffreddamento estratti durante le operazioni di cleanup

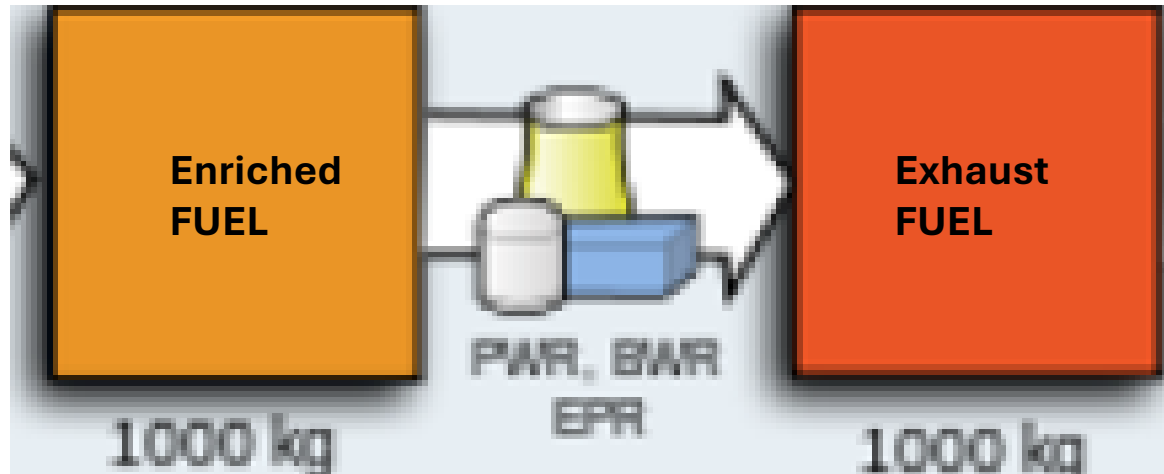
**High level waste** : **combustibile esausto**

**nessita di trattamenti specifici, dal package all'interramento in siti idonei**



## SOLO SCORIE da ELIMINARE ?

- I reattori convenzionali vengono riforniti ogni 18 -24 mesi, sostituendo circa 1/3 delle barre di combustibile
- Ogni barra rimane nel reattore per un periodo tra i 4,5 e i 6 anni
- Oltre il 90% della energia contenuta nel combustibile iniziale rimane dopo 5 anni di attività



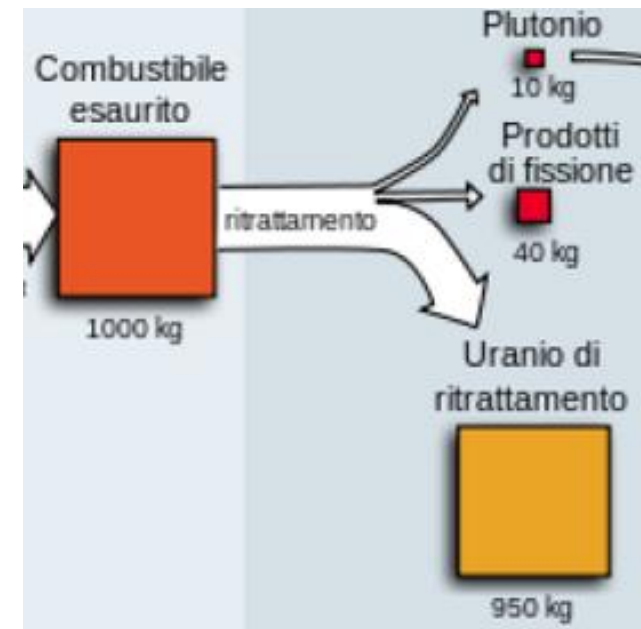
# METODOLOGIE di PROCESSAMENTO del Combustibile ESAUSTO

## PUREX : Plutonium Uranium Reduction Extraction

### Processo idro-metallurgico

- Dissoluzione delle barre di combustibile in acido nitrico concentrato
- Successive estrazioni con solventi per la separazione dei componenti in 3 grandi gruppi :

