



Agenzia Nazionale per le Nuove Tecnologie,  
l'Energia e lo Sviluppo Economico Sostenibile



*Ministero dello Sviluppo Economico*

## RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

# Rapporto sui processi di ritrattamento utilizzabili e progetto di massima di un impianto pilota

*M. Capone, N. Cherubini, A. Compagno, A. Dodaro*

RAPPORTO SUI PROCESSI DI RITRATTAMENTO UTILIZZABILI E PROGETTO DI MASSIMA DI UN  
IMPIANTO PILOTA

M. Capone, N. Cherubini, A. Compagno, A. Dodaro (ENEA)

Novembre 2011

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico – ENEA

Area: Governo, gestione e sviluppo del sistema elettrico nazionale

Progetto: Fissione nucleare: metodi di analisi e verifica di progetti nucleari di generazione evolutiva ad acqua pressurizzata

Responsabile Progetto: Massimo Sepielli, ENEA

**Titolo**

**RAPPORTO SUI PROCESSI DI RITRATTAMENTO  
UTILIZZABILI E PROGETTO DI MASSIMA DI UN IMPIANTO PILOTA**

**Descrittori**

Tipologia del documento: Rapporto tecnico

**Collocazione contrattuale:**

ACCORDO DI PROGRAMMA Ministero dello Sviluppo Economico – ENEA sulla Ricerca di Sistema Elettrico PIANO ANNUALE DI REALIZZAZIONE 2010 Progetto 1.3.2.a: Fissione nucleare: Metodi di analisi e verifica di progetti nucleari di generazione evolutiva ad acqua pressurizzata.

**Argomenti trattati:**

Ciclo del combustibile nucleare.

**Sommario**

Il ciclo del combustibile comprende tutto il complesso di attività necessarie per la produzione di energia elettronucleare e comprende tre fasi: quella a monte del reattore ("Front End"), quella in reattore ("Service Period") e quella a valle del reattore ("Back End").

La fase di "Back End" include tutte le operazioni effettuate sul combustibile esausto scaricato dal reattore, comprensive delle operazioni di trasporto, ritrattamento del combustibile irraggiato, nonché della gestione dei rifiuti radioattivi.

Lo scopo del riprocessamento del combustibile è quello di recuperare i materiali pregiati in esso presenti, ossia materiali fissili o fertili che, opportunamente trattati, possono essere utilizzati ancora una volta come combustibili.

Nel presente lavoro vengono illustrati i principali processi di ritrattamento del combustibile irraggiato con l'obiettivo di suggerire quali siano le più promettenti per un eventuale ritorno alla produzione di energia elettrica da fonte nucleare in Italia.


**Note**


Lavoro svolto in esecuzione dell'Obiettivo B, PAR2010

**Autori:** M. Capone, N. Cherubini, A. Compagno, A. Dodaro

Copia n.


In carico a:

2			NOME			
			FIRMA			
1			NOME			
			FIRMA			
0	EMISSIONE	30.11.2011	NOME	A. Dodaro	M. Ciotti	M. Sepielli
			FIRMA			
REV.	DESCRIZIONE	DATA		REDAZIONE	CONVALIDA	APPROVAZIONE

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	2	37

## INDICE

PREMESSA .....	3
1 CICLO DEL COMBUSTIBILE .....	4
1.1 Il Front End .....	4
1.2 Il Back End .....	6
2 IL RIPROCESSAMENTO DEL COMBUSTIBILE NUCLEARE .....	7
3 METODI IN FASE LIQUIDA .....	9
3.1 Il Processo PUREX (Plutonium Uranium Recovery by EXtraction) .....	11
3.2 Il Processo UREX (URanium EXtraction) .....	14
3.3 Il Processo TRUEX (TRans Uranium EXtraction) .....	14
3.4 Il Processo DIAMEX (DIAMide EXtraction) .....	15
3.5 Il Processo SANEX (Selective ActiNide EXtraction) .....	15
3.6 Il Processo UNEX (UNiversal EXtraction) .....	16
3.7 Processo Elettrochimico in soluzione alcalina .....	16
4. I METODI "A SECCO" .....	17
4.1 I processi pirometallurgici .....	17
4.2 Il processo "fluoride volatility" .....	19
5 METODI PIU' PROMETTENTI PER LA SITUAZIONE ITALIANA .....	20
6 INDIVIDUAZIONE DI FACILITIES DA ATTREZZARE PRESSO ENEA E PROGETTO DI MASSIMA .....	30
7 CONCLUSIONI .....	36
8 BIBLIOGRAFIA .....	37

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b> PAR2010-ENEA-LB2-009	<b>Rev.</b> 0	<b>Distrib.</b> L	<b>Pag.</b> 3	<b>di</b> 37
--	---	------------------	----------------------	------------------	-----------------

## PREMESSA

Il riprocessamento (o ritrattamento) del combustibile esausto è un processo atto a recuperare il materiale nucleare pregiato (U e Pu) che può essere riutilizzato nella fabbricazione del combustibile.

L'idea di riprocessare il combustibile scaricato dai reattori nucleari nasce dalla considerazione che questo contiene ancora una quantità di uranio sotto forma di  $^{235}\text{U}$ , che una volta separato potrà essere nuovamente utilizzato come combustibile. Inoltre il riprocessamento riduce la quantità di materiale radioattivo da stoccare in depositi geologici.

Considerato che nel panorama internazionale c'è una forte spinta verso il nucleare di quarta generazione, che, oltre ad utilizzare insieme all'uranio 235 anche il plutonio e gli attinidi minori, tende ad un ciclo chiuso del combustibile, un approccio serio e sistematico al tema del riprocessamento è necessario e non procrastinabile.

In questo documento è riportata una panoramica delle principali metodologie di riprocessamento del combustibile esausto, con l'obiettivo di suggerire quali siano le più promettenti per un eventuale ritorno alla produzione di energia elettrica da fonte nucleare in Italia.

## 1 CICLO DEL COMBUSTIBILE

Il ciclo del combustibile comprende tutto il complesso di attività necessarie per la produzione di energia elettronucleare e si suole dividere in tre fasi: quella a monte del reattore (“Front End”), quella in reattore (“Service Period”) e quella a valle del reattore (“Back End”).

La prima fase, riguardante la produzione del combustibile, comprende l’approvvigionamento di Uranio naturale, il suo arricchimento e la fabbricazione degli elementi di combustibile.

La seconda fase, quella in reattore, comporta la trasformazione del combustibile con formazione di prodotti di fissione e attinidi.

La terza fase riguarda lo stoccaggio e il ritrattamento del combustibile irraggiato e la gestione dei rifiuti radioattivi.

In Figura 1 è riportato uno schema semplificato di un possibile ciclo del combustibile nucleare.

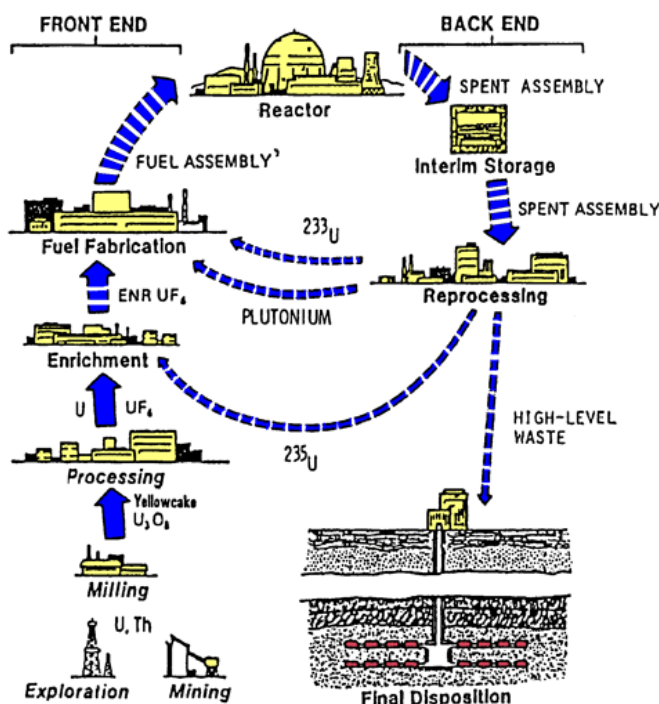



Figura 1: Schema del ciclo del combustibile nucleare

### 1.1 Il Front End

La fase di “Front End” comprende tutte quelle operazioni che vengono effettuate per realizzare gli elementi di combustibile da inserire nel reattore, dall’estrazione del minerale alla fabbricazione vera e propria degli elementi di combustibile:

#### a) Estrazione e trattamento dei minerali uraniferi

Per “estrazione mineraria dell’uranio” si intendono tutti quei processi che permettono di ricavare il minerale uranifero dalla crosta terrestre. Nelle miniere a cielo aperto tutto il materiale viene interamente rimosso dal sito tramite perforazione o brillamento per esporre il minerale all’aperto, che viene poi estratto e trasportato via dal sito

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	5	37

tramite autocarri. La successione dei trattamenti necessari per trasformare i minerali grezzi in prodotti di uso nucleare può essere ricondotta alle seguenti operazioni:

- Concentrazione del minerale grezzo: l'uranio, estratto dalla miniera viene macinato e polverizzato in mulini o frantoi. La soluzione, ottenuta in seguito ad attacco acido o alcalino a seconda della natura della ganga, viene trattata con resine scambiatrici di ioni o con metodi di estrazione con solvente. Il prodotto finale è per lo più costituito da diuranati di ammonio  $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ .
- Purificazione: consiste essenzialmente nella eliminazione, dai concentrati di Uranio, di quelle impurezze caratterizzate da apprezzabili sezioni d'urto di assorbimento dei neutroni. Il prodotto finale, noto con il nome di "Yellow Cake", è una miscela di uranati di Ca e Na, contenente il 65-95% di  $\text{U}_3\text{O}_8$  e mediamente il 75% di U. L' $\text{U}_3\text{O}_8$  è il prodotto fondamentale per le successive lavorazioni che si differenziano a seconda del tipo di reattore nucleare. Per i reattori che utilizzano come moderatore grafite o acqua pesante l' $\text{U}_3\text{O}_8$  viene convertito in uranio metallico sotto forma di barrette, inserite in una guaina metallica stagna (di alluminio o di lega di magnesio) che serve sia da contenitore dei prodotti di fissione che da protezione delle stesse. Per i reattori moderati a acqua leggera, per i quali è indispensabile arricchire l'uranio nell'isotopo pregiato  $^{235}\text{U}$  al fine di poter mantenere la reazione a catena, si rendono necessarie ulteriori manipolazioni.
- Conversione in materiale nucleare: l' $\text{U}_3\text{O}_8$  non ha ancora un grado di purezza sufficiente (per quanto riguarda l'assorbimento neutronico) per gli impieghi nucleari. Si rende quindi necessaria un'ulteriore raffinazione che comporta la trasformazione dell'uranio in  $\text{UO}_3$  e successiva riduzione a biossido di uranio  $\text{UO}_2$ , seguita poi dalla trasformazione in  $\text{UF}_4$ . La conversione finale in  $\text{UF}_6$  (esafluoruro di uranio), è necessaria dal momento che l' $\text{UF}_6$ , essendo l'unico composto gassoso dell'uranio su cui si può operare a temperature prossime a quelle ambiente, può essere facilmente sottoposto ai processi di arricchimento, che sono normalmente condotti in fase gassosa.

#### **b) Arricchimento in $^{235}\text{U}$**

Per ottenere un materiale fissile che sia adatto a scopi nucleari, cioè che emetta una quantità sufficiente di neutroni, è necessario aumentare la concentrazione dell'isotopo  $^{235}\text{U}$  rispetto all' $^{238}\text{U}$ . La concentrazione di  $^{235}\text{U}$  deve passare dallo 0,71% al 3,2% per i reattori nucleari ad acqua bollente (BWR), al 3,6% per quelli ad acqua pressurizzata (PWR), e al 4,2% per i reattori ad acqua in pressione della nuova generazione EPR, necessari per sostenere la reazione nucleare a catena.

Gli isotopi dell'uranio sono chimicamente indistinguibili, per questo le tecniche più comuni sfruttano la piccola differenza di peso (meno dell'1,5%) tra i due isotopi.


L'arricchimento in  $^{235}\text{U}$  può essere ottenuto con quattro diversi metodi: diffusione gassosa, centrifugazione, separazione per ugello e fotoionizzazione.

Ognuno di questi metodi sfrutta un processo fisico nel quale è possibile separare due nuclei aventi diversa massa, per aumentare la quantità di  $^{235}\text{U}$ .

Il processo di arricchimento produce grandi quantità di uranio impoverito, ossia uranio che contiene valori di  $^{235}\text{U}$  generalmente compresi tra lo 0,2% e lo 0,3 %.

#### **c) Fabbricazione degli elementi di combustibile**

La fabbricazione del combustibile è un processo fondamentale, dal momento che le caratteristiche di funzionamento del reattore sono strettamente legate al comportamento del combustibile.

	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	6	37

Essa comprende le seguenti fasi:

- chimica: operazioni che conducono alla preparazione delle pellets;
- meccanica: operazioni che comprendono la predisposizione dei tubi di guaina e dei tappi terminali, la loro saldatura e il successivo assemblaggio;
- di controllo: operazioni di verifica delle specifiche richieste.

La maggior parte dei processi di fabbricazione fa riferimento all'ossido di uranio,  $UO_2$ , come materiale fissile, e allo zircaloy o acciaio inossidabile come materiale incamiciante.

Con l' $UO_2$  si possono confezionare barrette molto sottili oppure, pastiglie cilindriche (diametro 8 mm, altezza 13 mm).

Il combustibile viene assemblato in elementi e caricato nel nocciolo del reattore. Il caricamento viene effettuato secondo una mappatura precisa, imposta dalla "neutronica" del reattore, in modo che gli elementi "freschi" (non irradiati) si alternino con elementi parzialmente irradiati (che hanno cioè erogato una parte del loro contenuto energetico).

