



SKB rapport

R-98-06

Maj 1998

Separation och transmutation
(S&T) 1997

En genomgång av nuläget

*Åsa Enarsson, Anders Landgren, Jan-Olov Liljenzin,
Mats Skålberg, Lena Spjuth
Inst. För Kärnkemi, Chalmers Tekniska Högskola, Göteborg*

*Waclaw Gudowski, Jan Wallenius
Avd. för Kärn- och Reaktorfysik, KTH Stockholm*



SKB, Box 5864, 102 40 Stockholm
Telefon 08-665 28 00 • Telefax 08-661 57 19 • Telex 13108 S

SEPARATION OCH TRANSMUTATION (S&T) 1997

EN GENOMGÅNG AV NULÄGET

Åsa Enarsson¹, Anders Landgren¹, Jan-Olov Liljenzin¹,
Mats Skålberg¹, Lena Spjuth¹, Waclaw Gudowski²,
Jan Wallenius²

- 1 Inst. För Kärnkemi,
 Chalmers Tekniska Högskola, Göteborg
- 2 Avd. för Kärn- och Reaktorfysik,
 Kungl. Tekniska Högskolan, Stockholm

Maj 1998

Denna rapport har gjorts på uppdrag av SKB. Slutsatser och framförda åsikter i rapporten är författarens(nas) egna och behöver nödvändigtvis inte sammanfalla med SKB:s.

SEPARATION OCH TRANSMUTATION (S&T) 1997

EN GENOMGÅNG AV NULÄGET

Åsa Enarsson, Anders Landgren, Jan-Olov Liljenzin, Mats Skålberg, Lena Spjuth

Institutionen för Kärnkemi
Chalmers Tekniska Högskola
Göteborg

och

Waclaw Gudowski, Jan Wallenius

Avdelningen för Kärn- och Reaktorfysik
Kungliga Tekniska Högskolan
Stockholm

1998-05-29

INNEHÅLLSFÖRTECKNING

		Sida
	<u>SAMMANFATTNING</u>	iv
1	<u>INTRODUKTION</u>	1
2	<u>ALLMÄNT OM SEPARATION OCH TRANSMUTATION (S&T)</u>	2
2.1	Radioaktiva atomslag lämpade för S&T	4
2.2	Transmutation	6
2.2.1	Fysikaliska grunder	6
2.2.2	Produkter från bestrålning med neutroner	9
2.2.3	Strålmål och bränsle	14
2.2.4	Tekniska systemlösningar	16
2.2.5	Transmutationsgrad	20
2.2.6	Energiproduktion	21
2.3	Upparbetning och separation	22
2.3.1	Separation	22
2.3.2	Vätske-vätske extraktion	22
2.3.3	Pyrometallurgi	23
2.4	Återanvändning och förluster	24
2.5	Safeguardfrågor	25
3	<u>SVENSK VERKSAMHET PÅ OMRÅDET</u>	26
3.1	S&T ur svenskt perspektiv	26
3.2	Verksamhet vid CTH	26
3.3	Verksamhet vid KTH	28
3.4	Övrig verksamhet inom landet	29
3.4.1	Uppsala Universitet	29
3.4.2	Studsvik	30
4	<u>PÅGÅENDE UTLÄNDSKA S&T PROGRAM</u>	31
4.1	Belgien	32
4.2	Frankrike	32
4.3	Indien	33
4.4	Italien	34
4.5	Japan	34
4.6	Kina	35
4.7	Nederländerna	35
4.8	Ryska Federationen	35
4.9	Spanien	36
4.10	Sydkorea	36
4.11	Tjeckien	37
4.12	USA	37
4.13	Vitryssland	38
4.14	EU	38
4.15	IAEA, OECD/NEA och CERN	39
4.15.1	IAEA	39

4.15.2	OECD	39
4.15.3	CERN	40
5	<u>SLUTSATSER UR SVENSKT PERSPEKTIV</u>	41
6	<u>LITTERATUR</u>	44
	<u>APPENDIX 1</u> Accelerator drivna underkritiska system	52
	<u>APPENDIX 2</u> Matematiska samband för systemets verkningsgrad	55
	<u>APPENDIX 3</u> Ordlista med synonymer och förklaringar	59