**-Uranio**  
**-Plutonio**  
**-Prodotti di fissione**



# POSSIBILITA' per Uranio e Plutonio

## 235-U

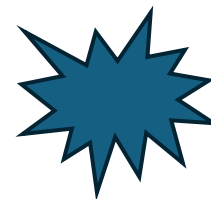
-Usato per arricchire **238-U** e rimesso in ciclo

## 238-U

- Il processo PUREX recupera circa il 20% dell'U iniziale
- Arricchito con **235-U** e rimesso in ciclo

## 239-Pu

- Recuperato e mescolato con U per produrre nuovo combustibile ( **MOX : UO<sub>2</sub> PuO<sub>2</sub>** )
- Utilizzato per produrre **241-Am**



**STEP POTENZIALENTE PERICOLOSO**

# LA SEPARAZIONE del Pu : RISCHIOSO per la PROLIFERAZIONE NUCLEARE ?

Un reattore LWR produce in media **240-Pu** > 18 % ( del Pu totale)

Il **240-Pu** è soggetto a 2 modi di decadimento:

- 1) decadimento  $\alpha$  ( produzione di **236-U**)
- 2) fissione spontanea con emissione di intenso flusso di neutroni



**NON SI RAGGIUNGONO le CONDIZIONI per una IMPLOSIONE ( 239-Pu > 93%)**

**U.S** proibita una separazione completa di **239-Pu** da **240-Pu**  
limitata la produzione di **241-Am**

# Dopo il PROCESSO PUREX

Primo ri-trattamento : estrazione parziale di U e Pu per produzione di nuovo combustibile

**FASE LIQUIDA con ELEVATA RADIOATTIVITA'**



**Partitioning & Conditioning (P&C)**

**PROCEDURE** per :

- separare nuclidi long-lived dagli short-lived (partitioning )
- condizionare/stabilizzare/incorporare il materiale in matrici (vetri,ceramici,cementi, bitume )



Fase 1 del processo di smaltimento



## OLTRE L'APPROCCIO P&C

Un materiale ancora ricco in nuclidi altamente radioattivi:

**Attinidi** : Isotopi di U e Pu , 237-Np, 241-Am, 243-Am, 244-Cm...

**Prodotti di fissione** : 79-Se, 90-Sr, 93-Zr, 99-Tc, 107-Pd, 126-Sn, 129-I, 135-Cs ....



### Partitioning & Transmutation (P&T)

#Procedure chimiche :

-**separare attinidi dai prodotti di fissione**

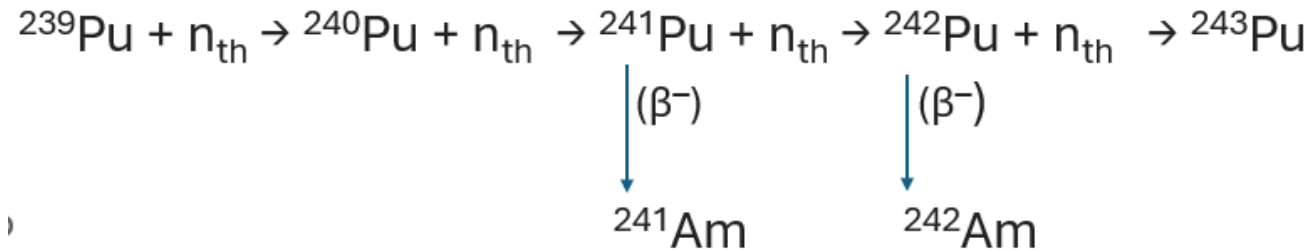
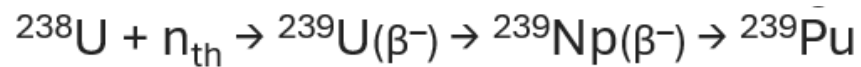
#Processi nucleari indotti da flussi di neutroni ( FISSIONE e CATTURA NEUTRONICA ) :

-**transmutare alcuni nuclidi molto RADIOTOSSICI** ( tipo decadimento, attività , emivita )