## 1.2 Il Back End

La fase di "Back End" include tutte le operazioni effettuate sul combustibile esausto scaricato dal reattore, comprensive delle operazioni di trasporto, ritrattamento del combustibile irraggiato, nonché della gestione dei rifiuti radioattivi.

Il **trasporto** è una parte integrante del ciclo del combustibile nucleare: la maggior parte del materiale utilizzato nel combustibile nucleare viene trasportato diverse volte durante il ciclo. Dato che i materiali nucleari sono radioattivi, è importante garantire la limitata esposizione alle radiazioni sia a tutti coloro che sono implicati nel trasporto di tali materiali che alla popolazione lungo le vie di trasporto.

Poichè il combustibile irraggiato che viene scaricato dal reattore è altamente radioattivo, è necessario che venga adeguatamente schermato: viene prima depositato nelle vasche di centrale sotto battente d'acqua e lasciato raffreddare allo scopo di abbassare la sua potenza termica e permetterne il parziale decadimento radioattivo.


Il successivo trasporto dalla centrale avviene mediante appositi contenitori di acciaio, fortemente schermati, idonei a dissipare il calore residuo degli elementi di combustibile, schermare le radiazioni e prevenire eventuali fenomeni di criticità.

Gli elementi di combustibile, completato il periodo di irraggiamento nel reattore, possono essere sottoposti ad una serie di operazioni (**riprocessamento**) il cui scopo è quello di recuperare i materiali pregiati in esso presenti, ossia materiali fissili o fertili che, opportunamente trattati, possono essere utilizzati ancora una volta come combustibili.

Il combustibile esausto scaricato dai reattori, infatti, contiene quantità apprezzabili di materiali fissili ( $^{235}U$  e  $^{239}Pu$ ), fertili ( $^{238}U$ ), che possono essere separati chimicamente e recuperati dal combustibile esausto. L'uranio e il plutonio recuperati, se le condizioni economiche e istituzionali lo permettono, possono essere riciclati per l'utilizzo come combustibile nucleare.

La **gestione dei rifiuti radioattivi** comprende, infine, il complesso dei provvedimenti relativi alla raccolta, al trasporto, al trattamento o al condizionamento, all'immagazzinamento ed allo smaltimento finale dei rifiuti radioattivi. Una corretta gestione dei rifiuti deve naturalmente tener conto delle necessarie salvaguardie di protezione sanitaria e di tutela dell'ambiente.



 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	7	37

Tutte le operazioni che fanno parte del Back End, data l'elevata radioattività del materiale manipolato, devono essere condotte con tecniche cautelative di tipo "remotizzato", cioè con interposta barriera protettiva tra il materiale stesso e gli operatori.

## 2 IL RIPROCESSAMENTO DEL COMBUSTIBILE NUCLEARE

Per riprocessamento del combustibile nucleare si intendono i processi chimici che consentono la separazione del combustibile nucleare nelle sue principali componenti: uranio, plutonio ed attinidi minori dai prodotti di fissione.

Il combustibile utilizzato in un reattore ad acqua leggera, LWR, arricchito dal 2,5% al 3,3%, dopo 3÷4 anni di permanenza nel reattore, con un burn-up di circa 45 GWd/t, contiene approssimativamente:

96% di uranio (meno dell' 1% di questo è  $^{235}\text{U}$ );

3% prodotti di fissione;

0,9% plutonio (circa due terzi fissile,  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ );

0,1% attinidi minori (americio, curio, nettunio).

Il combustibile esaurito può essere, quindi, utilizzato per recuperare materiali fissili e fertili, al fine di fornire combustibile fresco per le attuali e future centrali nucleari. In pratica il combustibile esaurito di una centrale da 1000 MWe che opera per 40 anni contiene combustibile nucleare utilizzabile per circa 300 tonnellate, equivalenti a 100 milioni di barili di petrolio o 30 milioni di tonnellate di carbone.


I vantaggi del riprocessamento sono:

- da un punto di vista energetico il riprocessamento consente un utilizzo più efficiente del combustibile. Il riutilizzo del plutonio è limitato sostanzialmente alla realizzazione di combustibile MOX (Mixed Oxide Fuel), ovvero combustibile misto uranio plutonio composto da una miscela di ossidi di uranio e plutonio.

Limitandoci a considerare i reattori ad acqua leggera, il ritrattamento del combustibile consente il recupero di circa 6 kg di plutonio fissile per tonnellata di combustibile. Un singolo impianto di ritrattamento da 1500 t/anno rimette in ciclo una quantità di combustibile nucleare equivalente a 50 milioni di tonnellate di petrolio all'anno.

- Sebbene oggi il costo del combustibile MOX sia superiore al costo del combustibile tradizionale, molti Paesi hanno deciso ugualmente la sua utilizzazione per motivi essenzialmente politici. Le crisi petrolifere degli anni '60 e '70 hanno mostrato come il prezzo di una risorsa non sia fissato solo dalla richiesta ma anche dalla politica adottata dallo Stato fornitore. Al momento c'è abbondante disponibilità di uranio ed il suo prezzo è contenuto ma, poiché le miniere si trovano solo in alcuni Stati, potrebbe manifestarsi un improvviso aumento dei prezzi. Il riprocessamento consente di mantenere prezzi stabili in quanto fornisce una alternativa alle riserve di minerali di uranio.

Anche se attualmente gli impianti di riprocessamento sono presenti solo in alcuni Stati, è probabile che in futuro tutti i Paesi che producono energia per via nucleare siano costretti ad adottare il ciclo chiuso al fine di mantenere il costo dell'energia competitivo.

	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	8	37

- Il riprocessamento consente, inoltre, di limitare il volume di rifiuti radioattivi. Come sopra detto, i prodotti di fissione costituiscono solo il 3% del combustibile esausto, per cui una loro separazione permette di ridurre notevolmente il volume dei rifiuti ad alta attività che devono essere immagazzinati. In effetti anche un impianto di riprocessamento produce rifiuti radioattivi dovuti alla lavorazione, ma gli impianti attualmente in funzione hanno mostrato come sia possibile arrivare a ridurre il volume delle scorie nucleari al 25% di quello del combustibile esausto .

I processi di ritrattamento possono dividersi in due grandi categorie:

- processi per via umida;
- processi per via secca.

Alla prima categoria appartengono tutti i processi che comportano una solubilizzazione del combustibile irraggiato in soluzioni acquose di acidi minerali, seguita da una separazione selettiva dei diversi componenti.

I principali processi per via umida sono elencati di seguito:

- il metodo **PUREX** (**Plutonium URanium EXtraction**) è un processo tecnologico di recupero di uranio e plutonio dal combustibile nucleare esausto basato sull'estrazione liquido-liquido;
- il metodo **UREX** (**URanium EXtraction**) è una versione modificata del processo PUREX che impedisce il recupero del plutonio ai fini di non proliferazione;
- il metodo **TRUEX** (**TRans URanium EXtraction**), sviluppato in USA, estrae sali di attinidi e lantanidi con una buona efficienza a partire dai rifiuti ad attività elevata;
- il metodo **DIAMEX** (**DIAMide EXtraction**), sviluppato in Francia, estrae sali di attinidi e lantanidi dai rifiuti, con una buona efficienza senza generare a sua volta rifiuti.


Il ritrattamento per via secca comprende i processi pirometallurgici e i processi per volatilizzazione, in cui il combustibile viene estratto mediante leghe e sali inorganici a temperatura elevata o trasformandolo in composti volatili.

I processi a secco sono stati messi a punto in USA e possono essere divisi in due grandi categorie:

- processi pirometallurgici, nei quali il combustibile è estratto selettivamente da fasi liquide metalliche e saline;
- processi per volatilizzazione, nei quali il combustibile è ritrattato mediante trasformazione dei componenti in composti volatili.

Il processo di piroraffinamento può essere usato su combustibile irraggiato con burnup molto alti e con brevi tempi di permanenza nelle piscine di raffreddamento. Il metodo si basa sulla separazione degli elementi mediante un processo di elettrorefinamento, in cui il combustibile è tritato e sospeso in appositi contenitori immersi in bagni di sali fusi nei quali si fa fluire una corrente elettrica.

Molti degli elementi contenuti nel combustibile esaurito, tra i quali uranio, transuranici, attinidi minori e prodotti di fissione si dissolvono nel sale. Mentre la maggior parte dei prodotti di fissione rimangono nel bagno di sale, uranio e transuranici sono rimossi dalla corrente elettrica depositandosi sui catodi del circuito. Attraverso la modulazione dell'intensità della corrente elettrica è possibile fare in modo che sul catodo si depositino specifici elementi. Al termine della fase di estrazione degli elementi dal

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	9	37

combustibile irraggiato, contenuti nel bagno, si rimuovono i catodi e si procede alla estrazione del materiale in essi addensato, per le fasi successive di stoccaggio o di trasmutazione.

La stabilità alla radiazione dei fluoruri rende i processi per volatilizzazione metodi particolarmente adatti per il riprocessamento di combustibile nucleare irraggiato con brevi periodi di raffreddamento.

La separazione dell' $UF_6$  dal  $PuF_6$  è basata sulle differenze nella loro stabilità termodinamica. Il processo è stato sviluppato nei primi anni 1960 negli Stati Uniti e presso l'ex Unione Sovietica.

### 3 METODI IN FASE LIQUIDA

Dopo un periodo di immagazzinamento nelle piscine di raffreddamento in cui si ha il decadimento dei prodotti di fissione a breve vita, gli elementi di combustibile irraggiato sono trasportati dal reattore all'impianto di riprocessamento.

Un tipico impianto di riprocessamento di tipo estrattivo in fase liquida prevede che gli elementi di combustibile siano tagliati in spezzoni o piccoli pezzi per facilitare il loro scioglimento in acido nitrico a circa  $80^{\circ}C$ . Queste due fasi (taglio e dissoluzione) comportano il rilascio di gas radioattivi che, dopo essere stati opportunamente trattati, vengono rilasciati nell'atmosfera. La soluzione acida che si ottiene dalla dissoluzione dei pezzi di combustibile passa alla fase di estrazione con solvente organico dove si separano uranio, plutonio e i prodotti di fissione in soluzione.

Le fasi successive generalmente sono:

- a. concentrazione della soluzione acquosa contenente i prodotti di fissione in modo da ridurre il volume;
- b. purificazione delle soluzioni contenenti i nitrati di plutonio e di uranio con un processo di estrazione con solvente. Con successivi processi chimici si cerca di eliminare particolari impurezze come rutenio, zirconio, niobio e rodio che, a causa delle loro proprietà anfotere, risultano difficili da precipitare;
- c. trasformazione del plutonio in soluzione ad ossido  $PuO_2$  sotto forma di polvere. L'uranio viene invece trasformato in  $UF_6$  per poter poi subire il successivo processo di arricchimento.

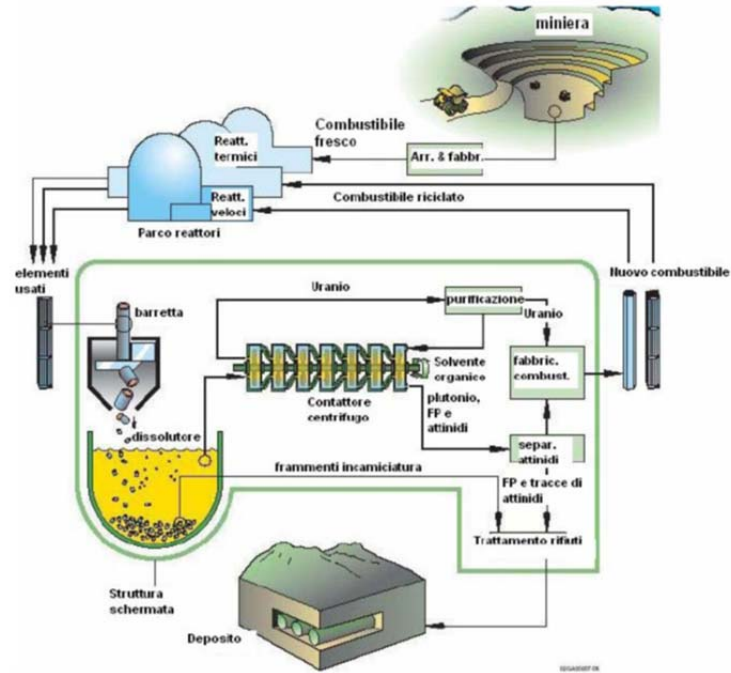


Fig. 3.1 Ciclo del combustibile con trattamento in fase acquosa del combustibile irradiato

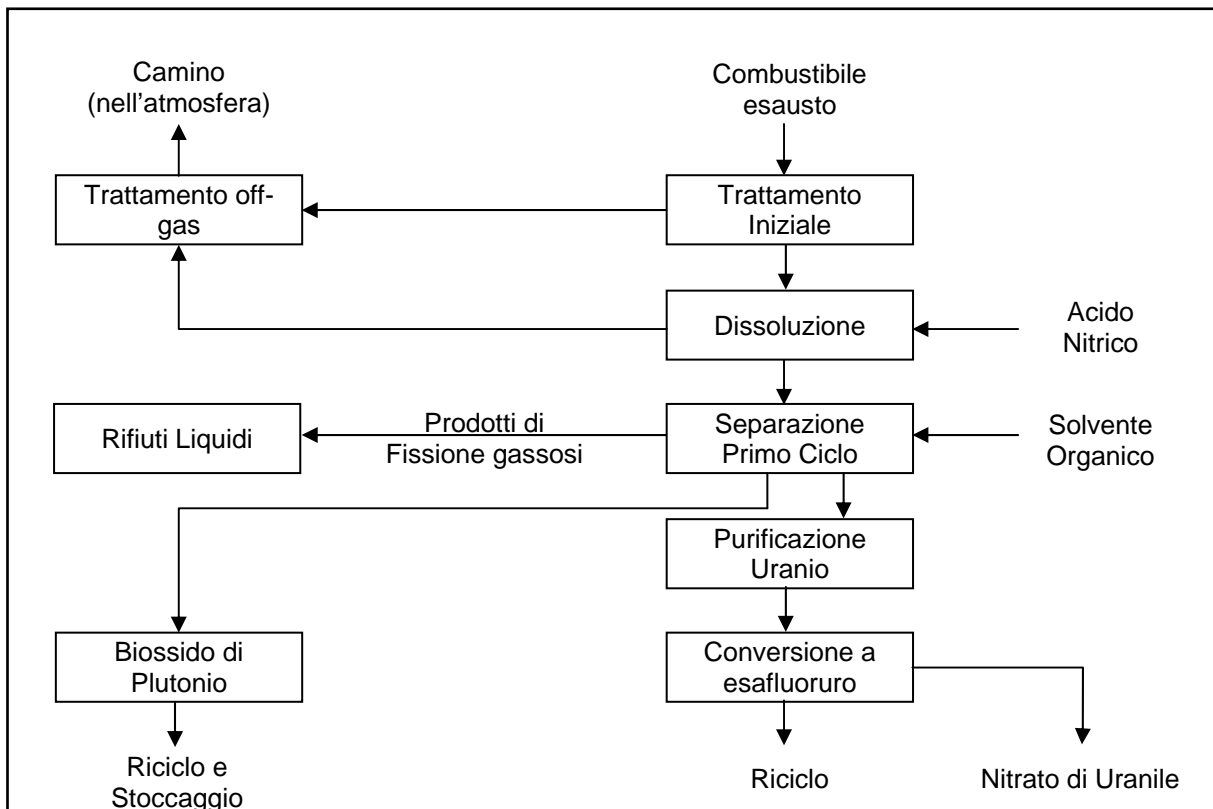



Fig. 3.2 Diagramma di flusso di un tipico impianto di riprocessamento in fase acquosa