SAMMANFATTNING

I kärnreaktorer bildas långlivade radioaktiva atomtyper som är radiotoxiska och behöver förvaras avskilt från biosfären under en mycket lång tidsperiod. Idag finns dock möjligheten att minska avfallets långsiktiga radiotoxicitet genom att omvandla dessa långlivade atomtyper till kortlivade eller stabila atomtyper genom neutronbestrålning. Denna omvandling kallas transmutation. Genom att minska radiotoxiciteten hos avfallet kan också omfattningen och kostnaderna av ett framtida slutförvar reduceras samtidigt som bränslet utnyttjas effektivare. I själva transmutationsprocessen frigörs energi som kan omvandlas till el-energi på samma sätt som i en konventionell kraftreaktor. För att kunna transmuttera de långlivade radioaktiva atomerna i avfallet är det nödvändigt att separera ut dessa från övriga atomslag. Orsaken till detta är att fissionsprodukterna annars absorberar de neutroner som behövs för att "förbränna" de långlivade atomtyperna och man får då en ineffektiv transmutationsprocess. Dessutom kan ytterligare mängder av vissa långlivade radioaktiva atomtyper bildas vid bestrålning av klyvningsprodukter.

Möjligheten att genomföra separation och transmutation som ett led i hanteringen av använt kärnbränsle och högaktivt avfall kan idag i huvudsak anses som vetenskapligt belagd. Det är emellertid ännu för tidigt att bedöma om denna typ av avfallsbehandling har kostnadsmässiga eller säkerhetsmässiga fördelar i ett kort tidsperspektiv jämfört med nuvarande planer för hantering av använt kärnbränsle och högaktivt avfall. Neutroner från såväl termiska reaktorer som snabbreaktorer och acceleratordrivna underkritiska reaktorer kan utnyttjas för transmutation av långlivade radioaktiva atomtyper. Det bör påpekas att termiska reaktorer och snabbreaktorer har byggts och drivits med god erfarenhet under lång tid, medan acceleratordrivna reaktorer fortfarande bara finns på ritbordet. Var och en av dessa neutronkällor har sina för och nackdelar vid transmutation och passar förmodligen bäst för vissa bestämda atomtyper. Vid inbördes jämförelse är man idag överens om att transmutation i reaktortyper med högenergetiska neutroner har fördelar beträffande reduktion av den totala mängden högre aktinider parat med en relativt effektiv energiproduktion, medan reaktorer med lågenergetiska neutroner framförallt är fördelaktiga om man bara vill reducera mängden av vissa radiotoxiska atomslag och producera energi till låg kostnad. En möjlig utveckling är att man utnyttjar sammansatta system där var typ av neutronkälla har en bestämd uppgift. I sådana system utnyttjas de speciella egenskaperna hos ett acceleratordrivet system för att åstadkomma en effektiv transmutation av neptunium, americium och eventuellt curium, samt möjligen även andra atomtyper med små reaktions- $t_{1/2}$ snitt. Här är det acceleratordrivna systemet därför snarare ett komplement till mer konventionella kärnreaktorer än en ersättning för dessa.

Karakteristiskt för alla transmutationsprocesser är att de måste samverka med en lämplig kemisk separationsprocess där otransmuterat material återvinns från bestrålat material med hög verkningsgrad. Resten blir radioaktivt avfall. När man bedömer effekten hos en kombinerad separations- och transmutationsprocess finns det en stark koppling mellan återvinningsgraden i separationsprocessen, transmutationsprocessens effektivitet och förlusterna av otransmuterat material till olika avfallströmmar. Såväl vattenbaserad vätske-vätskeextraktion som olika pyrokemiska separationsmetoder har föreslagits för separationsprocessen. Kunskaperna om vattenbaserad vätske-vätskeextraktion är stora och bygger på över 40 års driftserfarenheter i industriell skala. Detta medför att man är väl medveten om såväl fördelar som problem med denna teknik. Å andra sidan måste pyrokemiska separationsmetoder för behandling av radioaktiva ämnen ännu anses vara på laborierstadiet och kräver fortfarande en omfattande utveckling av