# L'APPROCCIO P&T (1)

## 1- EFFICIENTI FASI di SEPARAZIONE (partitioning iniziale)

-Completa eliminazione di  $^{238}\text{U}$  (cattura di neutroni , generazione di nuovi Attinidi :



-Completa separazione degli Attinidi dai Lantanidi (elevata sezione d'urto per cattura di neutroni )

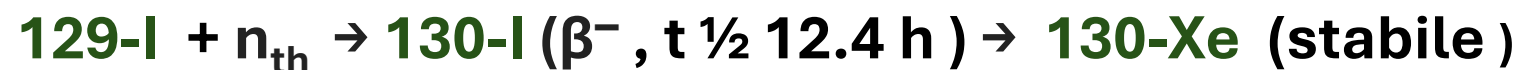
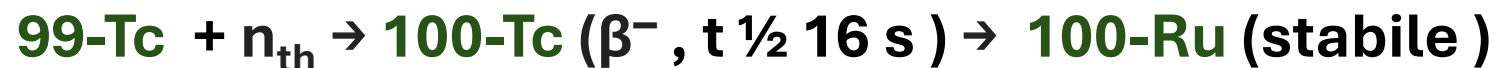
# L'APPROCCIO P&T (2)

## 2 – ELEVATI FLUSSI di NEUTRONI

Le trasmutazioni tramite reazioni (n,γ) possibili in reattori convenzionali solo per isotopi di **Np, Am, Cm**

Per i prodotti di fissione ( esempio: **99-Tc e 129-I** ) le trasmutazioni necessitano di altri tipi di installazioni:

### Fast Neutron Reactors (FNR) - Accelerator Driven Systems (ADS)



Il combustibile esausto è una fonte preziosa di :

**ISOTOPI ed ELEMENTI STRATEGICI per INDUSTRIA e il BIO-MEDICALE /FARMACEUTICO**

## SEPARARE-ESTRARRE-RIUSARE

## #Un ELEVATO NUMERO di ELEMENTI in DIFFERENTI STATI di OSSIDAZIONE

## #MOLTI ELEMENTI presentano VARI ISOTOPI

[illegible]

## Separare i vari elementi richiede lunghi e complessi processi chimici

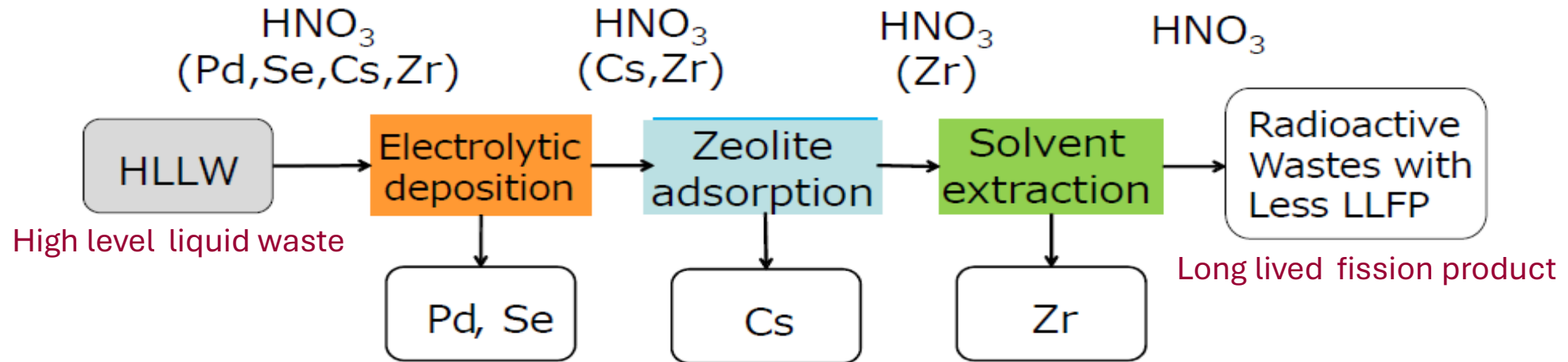
## Separare gli isotopi richiede innovative tecniche fisiche