	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	11	37

La scelta del solvente organico influenza enormemente la resa di un impianto di riprocessamento. La proprietà più importante è costituita dalla selettività, cioè la capacità del liquido organico di estrarre dalla soluzione un particolare componente. Si definisce fattore di separazione  $\alpha$ , il rapporto tra il coefficiente di distribuzione  $D$  della specie richiesta e quello della specie non desiderata, ossia:

$$\alpha = \frac{D_{\text{prodotto}}}{D_{\text{impurezza}}}$$

essendo il coefficiente di distribuzione dato da:

$$D = \frac{X_{\text{org}}}{X_{\text{acq}}}$$

in cui  $X_{\text{org}}$  è la concentrazione del componente nella fase organica e  $X_{\text{acq}}$  è la concentrazione del componente nella fase acquosa.


Un buon solvente deve avere un elevato valore del coefficiente di distribuzione  $D$  per il componente che si vuole estrarre, ed un basso valore del coefficiente  $D$  per le impurezze, al fine di ottenere un elevato fattore di separazione  $\alpha$ .

Altre caratteristiche importanti sono:

1. il solvente organico deve essere immiscibile nella soluzione acquosa da sottoporre all'estrazione. Normalmente si impiegano solventi la cui solubilità in acqua raggiunge al massimo il 2%;
2. il solvente deve avere un'ottima stabilità chimica per non interagire con i reagenti impiegati nel processo di estrazione. In particolare deve resistere all'azione degli agenti ossidanti e riducenti ed essere stabile sotto l'azione degli intensi campi di radiazione  $\beta$  e  $\gamma$  provenienti dai prodotti di fissione;
3. per poter separare le due fasi occorre che esse abbiano una diversa densità. Ad esempio, il TBP (tri-n-butilfosfato) ha una densità molto prossima a quella dell'acqua, per cui è necessario usare sostanze più leggere quali diluenti (come ad esempio etere butilico o kerosene);
4. la tensione interfase tra solvente e soluzione acquosa deve essere sufficientemente alta per impedire la formazione di un'emulsione stabile che ostacolerebbe la separazione delle due fasi;
5. la viscosità del solvente deve essere la più bassa possibile per limitare il lavoro di pompaggio;
6. il solvente deve essere facilmente reperibile a basso costo ed essere recuperabile in modo semplice tramite distillazione.

### 3.1 Il Processo PUREX (Plутonium Uranium Recovery by Extraction)

Il processo PUREX è un tipico processo di estrazione con solvente organico. Generalmente il metodo dell'estrazione con solvente organico viene applicato per la separazione dei componenti di una soluzione acquosa mediante un liquido organico non miscibile con l'acqua. E' importante che almeno uno dei componenti sia molto più solubile degli altri nella fase organica scelta. Ponendo in contatto il solvente con la

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	12	37

soluzione, il componente da estrarre tende a distribuirsi tra i due liquidi in funzione della sua solubilità relativa nelle due fasi, ossia in base al suo coefficiente di ripartizione in quelle due fasi immiscibili. Di conseguenza il processo di estrazione con solvente necessita di più fasi di estrazione. L'efficienza migliora se le varie fasi estrattive vengono fatte avvenire in controcorrente. Uno dei principali vantaggi sta nel fatto che, trattando soluzioni liquide in controcorrente, il processo può funzionare in regime permanente e, lavorando con sostanze altamente radioattive, è possibile spingere al massimo l'automazione del processo.

Il processo idrometallurgico PUREX attualmente risulta essere il più consolidato ed il più diffuso. Esso si basa generalmente sulla dissoluzione degli elementi di combustibile in acido nitrico, ottenendo una soluzione di nitrati di uranio, plutonio e prodotti di fissione. A questa soluzione viene aggiunto nitrato di sodio per portare il Plutonio nello stato di ossidazione (IV), specie questa più facilmente estraibile dal TBP. L'Uranio ed il Plutonio tetravalenti vengono a questo punto separati dalla miscela per estrazione con tri-n-butilfosfato (TBP, *tri-n-butilfosfato*) insieme ad una miscela di idrocarburi alifatici (tipo kerosene) quale diluente per la fase organica. Restano invece nella fase acquosa gli Attinidi Minori (MA, *Minor Actinides*) quali nettunio, americio e curio, oltre ai vari prodotti di fissione. In realtà nel processo PUREX di tipo standard, il Nettunio viene parzialmente estratto dal TBP. Nei processi PUREX modificati, invece, il Nettunio viene completamente ossidato da Np(V) ad Np(VI), facilmente estraibile con TBP. Allo stesso modo nei processi PUREX avanzati anche gli altri attinidi minori vengono separati, oltre ai prodotti di fissione ed alcuni lantanidi.

I prodotti gassosi come  $^{85}\text{Kr}$  e  $^{129}\text{I}$  vengono espulsi dalla linea "off-gas" durante la fase di dissoluzione con acido nitrico.

Successivamente viene condotta la separazione di uranio e plutonio. La separazione viene operata tramite un'estrazione con una soluzione acquosa di sali di ferro(II), che riducono il plutonio allo stato di ossidazione (III) rimuovendolo dalla fase organica. In una seconda zona dell'impianto avviene la purificazione della soluzione di plutonio per estrazione con della soluzione organica fresca.

La fase organica da cui è stato estratto il plutonio, che ora contiene principalmente il complesso di uranio, viene quindi lavata con acido nitrico diluito; l'uranio passa nella fase acquosa, mentre la fase organica si avvia ad essere riciclata per essere impiegata in una nuova estrazione.

A questo primo ciclo di separazione ne segue generalmente un secondo (ed in alcuni impianti anche un terzo, detto di *affinaggio*) allo scopo di allontanare ulteriormente le tracce dei prodotti di fissione e del plutonio residuo e aumentare la purezza dell'uranio recuperato.

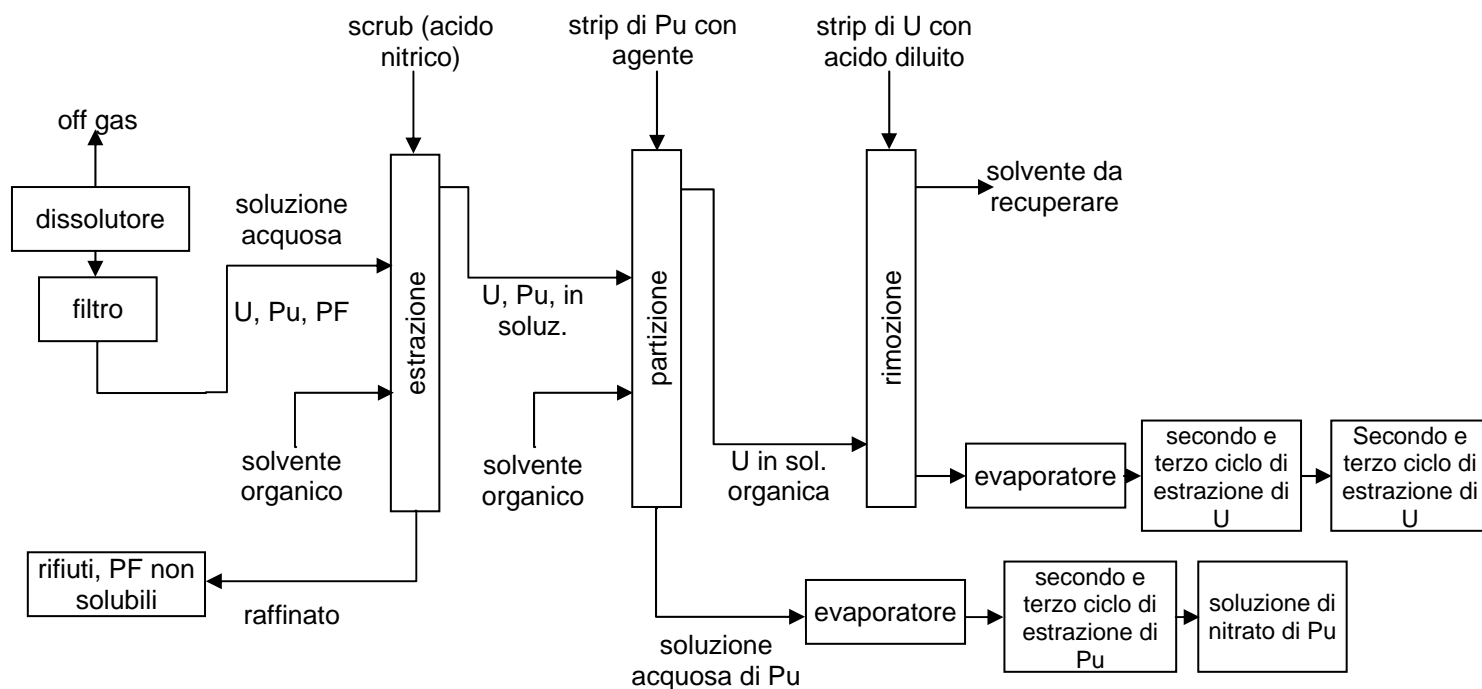



Figura 3.3 Diagramma del processo PUREX.

Nella Figura 3.3 viene schematizzato un tipico processo PUREX. La soluzione di alimentazione entra nella parte centrale della prima colonna ("estrazione") mentre dal basso entra il solvente che, salendo verso l'alto, estrae i nitrati di Plutonio e Uranio. Nella parte alta si ha il cosiddetto "lavaggio", ossia l'acido nitrico scendendo verso il basso trasporta i prodotti di fissione che si trovano nel solvente. Dalla parte bassa della colonna escono i prodotti di fissione in soluzione acida. Nella seconda colonna ("partizione") avviene la separazione tra sali di uranio e sali di plutonio. La soluzione con solvente uscente dalla prima colonna entra a metà della seconda mentre dall'alto scende acido nitrico a più bassa concentrazione più un agente riducente (nitrato di sodio), che ha il compito di far passare il plutonio dallo stato di ossidazione (IV) allo stato di ossidazione (III). Il solvente organico che entra dal basso trasporta con sé l'uranio, mentre l'acido nitrico che scende porta con sé il plutonio non più solubile nel solvente.

Nell'ultima colonna ("rimozione") si hanno il trasferimento dell'uranio in soluzione acquosa ed il recupero del solvente. Infatti nella parte alta della colonna viene introdotto acido fortemente diluito che, discendendo, trasporta con sé l'uranio. In uscita si ha solvente che necessita di essere distillato per rientrare nel ciclo e nitrato di uranile,  $UO_2(NO_3)_2$ , in soluzione acquosa.

A questo punto sarà necessaria una serie di processi chimici per ottenere sia  $UO_2$  (o  $UF_6$ ) che  $PuO_2$ , nei casi in cui non si utilizzino direttamente i nitrati.

	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	14	37

### 3.2 Il Processo UREX (URanium EXtraction)

Il processo UREX è una versione modificata del PUREX in cui non è previsto recuperare plutonio allo stato puro. Questo metodo può essere usato anche per estrarre altri prodotti di fissione come lo iodio attraverso processi di volatilizzazione, e il tecnezio attraverso processi elettrolitici.

In questo processo uranio e tecnezio vengono co-estratti per mezzo di TBP da una soluzione di acido nitrico contenente il combustibile esausto proveniente da reattori LWR (Light Water Reactor). Alla soluzione viene aggiunto l'acido acetil-idrossammico (AHA) che impedisce l'estrazione di plutonio e trattiene alcuni prodotti di fissione (per esempio Mo, Zr, Ru) che potrebbero contaminare la fase organica. Successivamente il tecnezio viene estratto utilizzando una fase acquosa molto acida mentre l'uranio rimane nella fase organica per poi essere recuperato. Lo iodio, rilasciato sotto forma di gas nella fase di dissoluzione del combustibile esausto, viene invece separato tramite filtrazione. L'efficienza di separazione dell'uranio è del 99.9%, mentre per il tecnezio è del 95%. I rifiuti liquidi derivanti da tale processo contengono tutti gli elementi transuranici e i prodotti di fissione nonché elementi volatili o gassosi (iodio, xenon e kripton).

A partire da questo sistema è stato sviluppato un processo denominato UREX+ che per mezzo di cinque step di estrazione consente di:

1. separare Tc e U (processo UREX classico);
2. separare Cs e Sr (con efficienza almeno del 97%);
3. separare Pu e Np (con efficienza almeno del 99%);
4. separare Am, Cm e prodotti di fissione di terre rare (TRUEX);
5. separare Am e Cm (con efficienza superiore al 99.5%) dai prodotti di fissione (CYANEX).