både metoder och nya apparattyper. Detta medför att vi ännu saknar god kännedom om dessa metoders för- och nackdelar vid behandling av radioaktiva ämnen i industriell skala. Det verkar därför ännu vara allt för tidigt för att försöka jämföra vattenbaserad kemi med pyrokemi på likvärdig kunskapsgrund. Intresset för pyrokemi är för närvarande störst i USA och Ryssland medan de stora länderna inom EU samt Japan i huvudsak fortsätter att fokusera sina utvecklingsinsatser på förbättring och vidareutveckling av vattenbaserade metoder. Om separation och transmutation skall kunna bli ett realistiskt alternativ till nuvarande bränslecykler krävs fortfarande betydande och långsiktiga FoU insatser på separationstekniken.

Det är idag helt klart att separation och transmutation inte kan eliminera behovet av ett slutlager för högaktivt avfall. I ett kort tidsperspektiv kommer radioaktiviteten hos avfallet till och med att vara högre än i det klassiska fallet beroende på att långlivade atomtyper i stor utsträckning omvandlats till betydligt mer kortlivade atomslag. De kortare halveringstiderna medför å andra sidan att avfallets farlighet minskar relativt snabbt med tiden. Trots användning av en effektiv separations- och transmutationsteknik kommer avfallet att innehålla mindre mängder av mycket långlivade radioaktiva atomtyper.

Denna bearbetning av bränslet ger också i princip en möjlighet att komma åt vapenmaterial i relativt ren form, men det finns å andra sidan en något större möjlighet att utforma bränsle, strålmål eller hela acceleratordrivna system mer spridningssäkert än vad som är fallet med konventionella reaktorer och snabbreaktorer.

Även om det finns en bred vetenskaplig övertygelse om att nuvarande typer av bränslecykler i kombination med planerad avfallshantering och geologiska slutförvar kommer att ge ett tillfredsställande skydd för mänskligheten för all överskådlig framtid finns fortfarande ett betydande intresse av att undersöka om en ytterligare minskning av den framtida potentiella farligheten hos avfallet kan erhållas genom separation och transmutation och till vilken kostnad detta kan ske. En av svagheter hos nuvarande planerade slutförvar är svårigheten att förutse alla möjliga framtida händelser som skulle kunna påverka slutlagrets funktion. Styrkan hos en separations- och transmutationsprocess skulle vara att minska de möjliga framtida konsekvenserna av sådana oförutsedda händelser. Är det å andra sidan så att en utveckling av separations- och transmutationsprocesser kommer att dölja det faktum att de framtida riskerna från ett väl utfört slutlager redan bedöms som mycket små?

Redan i våra tidigare rapporter har vi påpekat att införandet av en ekonomiskt självbärande separations- och transmutationsteknik är mest sannolik i ett expanderande kärnkraftprogram. I detta sammanhang debatteras fortfarande om en ökande användning av kärnkraft med tillhörande separations- och transmutationsprocesser bör ses som ett tänkbart mål eller om separations- och transmutationsteknik kan utgöra ett mål oberoende av den framtida utvecklingen av konventionell kärnkraft. En relativt snabb global kärnkraftutbyggnad medför med säkerhet stigande priser på nytt kärnbränsle, vilket kan göra bränslehantering med upparbetning och återcyklning mer ekonomisk än idag. Snabbreaktorer och acceleratordrivna reaktorer kan då vara ekonomiskt och naturresursmässigt attraktiva eftersom de förmår utnyttja energiinnehållet i naturligt uran och torium hundrafalt bättre än dagens lättvattenreaktorer. Dagens använda kärnbränsle kan därvid tänkas övergå från att vara ett avfall till att vara en viktig råvara för fortsatt framställning av kärnenergi.

Forskning på och utvärdering av separation- och transmutation pågår idag i många industriländer och inom flera internationella organisationer på grund av dess potential som en långsiktigt uthållig, miljövänlig energikälla och på grund av dess förmåga att destruera många långlivade radioaktiva ämnen, vilket kan leda till lättare accepterbara slutlager för radioaktivt avfall. Kostnaderna för forsknings- och utvecklingsinsatserna på separation och transmutation bedöms vara så stora att de kräver internationell samverkan. I detta sammanhang kan det vara värt att observera att europeiska, ryska och japanska motiv för utveckling av separations- och transmutationstekniken tycks vara andra än de som styr utvecklingen i USA.