# PROCEDURE per una SEPARAZIONE SELETTIVA

Il fluido ottenuto dai primi pre-trattamenti passa attraverso un sistema di centrifughe con vari compartimenti

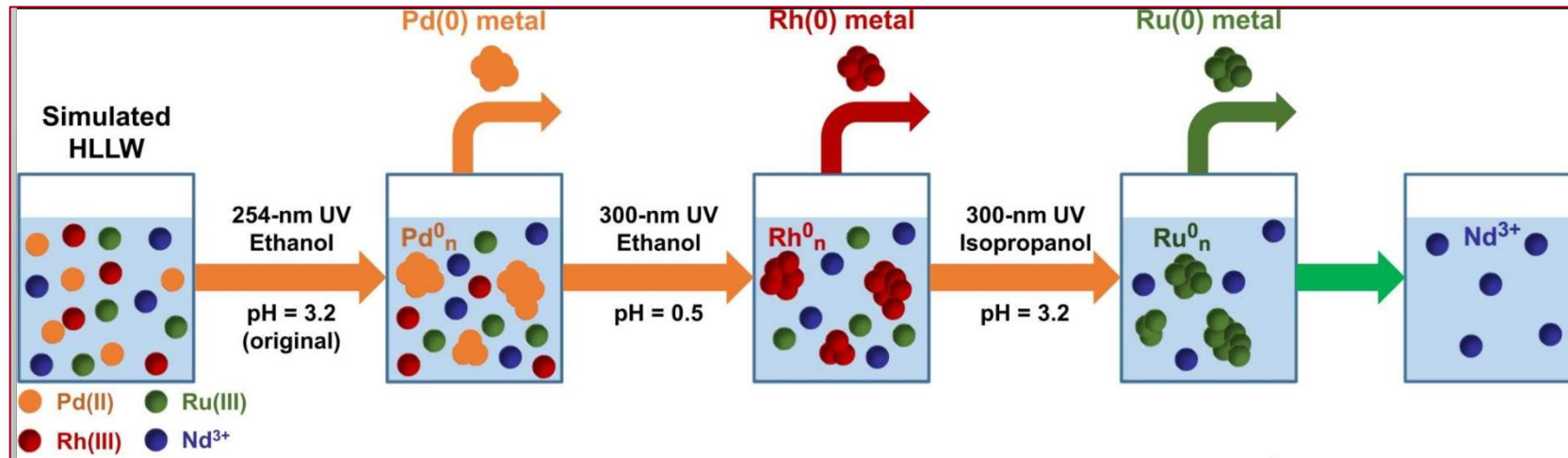
Mentre scorre avvengono : **MESCOLAMENTI,**  
**CENTRIFUGAZIONI**  
**PROCESSI ELETTOCHIMICI**  
**SEPARAZIONE di FASI**  
**AGGIUNTE di REAGENTI**  
**SOTTRAZIONI di PRODOTTI**



# METALLI di INTERESSE INDUSTRIALE

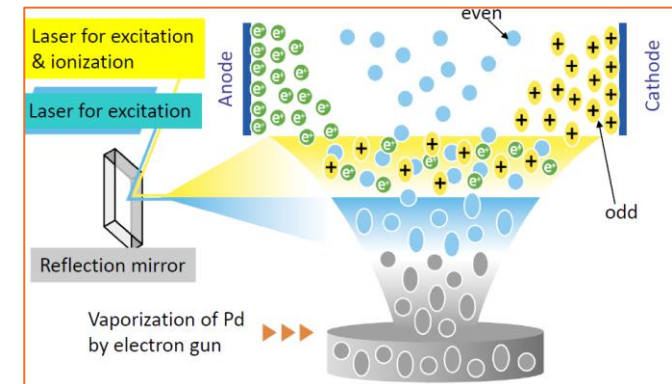
Di particolare rilevanza economica sono i rari e costosi metalli **Ru** , **Rh**, **Pd**