Tale sistema presenta il vantaggio di poter separare tecnezio e iodio, elementi abbastanza volatili, e ottenere uno stoccaggio più sicuro degli elementi di combustibile esausti.

L'uranio è separato in forma di  $U_3O_8$  per essere riutilizzato o stoccato come rifiuto LLW (Low Level Waste). Np e Pu sono utilizzabili per la produzione di combustibile MOX, Am e Cm possono essere trasmutati ed essere utilizzati come combustibile per reattori veloci ed i restanti radionuclidi possono essere stoccati nei depositi. Tutti questi processi però, pur mostrando numerosi vantaggi, presentano due problemi principali: nei reagenti sono contenute molecole poco resistenti al danneggiamento causato dalla radiazione ionizzante (che provoca la radiolisi delle molecole organiche). Inoltre, a causa della necessità di aggiungere diversi cicli per la separazione dei vari radionuclidi, si generano grandi quantità di rifiuti secondari da gestire.

### 3.3 Il Processo TRUEX (TRans Uranium EXtraction)

Sviluppato agli inizi degli anni '80 nel laboratorio ANL (Argonne National Laboratory, Illinois) questo processo consente di separare efficientemente gli An(III) (Attinidi) e Ln(III) (Lantanidi) dai rifiuti ad alto livello di radioattività provenienti da reattori nucleari. Questo processo utilizza un derivato di un fosfato ossido, CMPO (normal-octil-fenil-diisobutil-carbamioil-metil-fosfin-ossido), per co-estrarre gli An(III) e Ln(III) da una soluzione di acido nitrico. E' possibile dunque applicare questa procedura direttamente ai rifiuti provenienti dal processo di estrazione PUREX.



Il metodo TRUEX presenta, però, numerose controindicazioni:

1. alcuni dei prodotti di degradazione radiolitica del solvente scambiano cationi in soluzione e quindi impediscono la separazione di An(III) e Ln(III);
2. U(VI) e Pu(IV) presentano un'alta affinità con il composto CMPO e sono difficilmente estraibili dal solvente;
3. il volume dei rifiuti secondari è grande;
4. è difficile separare i lantanoidi dagli attinoidi minori.

### 3.4 Il Processo DIAMEX (DIAMide EXtraction)

Questo processo vede le sue origini nel Regno Unito e Francia a partire dagli anni '90. E' basato sull'utilizzo di estraenti a base di malonammide che sono totalmente inceneribili. Viene usato come reagente DDMBTDMA (di-metil-di-butiltetradecil-malonammide) in una soluzione con un solvente alifatico. Il Processo DiameX presenta il vantaggio di non produrre rifiuti secondari solidi perché, dopo l'estrazione, essi vengono distrutti totalmente tramite incenerimento, producendo solo diossido di carbonio ed acqua.

### 3.5 Il Processo SANEX (Selective Actinide EXtraction)

Il Processo SANEX opera una separazione selettiva dei radionuclidi a lunga vita (Americio e Curio). Al fine di permettere che gli Attinidi possano essere riutilizzati sia come sorgenti impiegate nell'industria sia come combustibile per reattori veloci, è necessario rimuovere i Lantanidi dalla soluzione raffinata proveniente da processi estrattivi quali PUREX, DIAMEX e similari. Infatti, a causa delle loro elevate sezioni d'urto di assorbimento neutronico, i Lantanidi costituiscono una sorta di "veleno" per le reazioni nucleari indotte. Un diagramma tipico per un processo SANEX accoppiato ad uno estrattivo principale viene descritto in Fig. 3.4

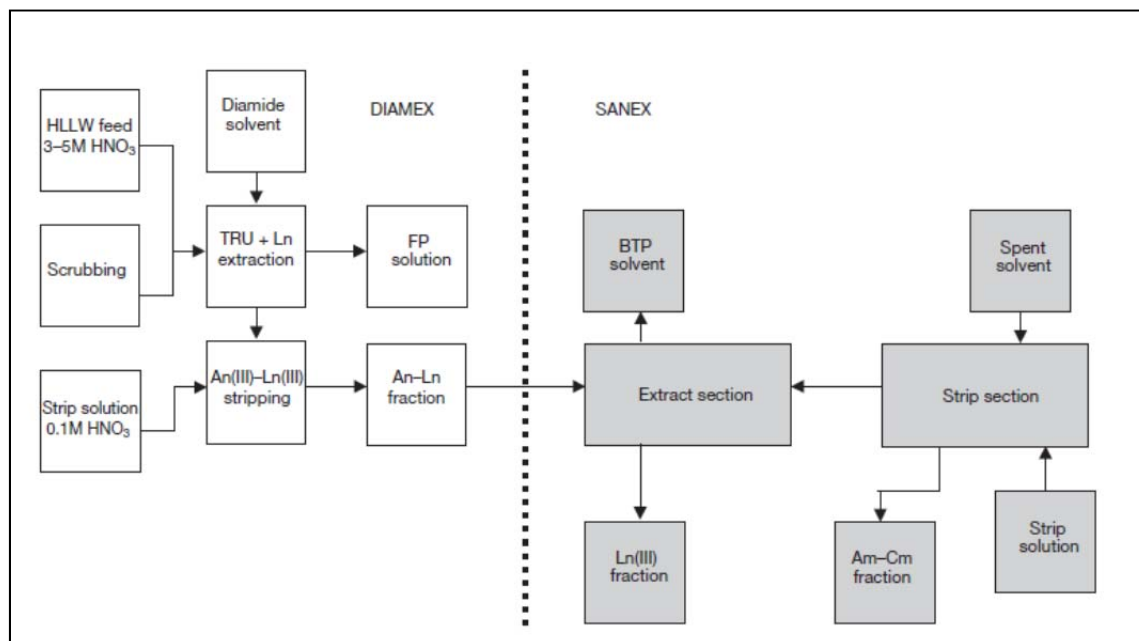


Fig. 3.4 Schema tipico di un processo accoppiato DIAMEX-SANEX

Attualmente diversi gruppi di ricerca stanno lavorando al fine di sviluppare un efficiente sistema di separazione An(III)/Ln(III) del tipo SANEX.

Un gruppo di ricerca operante presso il CEA (Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives), organismo francese di ricerca scientifica, ha raggiunto ottimi risultati utilizzando bis-triazinil pyridine (BTPs).

### 3.6 Il Processo UNEX (UNiversal EXtraction)

Sviluppato in Russia e nella Repubblica Ceca, questo processo è stato ideato per rimuovere la maggior parte dei radionuclidi problematici (Sr, Cs ed MA) dalle soluzioni estrattive raffinate in uscita dagli impianti di estrazione dell'Uranio e Plutonio da combustibile esausto. La chimica di tale processo si basa essenzialmente sulle interazioni fra Cs e Sr con polietilenossido e l'anione cobalto-carborano (noto anche come anione dicarbollil-cobalto). In questo processo gli Attinidi vengono estratti con CMPO in nitrobenzene quale solvente polare aromatico. Vengono altresì utilizzati differenti diluenti come il m-difluoro-nitrobenzene (ossia 1-nitro-3-(trifluoromethyl) benzene) oppure il fenil-trifluorometil sulfone.

### 3.7 Processo Elettrochimico in soluzione alcalina

Questo tipo di riprocessamento si basa sulla dissoluzione del combustibile esausto sottoforma di pellets di  $UO_2$  in una soluzione acquosa di carbonato. Cio' è reso possibile grazie ad un'ossidazione anodica con conseguente formazione di carbonato-complexi dello ione uranile. Questi prodotti sono abbastanza stabili in soluzione, mentre i prodotti di fissione FP e gli attinidi minori MA precipitano come idrossidi o carbonati insolubili. Un tipico impianto di riprocessamento di questo tipo è illustrato in Fig. 3.5.

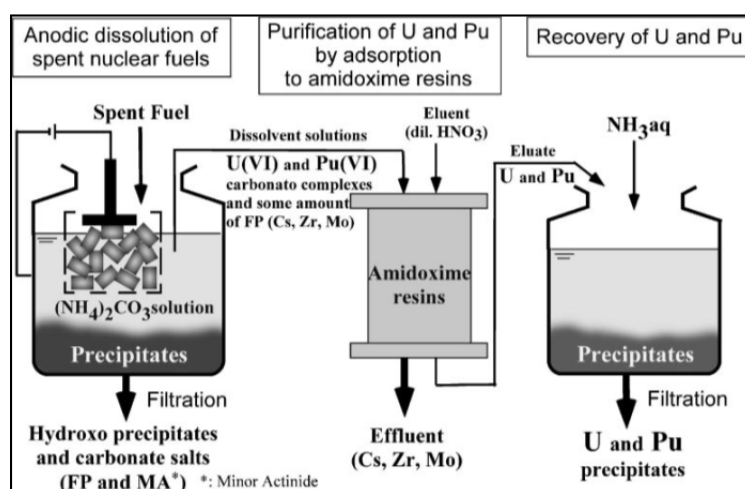



Fig. 3.5 Esempio di impianto di riprocessamento elettrochimico in soluzione alcalina

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	17	37

In questo tipo di processo la dissoluzione anodica del combustibile e la separazione dei prodotti di fissione per precipitazione avviene contemporaneamente. L'uranio ed il plutonio presenti in soluzione vengono successivamente adsorbiti su resine di amidossime. In seguito, per passaggio di acido nitrico  $\text{HNO}_3$  attraverso queste resine, si eluiscono U e Pu e recuperati per precipitazione dopo aggiunta di  $\text{NH}_3$  in soluzione.

## 4. I METODI “A SECCO”

I componenti a lunga-vita di un rifiuto HLW (High Level Waste) possono essere trattati mediante processi cosiddetti “a secco”. Questi processi in genere possono essere articolati in un unico *step* o più stadi combinati tra loro.

Essi sono di vario tipo e si basano su diverse proprietà chimico-fisiche come ad esempio:

- volatilizzazione;
- estrazione liquido-liquido in sali fusi;
- elettrorefinazione in mezzi non-acquosi;
- distillazione sotto-vuoto;
- cristallizzazione frazionata;
- fusione “a zone”;
- reazioni gas-solido.

Solitamente tutti questi processi avvengono ad alte temperature e comunque in assenza di acqua.

Gli obiettivi principali dei processi “per via secca” nell’ambito del trattamento dei rifiuti radioattivi sono principalmente:

- i) l'estrazione selettiva di uranio, plutonio ed attinidi minori (Np, Am, e Cm),
- ii) riduzione della perdita di elementi rilevanti nei vari stadi,
- iii) produzione di un minor quantitativo di rifiuti rispetto al PUREX e altri in fase acquosa.

I vantaggi sostanziali di questi processi “a secco” sono il fatto di poter trattare i rifiuti ad alta attività nell’arco di un tempo relativamente breve (in media pochi mesi) rispetto al processo PUREX, che richiede tempi minimi di 5 anni, e di generare modesti volumi di rifiuti.

La difficoltà di separare i singoli transuranici, la necessità di operare ad elevate temperature ed in atmosfere controllate ad elevata purezza, nonché la difficoltà di poter sviluppare operazioni “in continuo”, costituiscono i principali svantaggi di queste tecniche.

### 4.1 I processi pirometallurgici

Tra i principali metodi “a secco” emergono i cosiddetti piroprocessi o processi pirometallurgici. Questi processi si basano sia sull'utilizzo di Sali fusi quali cloruri o fluoruri (e.g.  $\text{LiCl}+\text{KCl}$  o  $\text{LiF}_2+\text{CaF}_2$ ) sia metalli fusi come cadmio, bismuto o alluminio. Essi vengono applicati su combustibili metallici piuttosto che su ossidi.

Questi processi assumono particolare rilevanza in previsione del trattamento di combustibili provenienti da Reattori di IV Generazione.

I metodi elettrometallurgici o “piroprocessi” possono facilmente essere impiegati per combustibili con alto burn-up e senza lunghi tempi di attesa per il raffreddamento degli stessi, come spesso è necessario per i processi idrometallurgici (PUREX e similari). Tuttavia questi processi non sono ancora ben sviluppati a differenza di quelli idrometallurgici che sono già operativi.

La separazione degli attinidi (partitioning) contenuti nel bagno di sale fuso avviene per elettrodeposizione su un catodo metallico. Questo implica che tutti gli ioni positivi contenuti nel bagno si depositino sul catodo senza possibilità di alcuna separazione chimica degli elementi pesanti, come invece avviene nei processi PUREX. Questo comporta il vantaggio di non poter separare il plutonio individualmente, in accordo con il Trattato di Non Proliferazione che stabilisce un quadro di riferimento per regolare il commercio internazionale di materiali, tecnologie, impianti destinati alle applicazioni pacifiche dell’energia nucleare, e per assicurare controlli e salvaguardie atti ad evitare la proliferazione nucleare “orizzontale”, ossia l’aumento del numero di Paesi dotati di capacità nucleari militari.

In Fig. 4.1 viene descritto un tipico impianto pirometallurgico con le varie fasi del processo.