För svenskt vidkommande rekommenderar vi en balanserad forskningssatsning på såväl separations- som transmutationstekniken. Sverige måste bedriva egen forskning för att få insikt och framförallt för att skapa tilltro till bedömningar av den internationella utvecklingen inom separations och transmutationsområdet. Då fortsatt utbildning av högkvalificerad personal krävs så länge som landet har kvar kärnkraftanläggningar utgör forskning och utveckling på separations- och transmutationstekniken en bra grund för att kunna attrahera nya goda studenter till ämnen inom kärnkraftområdet.

På separationsområdet gäller framför allt att finna nya reagens som kan utnyttjas för att förenkla de nödvändiga separationsprocesserna och minska förlusterna till ett minimum. Kraven på stor selektivitet och små förluster blir betydligt högre i ett recirkulerande system med transmutation än i dagens uppberedningsanläggningar där enbart uran och plutonium utvinns. Eftersom förlusterna idag erfarenhetsmässigt hänger intimt samman med produktion av sekundärt avfall, från vilket aktuella ämnen endast med stor svårighet kan återvinnas, krävs att nya reagens dels producerar minsta möjliga mängd av sekundärt avfall, dels producerar sekundärt avfall av en typ som medger effektiv och enkel återvinning av medföljande långlivade radionuklider. Om utnyttjade reagens är enkelt destruerbara, till exempel genom torr eller våt förbränning till okomplicerade gasformiga kemiska föreningar, öppnas goda möjligheter till återvinning av medföljande radionuklider. Lämpliga reagens kan till exempel baseras på enbart väte, kol, syre och kväveatomer för att härigenom bli fullständigt brännbara. Genom tillämpning av modern molekylmodellering och enkla kvantmekaniska beräkningar kan design av lämpliga molekyler underlättas, men experimentella studier av deras separationsegenskaper är fortfarande nödvändiga. De begränsade insatser som idag görs inom landet bör fullföljas genom en långsiktig forskningsinsats.

Ur rent teknisk synvinkel förefaller en kombination av olika typer av reaktorsystem ge bästa möjliga transmutationseffektivitet. Medan existerande lättvattenreaktorer kan utnyttjas för utökad förbränning av plutonium finns det idag konsensus om att reaktorer med högenergetiska neutroner är nödvändiga för att uppnå tillräckligt hög transmutationseffektivitet för neptunium, americium, curium och vissa klyvningsprodukter. Natriumkylda brydreaktorer kan användas för att transmuttera neptunium och americium med hög verkningsgrad, medan transmutation av curium och långlivade klyvningsprodukter kräver andra typer av kylmedel, exempelvis flytande tungmetaller (bly, bly/vismut). Genom att låta en acceleratorbaserad neutronkälla driva en underkritisk tungmetallkyld reaktor ökar man potentialen för transmutation av klyvningsprodukter, samtidigt som man uppnår tillfredsställande säkerhetsmarginaler för vissa bränslesammansättningar med låg andel fördröjda neutroner och hög värmekonduktivitet.

Oavsett vilka typer av system man slutligen tillämpar, kan man som tumregel ange att det behövs 3-4 reaktorer med högenergetiskt neutronspektrum för att transmuttera avfall från den svenska lättvattenreaktorparken. Inriktningen på det svenska forskningsprogrammet på transmutationsanordningar kan därför tänkas fokuseras på studier av snabbreaktorsystem för transmutation, speciellt tungmetallkylda system med eller utan tillkopplad neutronproducerande accelerator. Av särskilt intresse är studier av bränsletyper lämpade för transmutation, till exempel oxider och mononitrid. Samtidigt bör man genomföra beräkningar av effektiviteten hos klyvningsproduktstransmutation i acceleratordrivna system. Som underlag krävs därvid också mätningar av mindre väl kända tvärsnitt för reaktioner av betydelse vid transmutation av vissa aktinider.