**Processo multi-step : ottenimento selettivo di Pd (99.8%) , Rh (99.9%) , Ru(90.0%)**



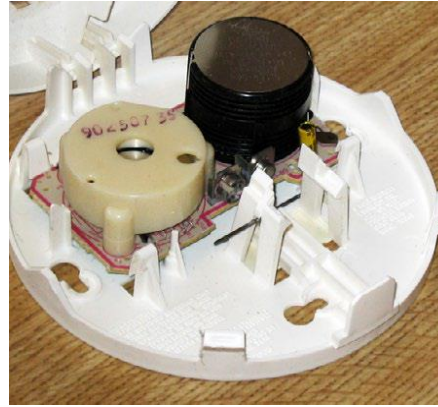
Avanzate tecniche di separazione isotopica :

Pd : **105-Pd** e **107-Pd**



## ALTRE APPLICAZIONI

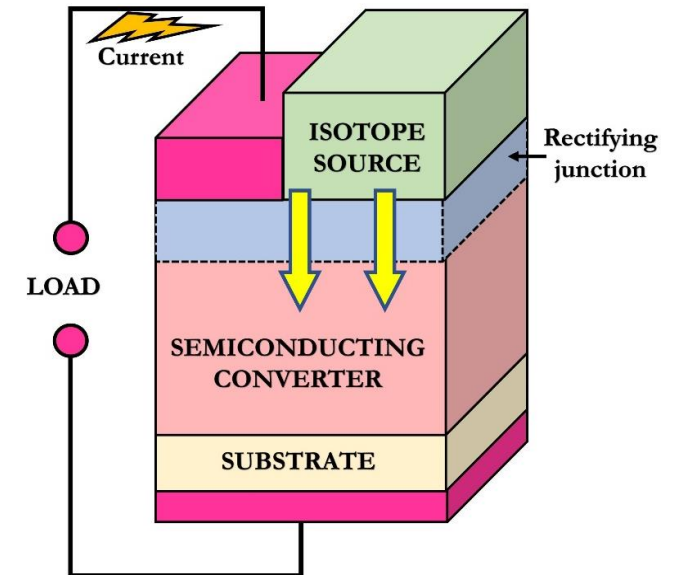
**241-Am** per Rivelatori di fumo



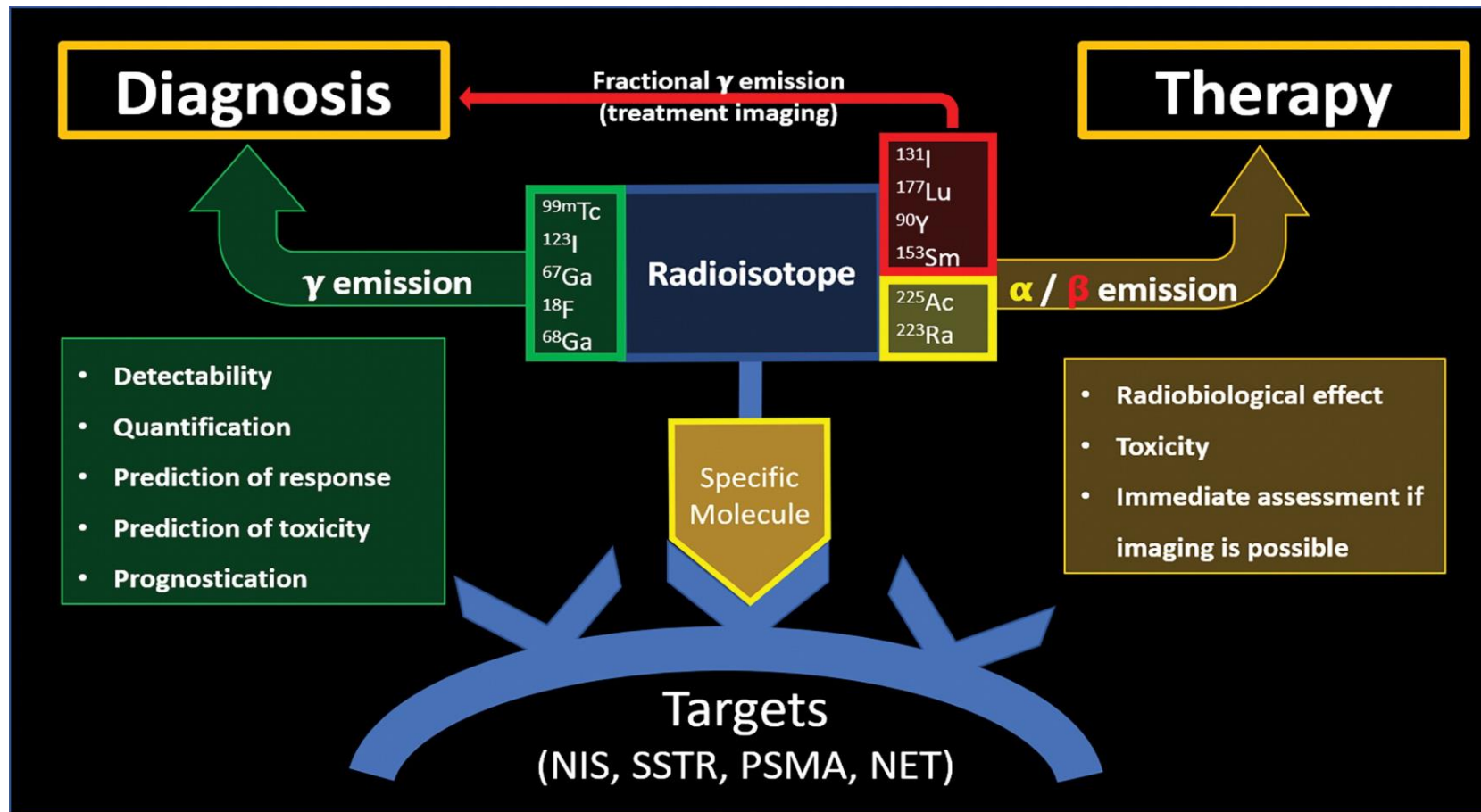
Sorgenti di energia per BATTERIE NUCLEARI

Oltre al **238- Pu** e **241-Am** :

**227-Ac** , **244-Cm**, **85-Kr**, **90-Sr**, **144-Ce** e **232-U**



# RADIOISOTOPI per MEDICINA NUCLEARE



# RADIOISOTOPI per TERAPIE e DIAGNOSTICA

## Tradizionali:

| Isotope | Radiation                    | Half life $T_{1/2}$ |
|---------|------------------------------|---------------------|
| Ra-226  | Average 0.83 MeV             | 1620 years          |
| Co-60   | 1.17 and 1.31 MeV            | 5.26 years          |
| Cs-137  | 0.66 MeV                     | 30 years            |
| Au-198  | 0.42 MeV                     | 2.7 days            |
| Ir-192  | 0.38 MeV                     | 73.8 days           |
| I-125   | 28 keV EC. $\gamma$ + x-rays | 60 days             |
| Pd-103  | 21 keV EC. x-rays            | 17 days             |
| Cs-131  | 29 keV EC. x-rays            | 9.7 days            |



**192-Ir** per brachiterapia

## Innovativi :

**125-I** : terapia del tumore della prostata

**90-Sr** : terapie cardiovascolari

**188-W/188-Re , 133-Xe, 32-P** : radiosorgenti

**99m-Tc** : diagnostica per immagini e radio-farmaci

**225-Ac** : radioimmunoterapia, terapia tumori

# 99m-Tc

**ISOMERO METASTABILE** del **99-Tc** (artificiale)

Caratteristiche chimico-fisiche-biologiche uniche - radionuclide più usato in medicina nucleare :