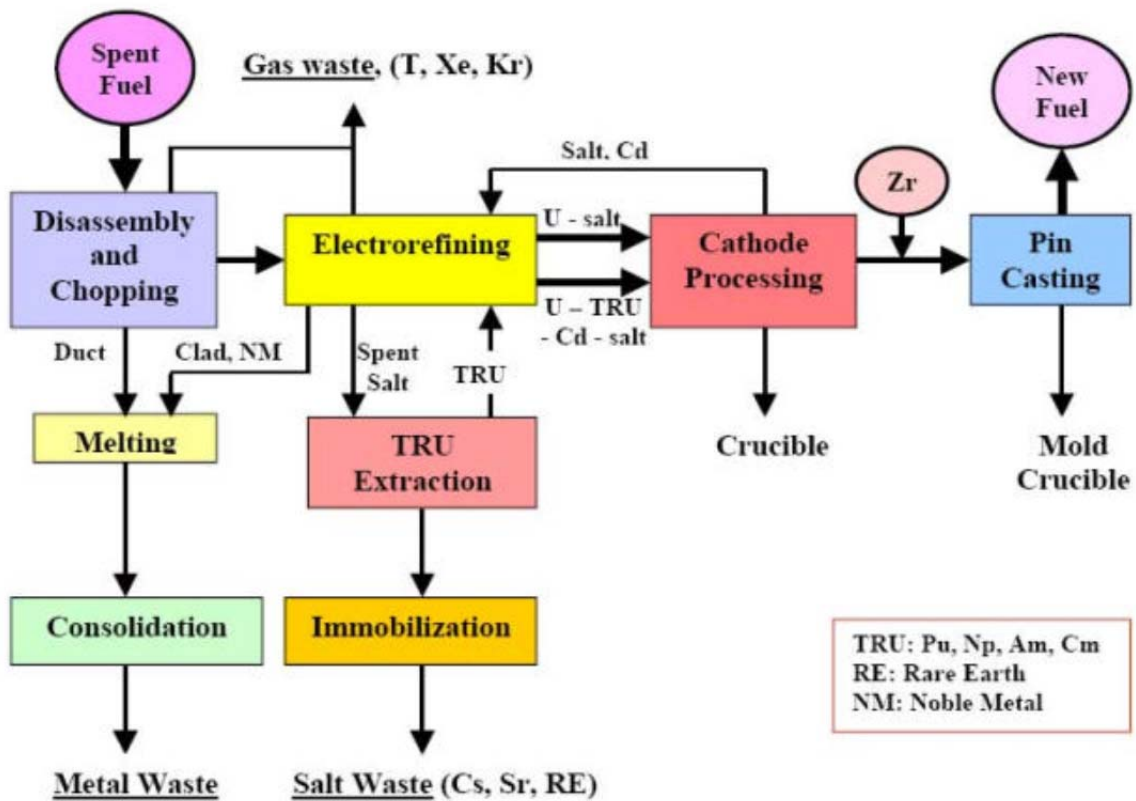



Fig. 4.1 Schema a blocchi di un generico processo pirometallurgico

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	19	37

Attualmente un solo impianto ha ottenuto la licenza di funzionamento su scala industriale. Si tratta dell'*IFR Electrolytic Process* sviluppato dalla Argonne National Laboratory negli USA ed utilizzato per il piroprocessamento del combustibile esausto proveniente dal reattore veloce sperimentale EBR-II che ha funzionato nel periodo 1963-1994. Esso si basa essenzialmente su un processo combinato di tipo separazione-condizionamento, poiché né il plutonio né altri transuranici vengono separati individualmente per essere riciclati. Inoltre tale processo viene impiegato per lo stoccaggio di combustibile che non potrebbe essere inviato direttamente al deposito geologico.

In questo impianto il combustibile metallico viene dissolto in un bagno eutettico di LiCl+KCl fusi. L'uranio viene depositato elettrochimicamente su un catodo metallico, mentre i componenti della guaina in acciaio ed i metalli nobili tra i prodotti di fissione restano nel bagno di sale fuso formando un unico compatto rifiuto metallico. I transuranici e tutti gli altri prodotti di fissione che restano invece nel sale fuso vengono successivamente incorporati in una matrice di zeolite e pressati a caldo in un manufatto ceramico.

Un altro processo tipicamente pirometallurgico, sviluppato sempre dalla Argonne National Laboratory, prevede l'abbinamento con un processo UREX. Gli elementi transuranici e quelli di fissione da separare, in forma di ossidi, provengono dalla denitratura del raffinato in uscita dall'impianto UREX. Questi ossidi vengono ridotti elettrochimicamente e depositati su catodo in un bagno di sali fusi LiCl+Li<sub>2</sub>O. I prodotti di fissione chimicamente più attivi (es. Cs, Sr) non vengono ridotti e quindi restano nel bagno di sali fusi. Anche in questo caso i prodotti di fissione che restano nel sale vengono trattati con zeolite e trasformati in materiale ceramico. Il catodo su cui sono depositati i transuranici viene lavorato per eliminare i residui di sale e fuso a formare lingotti per la successiva trasformazione in *targets* per la trasmutazione.

Un tipico processo pirometallurgico sviluppato, invece, in Russia prevede tre principali *step*:

- dissoluzione del combustibile esausto in bagno di sale fuso;
- deposizione elettrochimica di uranio e plutonio sul catodo;
- recupero dei materiali depositati sul catodo per la produzione di combustibile granulare.

Il processo recupera tutto il deposito sul catodo senza alterarne la composizione chimica e senza una eventuale redistribuzione del Plutonio.

Tutte le fasi di tale riprocessamento hanno come obiettivo il recupero pressoché totale di plutonio, nettunio, americio e curio.

#### **4.2 Il processo “fluoride volatility”**

Nei processi di volatilizzazione dei fluoruri si sfrutta l'elevata reattività del fluoro facendolo reagire direttamente con il combustibile da trattare.

Il fluoro risulta molto più reattivo dell'ossigeno ed è in grado di reagire velocemente con le particelle di combustibile opportunamente fatte cadere in una camera satura di fluoro. Le particelle di combustibile bruciano velocemente in presenza di fluoro a formare fluoruri. La maggior parte dell'Uranio si trasforma in esafluoruro di U(VI) UF<sub>6</sub>, composto

usato per i processi di arricchimento. L'esafluoruro di uranio ha un punto di ebollizione molto basso da cui deriva una elevata volatilità. Insieme all'uranio, anche il tecnezio forma un esafluoruro alquanto volatile. Questi fluoruri vengono separati per condensazione e poi successivamente separati tra loro per distillazione frazionata o riduzione selettiva.

Tuttavia gli esafluoruri di uranio e tecnezio presentano un punto di ebollizione ed una tensione di vapore non molto diversi fra loro. Ciò rende la loro separazione alquanto difficoltosa.

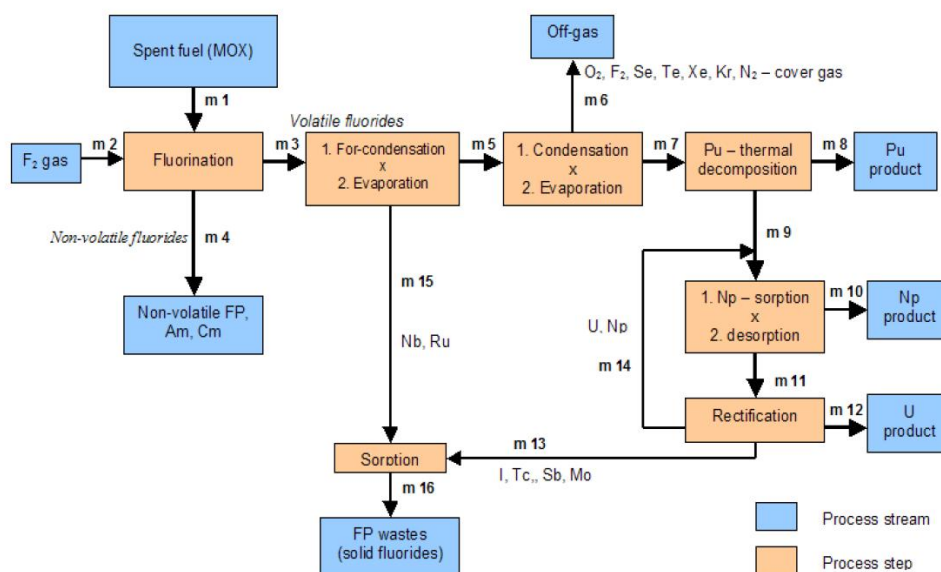


Fig. 4.2: Schema di un tipico processo *Fluoride Volatility*.

## 5 METODI PIU' PROMETTENTI PER LA SITUAZIONE ITALIANA

Visto il panorama energetico nazionale e la scelta popolare di rinuncia agli attuali sistemi di produzione di energia elettrica da fonte nucleare, è ragionevole supporre che il ritorno al nucleare, necessario per il crescente fabbisogno nazionale di energia elettrica, sarà possibile solo quando saranno commerciali i reattori di IV Generazione.

Nei paragrafi successivi sono brevemente illustrati i principali progetti di tali filiere e le relative metodiche di ritrattamento del combustibile esausto.

### 5.1 Panoramica dei reattori nucleari di IV generazione

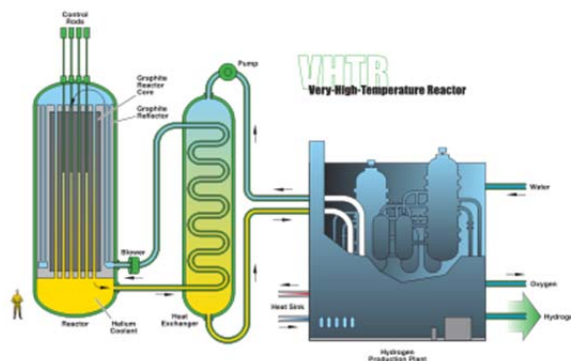
La ricerca sui reattori nucleari di "IV Generazione" è stata promossa dal "Generation IV International Forum", fondato nel 2001 dal Department of Energy (DOE) degli Stati Uniti d'America, a cui hanno aderito diversi Paesi.

Gli obiettivi primari del "Generation IV International Forum" sono quelli di migliorare la sicurezza nucleare, ridurre la produzione di scorie nucleari, sottrarsi alla proliferazione nucleare, minimizzare gli sprechi e l'utilizzo di risorse naturali, e diminuire i costi di

costruzione e di esercizio di tali impianti. Secondo i promotori, questi sistemi offrirebbero significativi vantaggi di redditività economica, riduzione delle scorie nucleari prodotte, eliminazione del plutonio impiegabile in armi nucleari e protezione fisica sia passiva che attiva dell'impianto.

Questi prototipi, sommariamente illustrati di seguito, non saranno disponibili per l'impiego commerciale prima dell'anno 2030.

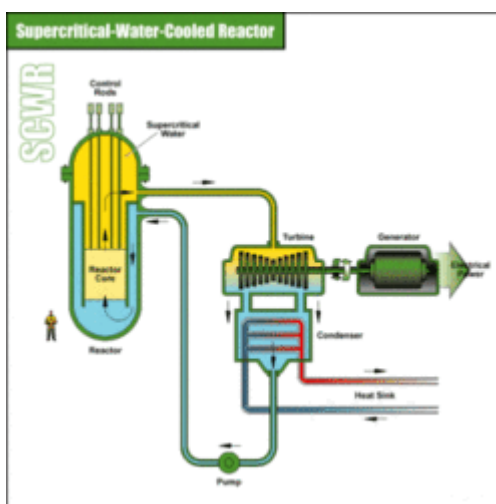
### Very-High-Temperature Reactor (VHTR)



Il reattore nucleare a temperatura molto alta (noto in inglese con la sigla **VHTR**, **Very High Temperature Reactor**) è un tipo di reattore nucleare a fissione di IV generazione che utilizza un reattore moderato a grafite con un ciclo dell'uranio a singolo passaggio. Questo design di reattore prevede una temperatura del complesso di circa 1.000 °C. Il nucleo del reattore può essere sia un sistema di "blocchi prismatici" in grafite oppure una serie di "ciottoli" (pebble-bed) anch'essi in grafite.

La temperatura scelta permette la produzione termochimica di idrogeno tramite uno scambiatore di calore intermedio, con cogenerazione di energia elettrica o utilizzazione del gas in una turbina a gas ad alto rendimento.

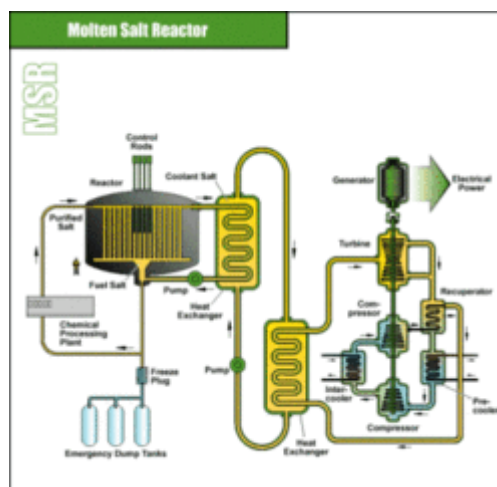
### Reattore nucleare ad acqua supercritica (SCWR)



Il concetto di reattore nucleare ad acqua supercritica (**SCWR**, **SuperCritical Water Reactor**) utilizza, come fluido di lavoro, l'acqua supercritica cioè a valori di pressione e

temperatura al di sopra di 374°C e 22,1 MPa. I SCWR sono fondamentalmente reattori ad acqua leggera (LWR - *Light Water Reactor*) operanti a pressione di 25 MPa e temperatura 510÷550°C; essi opererebbero quindi con un ciclo diretto, simile a quello dei reattori ad acqua bollente BWR (*Boiling Water Reactor*), ma l'acqua si presenterebbe in una unica fase, come nel reattore ad acqua pressurizzata PWR (*Pressurized Water Reactor*) e il vapore prodotto viene inviato direttamente alla turbina, senza circuito secondario.

### Reattore nucleare a sali fusi (MSR)



Il reattore nucleare a sali fusi (**MSR**, **Molten Salt Reactor**) è un reattore a spettro neutronico epitermico, con un ciclo chiuso che comporta un efficiente sfruttamento del plutonio e degli attinidi minori. Il combustibile è costituito da una miscela liquida di sodio, zirconio e fluoruri di uranio posta in circolazione da apposite pompe. La potenza prevista è di 1000 MWe, la pressione di circa 5 bar con una temperatura massima di oltre 700°C che garantisce un ottimo rendimento termodinamico. Con queste condizioni è possibile la produzione di idrogeno.

Le caratteristiche più interessanti di questo reattore sono:

- la produzione di scorie radioattive che contengono solo prodotti di fissione,
- l'esigua produzione di materiale utilizzabile a scopi militari,
- il ridotto consumo di combustibile,
- l'aumentata sicurezza del sistema di raffreddamento passivo.