Kärnreaktioner kan i princip utnyttjas för att omvandla större delen av de långlivade radioaktiva ämnena i radioaktivt avfall till kortlivade eller stabila ämnen. Detta är intressant eftersom närvaron av långlivade radioaktiva atomslag i avfallet är orsaken till att detta kan uppfattas som en potentiell miljörisk under en mycket lång tidsperiod. De för transmutation mest attraktiva kärnreaktionerna bygger på bestrålning av utvalda grundämnen med neutroner. Bestrålningen följs sedan av separation och återcykling av oreagerat material.

Användningen av en kombination av separation och transmutation för att minska mängden av långlivade radioaktiva atomslag i avfall från kärnenergiproduktion föreslogs redan 1964 av Steinberg och medarbetare [Ste64]. Utvecklingen av separation och transmutation fram till slutet av 1980-talet har beskrivits av Croff i ett arbete publicerat 1990 [Cro90].

Transmutation genom klyvning av tunga radioaktiva atomer leder till en stor energiutveckling. En transmutationsanordning kan därför också fungera som en energiproduktionsanläggning. I ett självgående system (kritisk reaktor) kan producerad värmeenergi omvandlas till el-kraft och i huvudsak exporteras från anläggningen. I ett icke självgående system (en kombination av accelerator, strålmål och underkritisk reaktor) kommer däremot en del av den producerade el-energin att förbrukas inom anläggningen för att driva den accelerator som via strålmålet förser systemet med extra neutroner.

Intresset för separation och transmutation fick nytt liv genom teknikutvecklingen under slutet av 1980-talet och underblåstes genom en internationell konferens i Saltsjöbaden 1991 [Jam91] och genom politiska beslut i flera länder. Utvecklingen på området under 1990-talets första hälft har sammanfattats i några tidigare SKB-rapporter (på engelska). Den höga forskningsaktiviteten på området har fortsatt och i vissa fall dessutom intensifierats. Utvecklingen fram till slutet av 1997 beskrivs i denna rapport. I motsats till vad som var fallet vid tiden för tidigare engelskspråkiga översikter om separation och transmutation utgivna i SKB:s tekniska rapportserie [Skå92, Gud93, Skå95] finns nu ett flertal nya internationella översikter på engelska (till exempel [IEA97, Gud97:2]) och en omfattande rapport från OECD/NEA är under utarbetande, även denna på engelska.

Denna rapport på svenska ger grundläggande tekniska beskrivningar av transmutation och därmed förknippad separation, sammanfattar pågående arbeten i olika länder, samt ger en bedömning av den i dagsläget troligaste framtida utvecklingen på området.

På grund av det intresse som för närvarande finns för acceleratordrivna underkritiska reaktorer ges en mer detaljerad beskrivning av sådana system i appendix 1. Vi hoppas att denna kan vara till hjälp för läsare utanför fackområdet. För den matematiskt och processtekniskt intresserade redogör vi kortfattat för några viktiga samband mellan verkningsgrader och transmutationseffekt i appendix 2. Eftersom antalet facktermer är stort och förkortningarna legio har vi sammanställt en liten svensk ordlista med motsvarande engelska ord och korta förklaringar i appendix 3.

Kärnenergiproduktion bygger idag på klyvning av tunga atomkärnor, i huvudsak uranisotoper. Klyvningen leder till att värmeenergi frigörs, att nya neutroner bildas och att klyvningsprodukter bildas. Klyvningsprodukterna är en blandning av olika grundämnen från koppar till holmium. För att bränslet skall tåla de höga temperaturer som uppstår används urandioxid, UO_2 , som är en keram med en smältpunkt på ca $2860^\circ C$. Samtidigt som uranatomer klyvs sker som en bieffekt en långsam uppbyggnad av radioaktiva grundämnen med högre atomnummer än uran. Flertalet av de nybildade tunga grundämnena innehåller atomslag med lång halveringstid.

Omvandling av ett grundämne till ett eller flera andra kallas för transmutation. Av de ur uran nybildade grundämnena bidrar plutonium genom klyvning i betydande omfattning till energikutvecklingen under reaktordriften. Den ökande halten av klyvningsprodukter och den minskande halten av klyvbara atomslag medför att energiproduktionen i bränslet avtar med tiden.