**1-Radiofarmaco**

**2) Tracciante**

**3) Agente in avanzate tecniche diagnostiche (SPECT, Single-Photon Emission Computed Tomography )**

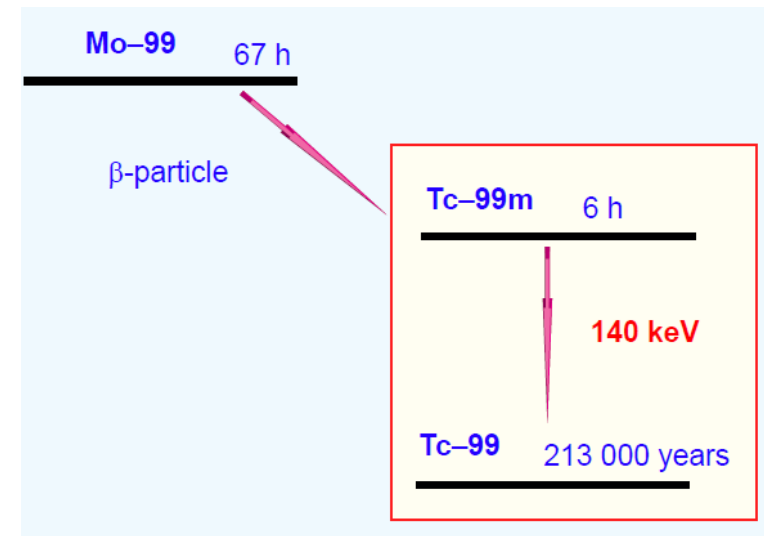
**99m-Tc** si ottiene da specifici cicli in reattori dedicati o in ciclotroni . Il precursore è il **99-Mo**

**99-Mo** è un prodotto di fissione presente nel combustibile esausto

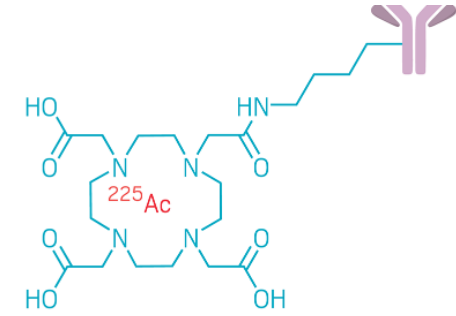
I vantaggi di una rapida estrazione/separazione del 99-Mo :

-Aumento della disponibilità di **99m-Tc** ( scarso, costoso)

-Eliminazione del **99-Tc** dal materiale da smaltire in discarica



## 225- Ac



Legato ad anticorpi o biomolecole viene indirizzato sul bersaglio  
Emette particelle-  $\alpha$  che distruggono le cellule maligne

La domanda di **225-Ac** sta crescendo ( 30 molecole in attesa di autorizzazione FDA )  
Disponibilità limitata : produzione in *proton cyclotron* e acceleratori lineari .