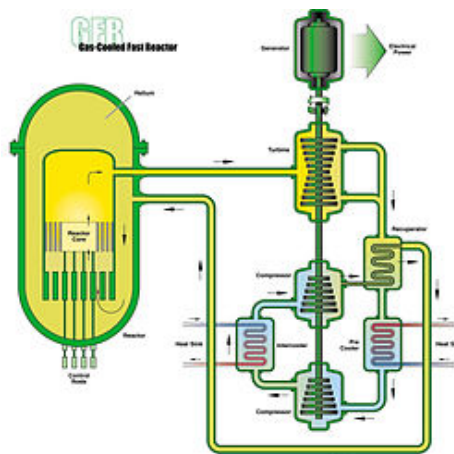
### Reattori veloci autofertilizzanti (FBR)

Si tratta di reattori privi di moderatore e che sfruttano neutroni veloci. La caratteristica principale consiste nell'autosostentamento con produzione, da parte dei reattori, di materiale fissile (plutonio) in quantità maggiore a quella consumata. Il nocciolo del reattore è suddiviso in due sezioni: una più interna, detta "seme", contenente il combustibile uranio-plutonio fortemente arricchiti, ed una più periferica detta "mantello", che circonda il seme e contiene uranio naturale o impoverito. In entrambe le zone si verifica produzione di energia, ma mentre nel mantello la concentrazione di plutonio ed altri elementi pesanti aumenta attraverso la fertilizzazione dell'uranio, nel seme questa diminuisce per la maggiore probabilità di avere fissione.



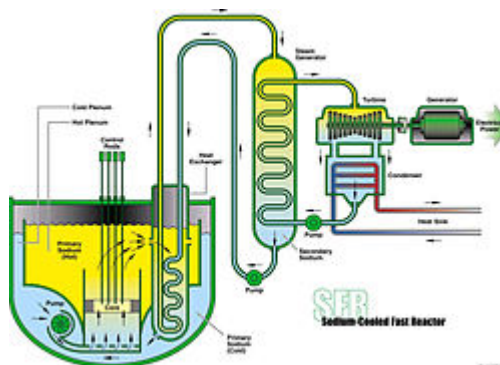
Il vantaggio principale del reattore autofertilizzante è l'economia di combustibile: se un CANDU infatti ricava energia dall' 1% del combustibile, i reattori veloci sono in grado teoricamente di raggiungere valori dell'ordine del 50-60%.

### Gas-Cooled Fast Reactor (GFR)



Il reattore nucleare a neutroni veloci refrigerato a gas (**GFR, Gas-Cooled Fast Reactor**) presenta uno spettro neutronico ad alta velocità. Il reattore è raffreddato ad elio, con una temperatura di uscita pari a 850 °C, che viene impiegato come fluido termodinamico per muovere direttamente una turbina a gas in un ciclo Brayton al fine di consentire un'elevata efficienza termica. Questo tipo di reattore sarà adatto per la produzione elettrica, la produzione termochimica di idrogeno e la produzione di calore per altri scopi. I combustibili impiegati potranno includere l'uranio impoverito e altri materiali fissili o fertili, assicurando una eccellente ritenzione dei prodotti di fissione: combustibili in ceramiche composite, particelle di combustibile avanzate, o capsule di composti attinidi rivestiti in ceramica. Il combustibile esaurito sarà riprocessato in sito e tutti gli attinidi saranno riciclati per rendere minima la produzione di rifiuti radioattivi a lunga durata.

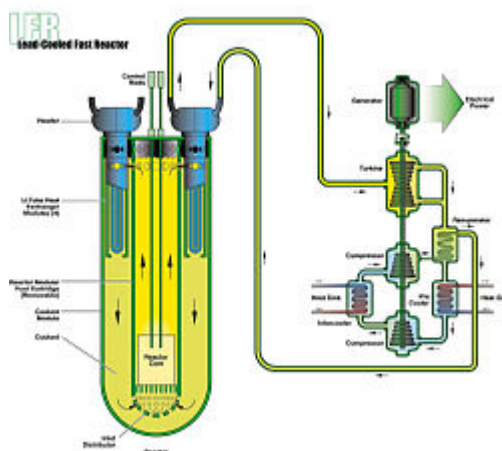
### Sodium-Cooled Fast Reactor (SFR)



Il reattore nucleare a neutroni veloci refrigerato a sodio, (**SFR, Sodium-Cooled Fast Reactor**) utilizza un nocciolo non moderato con spettro neutronico veloce, progettato

per *bruciare* ogni tipo di isotopo transuranico che si possa generare come sottoprodotto della reazione di cattura. Questo tipo di reattore utilizza uranio impoverito e raggiunge temperature di 550°C nel sistema refrigerante, suddiviso in un circuito primario al sodio a pressione quasi atmosferica e un circuito secondario che serve per la produzione elettrica. Sono proposte due varianti: una da 150÷500 MWe, con gli attinidi incorporati nel combustibile metallico, che richiede un riprocessamento pirometallurgico sul posto; una da 500÷1500 MWe con combustibile convenzionale MOX riprocessato in impianti situati altrove.

## Lead-Cooled Fast Reactor (LFR)



Il reattore nucleare a neutroni veloci refrigerato a piombo (**LFR**, **Lead-Cooled Fast Reactor**) consiste in un reattore veloce raffreddato da un metallo liquido, come ad esempio il piombo, oppure una miscela eutettica di bismuto/piombo con ciclo chiuso del combustibile nucleare. Il nocciolo del reattore nucleare LFR viene refrigerato dal meccanismo termodinamico di convezione naturale con una temperatura di uscita del refrigerante secondario dallo scambiatore di calore immerso nel reattore di circa 550°C, che potrebbe arrivare fino a 800°C con materiali avanzati come ceramiche. La temperatura più elevata consente la produzione dell'idrogeno, grazie a processi termochimici.


## 5.2 Il pyroprocessing come soluzione per il futuro nucleare italiano

Le tecniche di riprocessamento “per via umida” e “per via secca” hanno consolidato risultati positivi nel riprocessamento di rifiuti ad alta attività di combustibili esausti.

In particolare, fra i metodi “per via umida” i processi multi stadio sembrano essere promettenti, anche se ancora complessi.

Il programma americano IFR (Integral Fast Reactor) rappresenta oggi un sistema innovativo integrato per il riciclaggio del combustibile esaurito, e si basa su un procedimento combinato di pirometallurgia e di elettrochimica (“pyroprocessing”).

Obiettivo nello sviluppo di questa tecnologia è stato quello di mettere a punto un processo economicamente conveniente, in grado di contribuire alla non proliferazione di armi nucleari, e dotato di un'elevata operatività, associata ad una bassa produzione di rifiuti.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	25	37

Il recupero di radionuclidi a lunga vita viene incontro, per quanto possibile, all'esigenza di limitare lo smaltimento dei rifiuti ad alta attività in strati geologici profondi, che sta incontrando la crescente opposizione dell'opinione pubblica.

La tecnica di pirometallurgia applicata al riprocessamento di diverse tipologie di combustibile nucleare (metallico, ad ossidi misti, a nitruri, ad alto "burn-up", ecc.) consente il recupero dei radionuclidi a lunga vita ed il loro riciclo in diversi tipi di reattori. Il recupero degli attinidi minori (Np, Am, Cm) avviene simultaneamente al plutonio, grazie alle proprietà termodinamiche del sistema di sali fusi in cui opera l'elettroraffinatore.

E' di particolare interesse l'uso di mezzi non acquosi, specialmente di sali fusi ad alta temperatura o metalli liquidi, in quanto essi sono molto meno sensibili all'influenza delle radiazioni rispetto ai solventi organici e quindi risulta possibile il riprocessamento di combustibile esaurito con un breve tempo di raffreddamento, senza comportare un aumento dei rifiuti prodotti.

Inoltre, dal momento che il sale fuso non è un moderatore di neutroni (a differenza dell'acqua), nel processo pirometallurgico può essere trattata una grande quantità di materiale fissile e ciò comporta la compattezza ed economicità degli apparati sperimentali utilizzati.


I principali vantaggi nell'adozione di processi pirometallurgici per il riprocessamento del combustibile nucleare esausto sono elencati di seguito:

- numero ridotto di stadi di conversione chimica, grazie all'eliminazione del ciclo solido-soluzione acquosa-solido, necessario nei processi in fase acquosa;
- i rifiuti con prodotti di fissione si presentano in forma secca e concentrata, quindi più facilmente gestibili;
- limitata solubilità di alcuni materiali dei combustibili in soluzioni acide;
- maggiore stabilità dei sali fusi in ambiente radioattivo rispetto ai solventi organici;
- possibilità di lasciar raffreddare il combustibile esausto per un tempo più breve, in quanto i processi pirometallurgici vengono realizzati ad alti valori di temperatura.

Da quanto esposto, e per i notevoli risultati ottenuti nei progetti nazionali (AdP 2008/09 ENEA-MSE: tema di ricerca Nuovo nucleare da fissione, Linea Progettuale 4) ed internazionali (Progetti EUROPART ed ACSEPT, cofinanziati dalla UE) sull'argomento (per i quali si rimanda in bibliografia), si può ragionevolmente concludere che la pirometallurgia è la strada più idonea per il riprocessamento di combustibile esausto proveniente dai reattori di prossima generazione, soddisfacendo i requisiti di non proliferazione e di minimizzazione dei rifiuti.


### **5.3 Metodi sperimentali innovativi per il trattamento del combustibile nucleare esausto.**

Al fine di ridurre la pericolosità dei rifiuti nucleari a lunga vita, è in corso un'attività sperimentale rivolta al trattamento di sostanze radioattive mediante ultrasuoni. Lo scopo di tale ricerca è quello di studiare gli effetti della pressione ultrasonica sui tempi di emivita di diversi radionuclidi e capire se e in che modo questo trattamento possa essere utilizzato, in seguito, per trattare direttamente elementi di combustibile esausto. Sono presenti in letteratura diversi articoli riguardanti proprio questo tipo di ricerche. Il più significativo è un articolo pubblicato in Physics Letters A 373 (2009) 1956–1958. In

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	26	37

tale lavoro, si descrive un esperimento in cui diverse soluzioni acquose da 250 ml contenenti circa 0.03 ppb di Torio-228 sono state opportunamente sottoposte ad ultrasuoni con una frequenza di 20 khz e una potenza trasmessa di circa 100 W per 90 minuti. Altre soluzioni con le stesse caratteristiche delle prime e la stessa concentrazione di Torio-228 sono state utilizzate come riferimento (cioè non sottoposte ad ultrasuoni). Il confronto tra queste ultime e le prime ha mostrato che nelle soluzioni sottoposte ad ultrasuoni, il contenuto di torio-228 si era dimezzato in 90 minuti anziché nel suo caratteristico tempo di dimezzamento pari a circa 2 anni. Questa evidenza è stata ottenuta sia mediante analisi con ICP-MS, sia mediante la rivelazione del numero di particelle alfa emesse dalle soluzioni trattate con ultrasuoni e da quelle non trattate. Oltre a questa evidenza riguardante il trattamento ultrasonico cavitativo di sostanze radioattive, esistono molti altri risultati sperimentali che sembrano mostrare come l'applicazione di ultrasuoni e cavitazione a soluzioni contenenti ferro produca emissione di neutroni. Si è visto che queste emissioni avvengono in maniera impulsiva in modo del tutto asincrono e anisotropo, il che le rende particolarmente sfuggenti ai rivelatori attivi a causa dei loro tempi morti e del software da cui vengono gestiti. Proprio per questo, le prime evidenze di queste emissioni sono state ottenute per mezzo di rivelatori passivi che, senza essere minimamente influenzati dalla peculiarità temporali dell'emissione, integrano il segnale fornendo o una fluenza o una dose integrale. I rivelatori usati sono stati o di tipo termodinamico o del tipo track detectors opportunamente schermati mediante acido borico per permettere la conversione neutrone-particella alfa. Un secondo possibile effetto dovuto all'applicazione di ultrasuoni e cavitazione a soluzioni contenenti ferro, ma presente anche per la soluzione con Torio-228, consisterebbe nel fatto che, parallelamente all'emissione di neutroni, siano presenti anche delle trasformazioni nucleari di nuovo tipo, cioè che non coinvolgono reazioni di fusione, fissione o decadimenti radioattivi. Riguardo a questo possibile secondo effetto, tuttavia, non si sono ottenute evidenze chiare e dirette, ma soltanto indizi quali, per esempio, la "scomparsa" del Torio di cui, però, non si è riusciti a individuare in quali altri nuclei si sarebbe trasformato.

Grazie ai contatti con gli autori dei su nominati articoli, si è scoperto che è stata aperta una seconda linea di ricerca nella quale, gli ultrasuoni vengono applicati a materiali solidi contenenti ferro. In particolare sono stati eseguiti esperimenti applicando ultrasuoni di 19 Watt e 20 kHz a delle barrette cilindriche di acciaio alte 20 cm e dal diametro di 2 cm. Anche in questo esperimento sono stati rivelati impulsi di neutroni. Inoltre si è notata, sulla superficie delle barrette, la presenza di aree circolari danneggiate dal diametro di circa 3 millimetri. La microanalisi a raggi X sulla superficie, intonsa e su quella danneggiata, ha mostrato delle interessanti variazioni macroscopiche della concentrazione degli elementi, fornendo così un ulteriore indizio riguardo la possibile esistenza di trasformazioni nucleari di nuovo tipo. Visti gli aspetti fondamentali delle ricerche appena descritte nei confronti del trattamento e della riduzione della pericolosità del combustibile nucleare esausto, si è allestito, in ENEA-Casaccia, un laboratorio in cui poter ripetere con maggiore estensione ed accuratezza i suddetti esperimenti e misure. Sono stati acquistati tre rivelatori: uno spettrometro neutronico Microspec Neutron Probe, uno strumento comprendente un contatore neutronico, un dosimetro, contatore e spettrometro gamma HDS-101-GN e uno strumento per la microanalisi a raggi X (SKYRAY XRF). Visto che l'aspetto delle suddette ricerche per cui si hanno maggiori evidenze è proprio l'emissione di neutroni sotto forma di impulsi, diventa assolutamente necessario studiare questa emissione

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	27	37

sotto l'aspetto spaziale, temporale ed energetico. Siamo, infatti, apparentemente davanti a effetti nucleari di nuovo tipo di cui è, quindi, indispensabile esaminare ogni minimo dettaglio.