Många av de nybildade ämnena konkurrerar om tillgängliga neutroner med de atomkärnor av tunga grundämnen som kan klyvas under produktion av nya neutroner. I huvudsak av dessa anledningar kan kärnbränsle bara utnyttjas för en viss total energiproduktion innan det måste ersättas av nytt. Man säger att bränslet är utbränt. Därvid har bränslet producerat en värmeenergi som brukar anges i storheten MWd/kg (megawattdygn per kg ursprungligt närvarande tungmetall, dvs oftast per kg uran i det nya bränslet). En MWd/kg motsvarar 24000 kWh/kg i form av värme. Typiska utbränningsgrader i de reaktortyper som finns i Sverige ligger idag mellan 40 och 60 MWd/kg, vilket är mer än dubbelt så mycket som i kärnkraftens barndom.

När bränslet tas ur reaktorn finns fortfarande nästan allt ursprungligt uran kvar (ca 97%), men med en förändrad isotopsammansättning. Bildade klyvningsprodukter och en stor del av bildade tunga grundämnen finns också kvar i bränslet (en icke helt betydelselös mängd av de tyngre grundämnena, till exempel plutonium, har dock klyvts).

Man har nu två handlingsmöjligheter. Antingen betraktar man hela det utbrända bränslet som ett miljöfarligt avfall vilket måste förvaras och deponeras på betryggande sätt eller så återvinner man oförbrukat uran och plutonium ur bränslet genom en kemisk separation, så kallad upparbetning. I det senare fallet kan nytt kärnbränsle framställas ur återvunnet material. Eftersom detta redan från början innehåller både uran- och plutoniumdioxid kallas det för blandoxidbränsle eller MOX-bränsle (MOX = Mixed OXide). De avskilda klyvningsprodukterna och övriga tunga grundämnen utgör högaktivt avfall från upparbetningen. I de flesta fall omvandlas detta högaktiva avfall till glas genom uppvärmning under tillsats av glasbildande ämnen. Avfallsglaset gjuts sedan i rostfria behållare med avsikt att slutdeponera dessa på liknande sätt som obehandlat utbränt bränsle.

Plutonium från utbränt MOX-bränsle består av en blandning av olika plutoniumisotoper som är något sämre som bränsle i våra vanliga kraftreaktorer än det plutonium som erhöles vid upparbetningen av det uranbaserade bränslet. Denna försämring av plutoniumkvaliteten fortskrider när plutonium återanvänds gång efter gång och begränsar antalet ekonomiskt möjliga återanvändningar till tre. På likartat sätt försämras kvaliteten hos återvunnet uran, men detta kan delvis kompenseras om det använda uranet återförs till en isotopseparationsanläggning där

det ersätter en mindre mängd natururan. Detta medför att man i fallet upparbetning och återanvändning efter några cykler erhåller använt MOX-bränsle som det inte längre lönar sig att upparbeta och omvandla till nytt bränsle för termiska reaktorer. Sådant plutonium kan dock fortfarande utnyttjas som bränsle i snabba kritiska reaktorer eller i acceleratordrivna reaktorer.

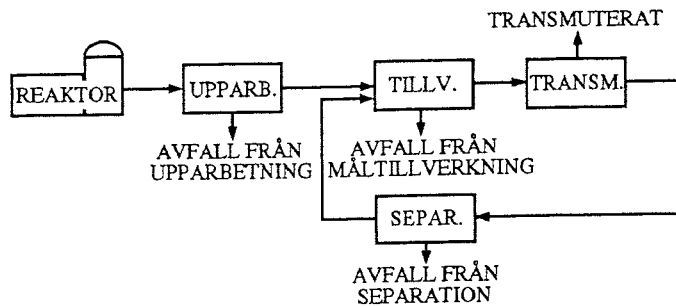
Separation av använt kärnbränsle i lämpligt valda grupper av grundämnen gör det i princip möjligt att utnyttja lämpliga kärnreaktioner för att omvandla de flesta långlivade atomtyper till kortlivade eller stabila atomer, oftast av andra grundämnen än de ursprungliga. Härigenom kan det bli möjligt att minska avfallets långtidsfarlighet. Transmutation har nu också blivit en synonym för omvandling av långlivade radioaktiva atomtyper i radioaktivt avfall till mer kortlivade atomtyper. Genom en transmutionsprocess kan eventuellt kärnkraftens avfallshandling reduceras till ett säkert omhändertagande av relativt kortlivade radioaktiva ämnen samt relativt små mängder återstående långlivade radioaktiva ämnen. Separation och transmutation är kopplade processer eftersom separation är en förutsättning för en meningsfull transmutation. Kraven på processerna är också intimt sammankopplade, se appendix 2. Däremot behöver de inte vara placerade på samma plats eller ens i samma land.