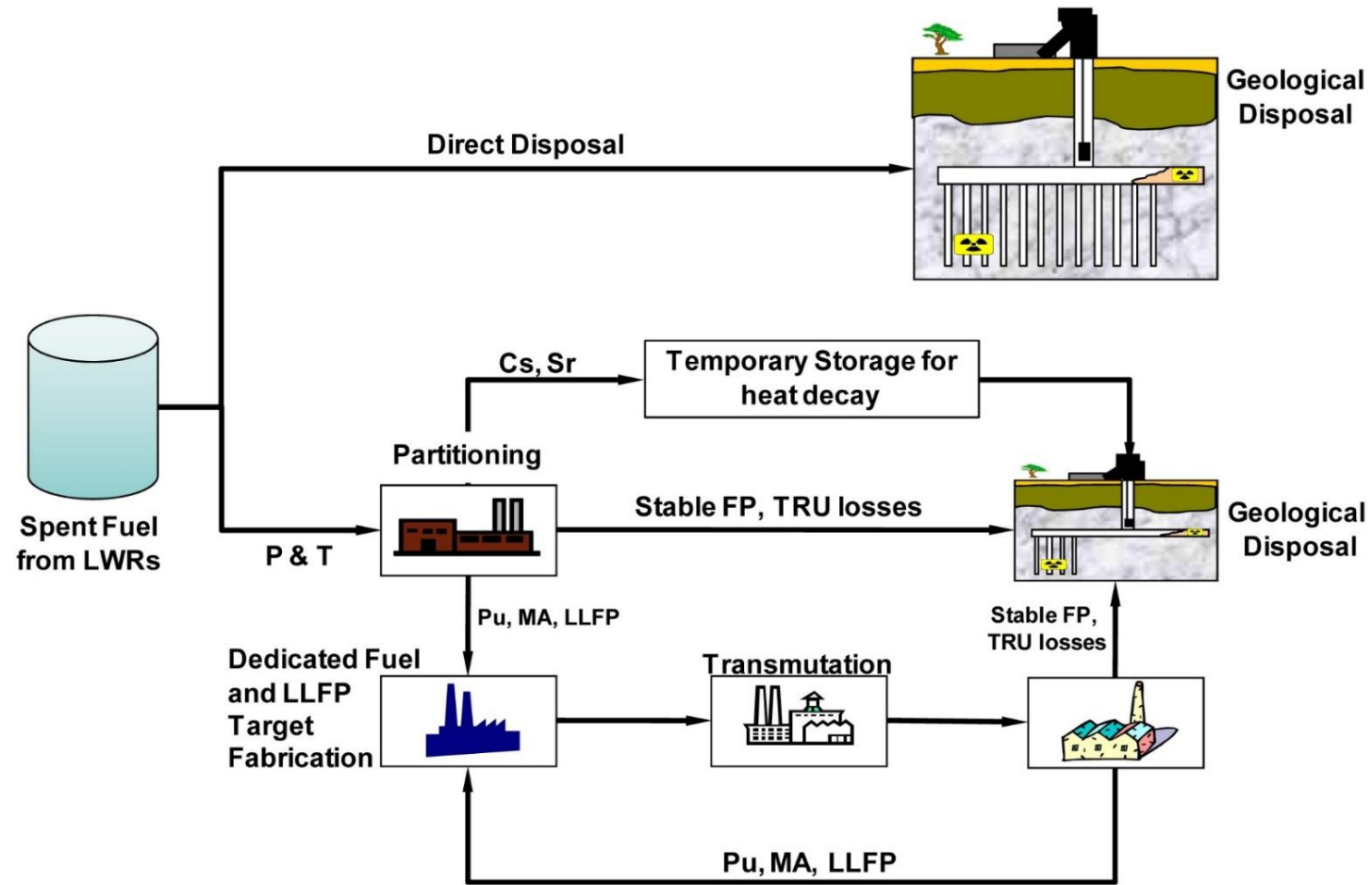
Estrazione da spent fuel:

**233-U** ( $\alpha$ )  $\rightarrow$  **229-Th** ( $\alpha$ )  $\rightarrow$  **225-Ac** ( $\alpha$ ,  $t_{1/2}$  10 d )



Oak Ridge National Laboratory :  
separazione del **225-Ac** dal **229-Th**

# LE STRATEGIE ATTUALI



## DAL PRESENTE ....

### OBIETTIVI di SICUREZZA

**SAFETY** – riduzione di quantità e pericolosità delle scorie da smaltire

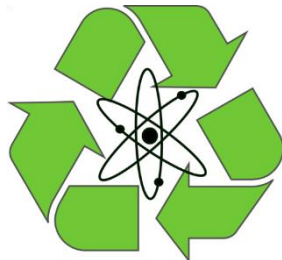
**SECURITY** - controllo degli isotopi fissili per prevenire atti terroristici e proliferazione nucleare

### OBIETTIVI di SOSTENIBILITA'

Parziale recupero degli isotopi fissili e loro riciclo  
Estrazione di elementi di interesse industriale

## ...AL FUTURO

Completo recupero del «VALORE NUCLEARE» contenuto nel combustibile irraggiato  
Riciclo del materiale fissile in reattori di nuova generazione  
Installazioni (ADS ?) idonee all'utilizzo di isotopi non-fissili ( $^{232}\text{Th}$ )  
Trattamenti avanzati per un «mining» efficiente di elementi/isotopi critici/strategici



**DA SCORIE ad OPPORTUNITA',**



GRAZIE per la vostra ATTENZIONE

Maria Letizia Terranova

[mleterranova@gmail.com](mailto:mleterranova@gmail.com)