La campagna di esperimenti inizierà utilizzando un generatore di ultrasuoni con delle soluzioni contenenti sali di ferro in modo da configurare l'intero sistema sperimentale secondo le specifiche indicate negli articoli. Tuttavia, utilizzando rivelatori diversi, sarà necessario verificare che queste configurazioni siano adatte anche per questi nuovi rivelatori. Inoltre è necessario sapere che, qualora non si riuscisse da subito a rivelare gli impulsi di neutroni, si dovranno ricercare le condizioni spaziali, temporali ed energetiche dei rivelatori più adatte a rivelare una emissione anisotropa asincrona di impulsi di neutroni.

La prima fase di misure sarà necessaria quindi per poter raggiungere una buona capacità di rivelazione degli impulsi di neutroni mediante il contatore neutronico HDS-101-GN; esso fornisce anche, sulla stessa base dei tempi, l'andamento delle emissioni gamma che, per quanto si legge nei suddetti articoli, dovrebbe essere compatibile con il fondo. Tuttavia, l'utilizzo della stessa base dei tempi per neutroni e impulsi gamma (qualora presenti) permetterà di stabilire se esiste una correlazione tra essi. Questa prima fase della ricerca sarà, ovviamente, necessaria anche per avviare lo studio dello spettro delle emissioni impulsive di neutroni mediante lo spettrometro Microspec Neutron Probe.

La seconda fase di questa campagna di esperimenti si propone, invece, di eseguire delle misure progettate sulla base sia dei risultati riguardanti il torio, e quindi l'effetto degli ultrasuoni sui radionuclidi, sia sulla base dei risultati riguardanti l'applicazione di ultrasuoni a barrette di ferro o acciaio. Si inizierà sottoponendo agli ultrasuoni un certo numero di barrette di acciaio delle quali si sarà preventivamente eseguita una microanalisi a raggi X in diversi punti della superficie al fine di determinare una stima delle concentrazioni medie degli elementi che la compongono. Queste misure saranno, ovviamente, eseguite mediante il terzo strumento acquistato (SKYRAY XRF). Dopo l'applicazione di ultrasuoni, durante la quale si misureranno neutroni e gamma, si effettuerà una nuova microanalisi a raggi X negli stessi punti dove era stata eseguita prima, e in quei punti dove, eventualmente, saranno apparsi dei danneggiamenti. Il passo successivo sarà di attivare preventivamente mediante il reattore nucleare TRIGA le barrette da sottoporre ad ultrasuoni. In generale si farà un confronto tra due situazioni con due barrette identiche, una delle quali attivata e non sottoposta ad ultrasuoni, l'altra attivata e sottoposta ad ultrasuoni. Si vuole, infatti, vedere se l'applicazione di ultrasuoni produce una diminuzione dell'attività della barretta in un intervallo di tempo minore rispetto a quella non sottoposta ad ultrasuoni. In questa fase tutti e tre gli strumenti saranno utilizzati. Si eseguirà, ovviamente, una microanalisi a raggi X prima dell'attivazione e dopo il trattamento ad ultrasuoni, quando l'attività si sarà naturalmente o artificialmente abbassata. Lo spettrometro neutronico fornirà indicazioni sull'energia dei neutroni emessi, indicazioni che potranno essere utilizzate incrociandole con quelle che saranno fornite dalla la spettrometria gamma con germanio (che si eseguirà prima e dopo gli ultrasuoni) e la spettrometria gamma mediante l'HDS-101-GN (che verrà eseguita durante l'applicazione di ultrasuoni) per tentare di ipotizzare quale nuovo tipo di trasformazioni nucleari sono avvenute e per tentare un primo bilancio energetico basato su dati sperimentali. In base ai risultati che si otterranno, si procederà in due direzioni: rendere gli effetti misurati il più macroscopici possibili; applicare questi metodi a del combustibile nucleare esausto.



Figura 5.1 - Sonotrodo cavitatore




Figura 5.2 - Microspec Neutron Probe



Figura 5.3 - HDS-101-GN



Figura 5.4 - SKYRAY XRF

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	30	37

## 6 INDIVIDUAZIONE DI FACILITIES DA ATTREZZARE PRESSO ENEA E PROGETTO DI MASSIMA

In conseguenza delle considerazioni espresse nel paragrafo precedente si può concludere che il processo pirometallurgico è probabilmente il metodo di riprocessamento più idoneo per le attività di ricerca e sviluppo futuri nel nostro Paese.

Un impianto pilota per questa tecnologia di riprocessamento, è costituito da:

- **un crogiolo** (cilindro realizzato in zirconia), che dovrà essere riscaldato alla temperatura di oltre 500°C per la fusione dei sali e delle sostanze versate;
- **una serie di agitatori a pale**, inseriti sia nel bagno che nel catodo di bismuto liquido, aventi lo scopo di mobilizzare gli ioni metallici in direzione verticale e orizzontale;
- **un contatto elettrico** per il catodo di bismuto liquido che viene assicurato da un'asta di tantalio, inserita in un tubo di allumina per l'isolamento elettrico;
- **un cestello di dissoluzione del combustibile** cioè un contenitore cilindrico in acciaio inossidabile forato, aperto nella parte superiore e collegato ad un cavetto in acciaio per il contatto elettrico;
- **un catodo solido in acciaio** (bacchetta in acciaio dolce) inserito in un tubo-guida in modo tale che la sua superficie sia esposta all'elettrolita; esso è equipaggiato con un disco di raccolta in allumina allo scopo di raccogliere frammenti di deposito metallico che non dovessero aderire al catodo stesso;
- **un anodo di Bismuto-Litio** all'interno del quale è inserita una bacchetta di molibdeno protetta da un tubo di allumina per garantirne l'isolamento elettrico;
- **un catodo di Bismuto liquido** (contenitore in yttria stabilizzata con zirconia), sospeso nel sale fuso mediante tre bacchette di allumina e riempito di bismuto fuso;
- **due elettrodi di riferimento** bacchette necessarie per misurare il potenziale catodico e anodico.

La flangia superiore del crogiolo deve presentare i fori necessari per l'introduzione dell'aggitatore ad asta verticale, del tubo contenente le termocoppie, del cestello anodico, del catodo solido, degli elettrodi di riferimento per l'anodo ed il catodo, delle aste di campionamento dei sali e del bismuto fuso e per il caricamento dei sali. Quest'ultimo permette, tra l'altro, il posizionamento di un catodo di bismuto liquido.

In Figura 6.1 è riportato uno schema semplificato dell'impianto.



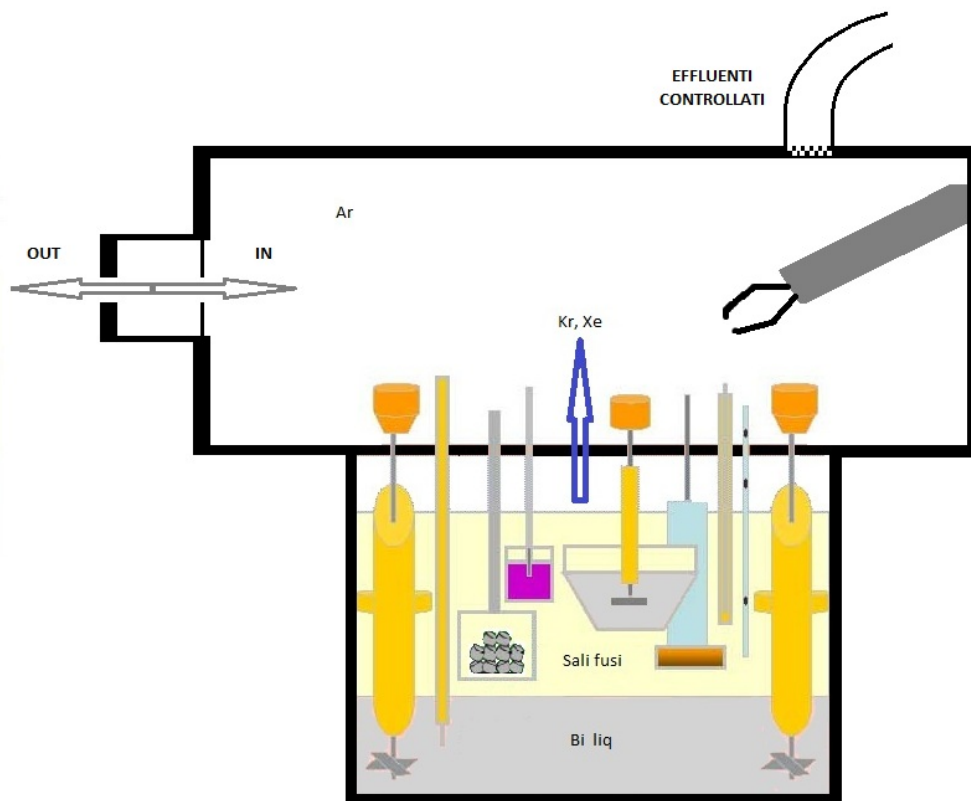


Fig. 6.1: Schema d'impianto del processo pirometallurgico

Da sinistra a destra: agitatore verticale a pale; contatto elettrico per bismuto liquido, cestello anodico di dissoluzione del combustibile, anodo di bismuto-litio collegato con una bacchetta di molibdeno, catodo di bismuto liquido con un agitatore a palette, catodo solido in acciaio con disco di raccolta in allumina, elettrodo di riferimento (Ag/AgCl); tubo-guida per termocoppie chromel-allumel. I tubi in allumina che rivestono vari componenti consentono di impedire il contatto elettrico con il sale fuso.

Le dimensioni di ogni elemento, e in conseguenza dell'impianto, dipendono dal quantitativo di materiale che si deve trattare.

Dovendo riprocessare combustibile esausto sono necessarie precauzioni idonee alla salvaguardia radioprotezionistica degli operatori e dell'ambiente. Infatti si dovranno manipolare sostanze fortemente radioattive, quindi il crogiolo e tutti gli altri componenti saranno collocati all'interno di una cella blindata, a tenuta e provvista di scarichi controllati, munita di telemanipolatori e sistemi di movimentazione remota.

Tutto il processo deve avvenire in leggera pressione (5-25 mm di colonna d'acqua) e in atmosfera inerte (argon), perché il contenuto in ossigeno nell'atmosfera della cella deve essere mantenuto al di sotto di 20 ppm, e l'umidità al di sotto di 10 ppm durante tutte le operazioni: sono quindi necessarie elettrovalvole per la regolazione della pressione e in generale sistemi di controllo degli effluenti, nonché passaggi a tenuta, in atmosfera controllata, per l'inserimento/estrazione del materiale e dei componenti.

Naturalmente un eventuale impianto pilota deve essere installato in una zona dotata di Nulla Osta ministeriale per l'uso di sorgenti, con tutte le caratteristiche richieste dalla normativa vigente.

Attualmente, presso il Centro Ricerche Casaccia dell'ENEA è presente un solo locale idoneo ad ospitare un simile impianto: si tratta della Hall Tecnologica C25, in cui è in corso l'iter autorizzativo per un Nulla Osta di Categoria A, nonché le operazioni di miglioramento e messa a norma dei sistemi rilevanti.

Nella Hall sono presenti una serie di celle schermate in piombo (del tipo a cielo aperto), dotate di telemanipolatori e carro ponte, che potrebbero essere utilizzate come ulteriore schermatura per alloggiare la "cella impianto", oppure, dopo le necessarie modifiche che le rendano a tenuta, come cella impianto vera e propria.

Nel seguito viene sommariamente descritto il progetto di massima dell'impianto che potrebbe essere realizzato nella Hall Tecnologica individuata.

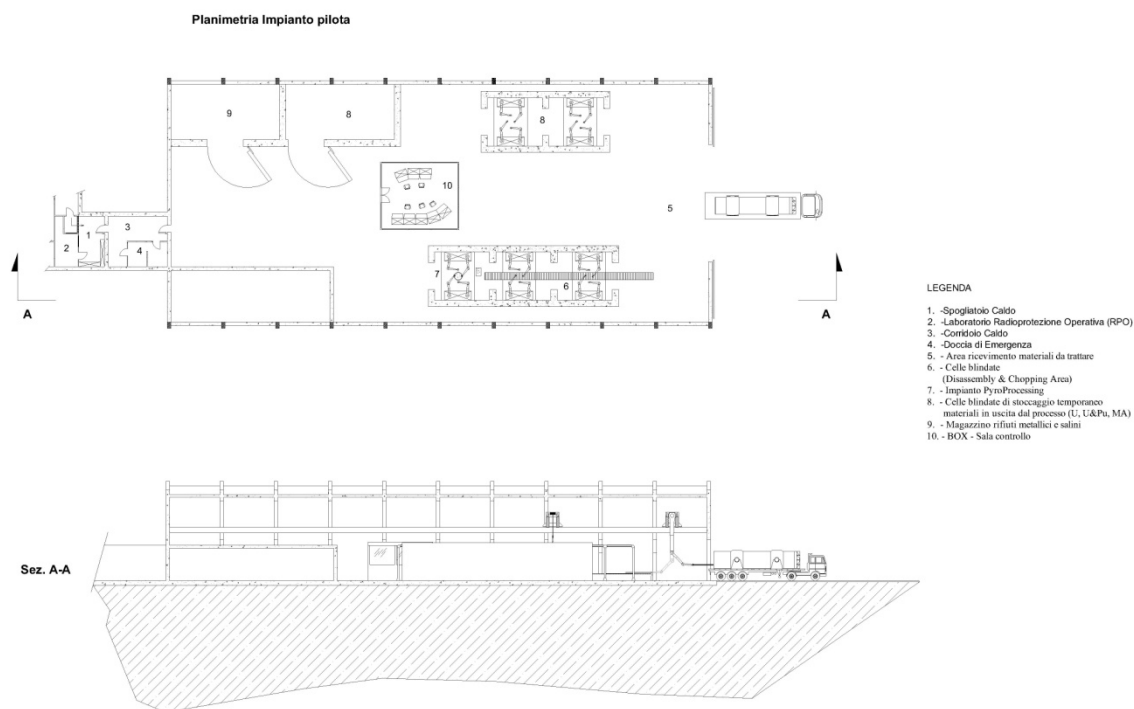
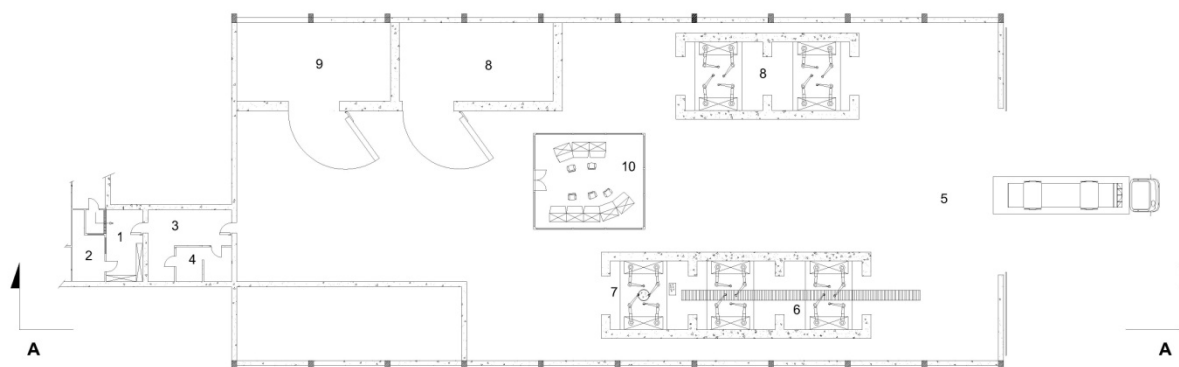



Fig. 6.2: Pianta della Hall modificata per ospitare l'impianto pilota

**Planimetria Impianto pilota**

**Fig. 6.3: Prospetto della Hall tecnologica**
**LEGENDA**

1. Spogliatoio Caldo
2. Laboratorio Radioprotezione Operativa (RPO)
3. Corridoio Caldo
4. Doccia di Emergenza
5. Area Ricevimento Materiali
6. Celle blindate - Disassembly & Chopping Area
7. Impianto PyroProcessing
8. Area di Stoccaggio Temporaneo
9. Magazzino Rifiuti metallici e salini
10. Sala Controllo

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	34	37

## 6.1 Descrizione dei locali

### 6.1.1 Spogliatoio Caldo (1).

Il passaggio dalla Zona Fredda alla Zona Sorvegliata è delimitato da una barriera fisica, che consente il passaggio nello spogliatoio caldo dopo aver indossato calzature da lavoro in Zona Controllata o sovrascarpe in caso di visitatori o operatori occasionali.

In questo spogliatoio devono essere presenti armadi per la custodia del vestiario da indossare per le attività in Zona Controllata.

Devono, altresì, essere presenti due monitori mani e piedi per il controllo di tutti coloro che escono dall'impianto prima dell'attraversamento della barriera verso la Zona Fredda.

Le pareti e i pavimenti devono essere rivestiti di materiale decontaminabile.

### 6.1.2 Laboratorio Radioprotezione Operativa (RPO) (2).

Nel Laboratorio Radioprotezione Operativa devono essere presenti gli allarmi del sistema di monitoraggio radiologico, che saranno duplicati anche presso la Sala Controllo. Tutti i sensori devono essere connessi ad un'unità di supervisione installata nel locale RPO; detta unità di supervisione deve consentire la gestione remota dei sensori, l'acquisizione dei dati di monitoraggio, l'interfacciamento con il sistema di controllo e l'invio di segnali a postazioni continuamente presidiate. E' un laboratorio dedicato solo alle analisi fisiche di radioprotezione da eseguire su filtri di campionamento e dosimetri personali ed ambientali.

Le pareti e i pavimenti devono essere rivestiti di materiale decontaminabile.

### 6.1.3 Corridoio Caldo (3).

Locale di passaggio e di collegamento fra lo Spogliatoio Caldo e l'Impianto propriamente detto. Il Corridoio deve essere chiuso alle due estremità da due porte metalliche tagliafuoco REI 120.

Le pareti e i pavimenti devono essere rivestiti di materiale decontaminabile.

### 6.1.4 Doccia di emergenza (4).

In questo locale deve essere presente una doccia, alimentata con acqua proveniente da un apposito serbatoio situato sopra la copertura dell'Impianto, e a scarico controllato, per la eventuale decontaminazione del personale in caso di incidente.


Le pareti e i pavimenti devono essere rivestiti di materiale decontaminabile.

### 6.1.5 Area ricevimento materiali (5).

In questa zona vengono scaricati gli elementi di combustibile esausto da sottoporre a trattamento. L'area deve essere attrezzata con carro ponte e telemanipolatori per la movimentazione e manipolazione remota. La zona prevede, inoltre, un magazzino per il materiale in attesa di essere inviato al processo di trattamento.

### 6.1.6 Celle Blindate - Disassembling & Chopping Area (6).

Insieme di celle blindate attrezzate per la manipolazione a distanza di materiali metallici ad alta attività. In particolare nelle celle blindate si effettuano le operazioni di smontaggio e taglio delle barre di combustibile. Per il taglio delle barre e per la loro riduzione a pezzi di dimensioni adatte all'impianto si prevede una opportuna troncatrice meccanica o in alternativa il taglio laser.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	35	37

#### 6.1.7 Impianto Pyroreprocessing (7).

Cella schermata all'interno della quale si effettua il processo vero e proprio. I parametri del processo (temperatura bagno sale, ingresso dell'anodo, uscita dei catodi, potenziali di elettrolisi, ecc.) sono gestiti dalla Sala Controllo.

#### 6.1.8 Area di stoccaggio temporaneo (8).

In questa area convoglierà il materiale in uscita dal piroprocesso (catodi con U, U&Pu, MA); questi catodi su cui sono depositati i materiali fissili e fertili verranno processati per eliminare i residui di sale. Successivamente, l'uranio, inviato in fornace per la fusione in lingotti, potrà essere miscelato con uranio arricchito a formare nuovi elementi di combustibile. La miscela U&Pu e MA potrà essere impiegata per la formulazione di combustibili nucleari di nuova concezione.

#### 6.1.9 Magazzino rifiuti metallici e salini (9).

Il processo genera due differenti flussi di rifiuti altamente radioattivi, metallici e salini. I componenti della guaina in acciaio ed i metalli nobili presenti tra i prodotti di fissione, restano nel bagno di sale fuso formando un unico compatto rifiuto metallico da inviare in idoneo deposito. I transuranici e tutti gli altri prodotti di fissione che restano invece nel sale fuso vengono successivamente incorporati in una matrice di zeolite e pressati a caldo in un manufatto ceramico (Processo Sodalite).

#### 6.1.10 Sala Controllo (10).

La Sala Controllo, posta in Zona Controllata, ospiterà sistemi informatici dotati di software in grado di gestire i parametri del processo e analizzare ed elaborare i segnali ricevuti dalla strumentazione di misura. Ogni computer deve essere collegato alla linea inverter per evitare l'interruzione dell'analisi dei dati in caso di mancanza di alimentazione di energia elettrica.

Una parete di vetro al piombo separerà questo locale dalle altre zone per consentire agli operatori di prendere visione di tutte le operazioni che si stanno eseguendo.

Nella Sala Controllo devono essere inseriti anche gli allarmi relativi ai sistemi di ventilazione e monitoraggio dell'ambiente e la centralina del sistema antincendio. E' inoltre presente un dispositivo mediante cui si possono commutare gli allarmi dalla Sala Controllo dell'Impianto ad una sala controllo gestita dalla vigilanza esterna.


Le pareti e i pavimenti devono essere rivestiti di materiale decontaminabile.

#### 6.1.11 Sala Macchine e filtri (posto esternamente all'impianto, non rappresentato nel disegno).

In questo locale devono essere installati i banchi filtranti dell'aria proveniente dai locali dell'Impianto. I banchi filtranti devono essere almeno due, uno di riserva all'altro, e devono essere costituiti da prefiltri e filtri assoluti.

In questo locale devono essere altresì installati almeno due ventilatori (uno di riserva all'altro) dell'impianto di estrazione dell'aria dai locali dell'Impianto. L'aria, dopo aver attraversato i prefiltri ed i filtri assoluti, viene espulsa dai ventilatori nell'atmosfera attraverso il camino.

In questo locale è installato anche l'impianto di ventilazione a circolazione forzata con circuito di mandata e di ripresa, con lo scopo di mantenere i locali in depressione rispetto all'esterno. L'impianto deve comprendere il sistema di trattamento e

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	<b>Sigla di identificazione</b>	<b>Rev.</b>	<b>Distrib.</b>	<b>Pag.</b>	<b>di</b>
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	36	37

condizionamento dell'aria in ingresso all'impianto. Sono presenti nel locale anche i quadri elettrici di alimentazione e controllo dei sistemi di ventilazione di mandata e ripresa aria locali, nonché la strumentazione di controllo della ventilazione ed il gruppo di compressione dell'aria strumenti.

Le pareti e i pavimenti devono essere rivestiti di materiale decontaminabile.

*6.1.12 Camino di espulsione aria (posto esternamente all'impianto, non rappresentato nel disegno)*

L'aria proveniente dai ventilatori di ripresa locali deve essere espulsa dal camino, avente altezza e diametro adeguatamente calcolati in fase progettuale.

*6.1.13 Locale Serbatoi Gas (posto esternamente all'impianto, non rappresentato nel disegno).*


In questo locale devono essere inserite le bombole di Argon necessarie per garantire la situazione di atmosfera controllata nella cella schermata (7).

Nello stesso locale sono state previsti altre bombole di Argon per il corretto funzionamento del monitor mani e piedi.

## **7 CONCLUSIONI**

Sulla base di quanto emerso nel corso delle attività fin qui riportate, appare evidente che, poiché un eventuale ritorno della produzione di energia elettrica da fonte nucleare in Italia è vincolato alla commercializzazione dei reattori di IV generazione, è necessario affrontare le questioni relative al riprocessamento.

Con opportuni investimenti di risorse economiche e umane, sarebbe possibile allestire presso i laboratori del C.R. ENEA Casaccia un impianto pilota dedicato ai processi pirometallurgici e approfondire i metodi innovativi sperimentali descritti precedentemente.

 <b>Ricerca Sistema Elettrico</b>	Sigla di identificazione	Rev.	Distrib.	Pag.	di
	PAR2010-ENEA-LB2-009	0	L	37	37

## 8 BIBLIOGRAFIA

1. IAEA-TECDOC-1467, *Status and trends in spent fuel reprocessing*, Sept. 2005.
2. IAEA-TECDOC-1587, *Spent Fuel Reprocessing Options*, August 2008.
3. IAEA Technical Reports Series No.415, *Status and Advances in MOX Fuel Technology*, 2003.
4. IAEA Technical Reports Series No. 435, *Implications of Partitioning and Transmutation in Radioactive Waste Management*, 2004.
5. F. Simpson, Jack D. Law, *Nuclear Fuel Reprocessing Michael*, INL, February 2010
6. K.A.Venkatesan, T.G.Srinivasan, and P.R.Vasudeva Rao, *Review on the Electrochemical Applications of Room Temperature Ionic Liquids in Nuclear Fuel Cycle*, *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*, Vol. 10, pp. R1-R6, 2009.
7. A. P. Paiva, P. Malik, *Recent advances on the chemistry of solvent extraction applied to the reprocessing of spent nuclear fuels and radioactive wastes*, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 261, No. 2 (2004) 485–496
8. Roberto Calvigioni, Mauro Capone, Alfonso Compagno, Giorgio De Angelis, Carlo Fedeli, Giuliano Tiranti, Elio Baicchi, Luciano Baldi, Alessandro Ventura, *Prove sperimentali per la valutazione di un processo di pirometallurgia in sali fusi*, Rapporto Tecnico ENEA, 2011, AdP ENEA-MSE: tema di ricerca Nuovo nucleare da fissione, NNFISS – LP4 – 026.
9. F. Carré , C. Renault, P. Anzieu, P. Brossard and P. Yvon, *Outlook on generation IV nuclear systems and related materials R&D challenges*, CEA, 2008.
10. C. Hill, L. Berthon, P. Bros, J-P. Dancausse and D. Guillaneux, *SANEX-BTP process development studies*, CEA-Marcoule, France.
11. M. Ozawa, Y. Sano, K. Nomura, Y. Koma, M. Takanashi, *A new reprocessing system composed of PUREX and TRUEX processes for total separation of long-lived radionuclides*, JNC, Japan.
12. M. C. Thompson, M. A. Norato, G. F. Kessinger, R. A. Pierce, T. S. Rudisill, and J. D. Johnson, *Demonstration of the UREX solvent extraction process with Dresden reactor fuel solution*, Westinghouse, September 2002.
13. D. Aquaro, M. Di Prinzio, N. Zaccari, *Metodologie di trattamento dei rifiuti radioattivi*, Università di Pisa, 2004.
14. G. De Angelis and E. Baicchi, *A new electrolyser for pyrochemical process studies*, Proceedings from GLOBAL 2005, Tsukuba, Japan, Oct 9-13, 2005, Paper No. 048.
15. C. Hill, C. Caravaca, C. Rhodes, C. Ekberg, R. Taylor, A. Geist, G. Modolo, L. Cassayre, R. Malmbeck, M. Harrison, G. De Angelis, A. Espartero, S. Bouvet, N. Ouvrier, “Pyroprocessing achievements in the field of the ACSEPT Project”, International Pyroprocess Research Conference, IPRC 2010, Dimitrovgrad, 29 Nov – 03 Dic 2010.
16. A. Carpinteri, G. Lacidogna, O. Borla, A. Manuello, *Neutron emission in brittle rocks during compression tests: monotonic vs. cyclic loading*, *Physical Mesomechanics* 13, 5-6, 2010, 268.