Eftersom de flesta kemiska separationsprocesser normalt inte förmår separera isotoper av ett grundämne utan bara grundämnen blir bestrålning av grundämnen med befintlig isotopsammansättning det normala alternativet för transmutionsprocessen. Isotopseparation är en möjlig men dyrbar process. Detta medför vissa begränsningar av vad som industriellt kan åstadkommas med separation och transmutation inom en given kostnadsram.

Som nämnts sker de för transmutionsprocesserna viktigaste kärnreaktionerna genom bestrålning med neutroner vilka orsakar klyvning eller neutroninfångning i bestrålade atomer. För en påtaglig minskning av långtidsfarligheten bör reaktionsprodukterna antingen vara stabila atomer eller kortlivade dito som snabbt sönderfaller till stabila atomer. Höga neutronfluenser (flöde gånger tid) krävs för tillräcklig omvandling. Önskan om en snabb omvandling leder då till krav på mycket höga neutronflöden. Av denna anledning är högflödesreaktorer eller acceleratordrivna underkritiska reaktorer intressanta i detta sammanhang men även konventionella termiska tung- och lättvattenreaktorer kan ha en viss användning.

Då reaktionstvårsnittet (sannolikheten för reaktion) är relativt små för många av de intressanta långlivade radioaktiva atomerna, möjliga neutronflöden är begränsade i storlek, och många reaktionsprodukter måste avlägsnas förr eller senare för att inte ge upphov till oönskade biprodukter, behöver man rena och återcykla de bestrålade atomerna många gånger för att uppnå en hög destruktionsgrad. Detta ställer stora krav på såväl selektivitet som verkningsgrad hos den kemiska separationsprocess som utnyttjas vid reningen av bestrålat material. Ett flertal typer av kemiska processer anses användbara. Av dessa är vattenbaserad separation idag den enda teknik där man har stor erfarenhet i industriell skala av högrening av radioaktiva ämnen med krav på mycket hög verkningsgrad.

Antalet återcyklningar som krävs bestäms av den destruktionsgrad som man önskar för enskilda långlivade radioaktiva atomtyper, destruktionsgraden under en bestrålning, och reningsprocessens verkningsgrad. De matematiska sambanden beskrivs närmare i appendix 2. Om till exempel destruktionsgraden är låg under en bestrålning måste reningsprocessens verkningsgrad vara mycket hög för att uppnå önskad reduktion av avfallets innehåll av den



Figur 1. Principiellt flödesschema för en godtycklig separations- och transmutionsprocess.

långlivade atomsorten, och vice versa. Eftersom den kemiska reningsprocessen spelar en nyckelroll bör man satsa minst lika mycket resurser på utveckling av denna som på utveckling av en lämplig bestrålningsanordning och material för bestrålning (strålmål). Figur 1 visar ett principiellt flödesdiagram för en godtycklig separations- och transmutionsprocess.

2.1 Radioaktiva atomslag lämpade för S&T

För att destruering av ett radioaktivt atomslag genom en kombination av separation och transmution med neutroner skall vara intressant krävs följande:

- Atomslaget skall vara långlivat eller leda till en sönderfallskedja som innehåller minst ett långlivat radioaktivt atomslag.
- Reaktionstvårsnittet med neutroner skall ha ett tillräckligt stort värde.
- Reaktionsprodukten (eller produkterna) skall vara stabil eller ha en mycket kortare halveringstid än det ursprungliga atomslaget.
- Reaktionsprodukten får, även om den är kortlivad, inte leda till en sönderfallskedja som innehåller något långlivat radioaktivt atomslag.
- Atomslaget skall förekomma i så stor halt i radioaktivt avfall och vara så radiotoxiskt att en rimlig minskning av dess halt i avfallet ger en påtaglig minskning av avfallets potentiella farlighet i ett långt tidsperspektiv.
- Atomslaget skall helst tillhöra ett grundämne vars övriga isotoper i aktuell blandning inte medför en påtaglig nyproduktion av långlivade radioaktiva atomslag genom bestrålningen.
- Atomslaget skall tillhöra ett grundämne som kan utvinnas kemiskt i ren form, och med hög verkningsgrad, ur radioaktivt avfall.
- Slutligen är det fördelaktigt om atomslaget kan klyvas och därigenom producera energi vars försäljning kan medverka till finansiering av separations- och

Tabell 1. Nuklider som är tänkbare kandidater för en separations- och transmutationsprocess

Nuklid	Halveringstid	Sönderfallstyp	ALI (Bq)	Övriga isotoper i högaktivt avfall [†]
<u>Aktinider</u>				
²²⁸ Th	1.913 år	α	2×10 ⁵	
²²⁹ Th	7340 år	α	2×10 ⁴	
²³⁰ Th	7.7×10 ⁴ år	α	1×10 ⁵	
²³² Th	1.41×10 ¹⁰ år	α	3×10 ⁴	
²³¹ Pa	3.28×10 ⁴ år	α	7×10 ³	
²³² U	68.9 år	α	8×10 ⁴	
²³³ U	1.59×10 ⁵ år	α	4×10 ⁵	
²³⁴ U	2.45×10 ⁵ år	α	4×10 ⁵	
²³⁵ U	7.04×10 ⁸ år	α	5×10 ⁵	
²³⁶ U	2.34×10 ⁷ år	α	5×10 ⁵	
²³⁸ U	4.47×10 ⁹ år	α	5×10 ⁵	
²³⁷ Np	2.14×10 ⁶ år	α	3×10 ³	
²³⁸ Pu	87.7 år	α	3×10 ⁵	
²³⁹ Pu	2.41×10 ⁴ år	α	2×10 ⁵	
²⁴⁰ Pu	6570 år	α	2×10 ⁵	
²⁴¹ Pu	14.4 år	α	1×10 ⁷	
²⁴² Pu	3.76×10 ⁵ år	α	3×10 ⁵	
²⁴⁴ Pu	8.26×10 ⁷ år	α	3×10 ⁵	
²⁴¹ Am	432.1 år	α	5×10 ⁴	
^{242m} Am	152 år	γ	5×10 ⁴	
²⁴³ Am	7380 år	α	5×10 ⁴	
²⁴² Cm	162.8 d	α	2×10 ⁶	
²⁴³ Cm	28.5 år	α	7×10 ⁴	
²⁴⁴ Cm	18.11 år	α	9×10 ⁴	
²⁴⁵ Cm	8500 år	α	5×10 ⁴	
²⁴⁶ Cm	4730 år	α	5×10 ⁴	
²⁴⁷ Cm	1.56×10 ⁷ år	α	5×10 ⁴	
²⁴⁸ Cm	3.39×10 ⁵ år	α	1×10 ⁴	
²⁵⁰ Cm	9000 år	SF	saknas	
<u>Mycket långlivade klyvningsprodukter</u>				
⁸⁷ Rb	4.8×10 ¹⁰ år	β ⁻	4×10 ⁷	85(s)
⁹⁹ Tc	2.13×10 ⁵ år	β ⁻	1×10 ⁸	inga
¹⁰⁷ Pd	6.5×10 ⁶ år	β ⁻	1×10 ⁹	104(s), 105(s), 106(s), 108(s), 110(s)
¹²⁹ I	1.57×10 ⁷ år	β ⁻	2×10 ⁵	127(s)
¹³⁵ Cs	2.3×10 ⁶ år	β ⁻	3×10 ⁷	133(s), 134(k), 137(k)
<u>Måttligt långlivade klyvningsprodukter</u>				
⁹⁰ Sr	28.8 år	β ⁻	1×10 ⁶	86(s), 87(s), 88(s)
¹³⁷ Cs	30.1 år	β ⁻	4×10 ⁶	133(s), 134(k), 135(l)
<u>Långlivade aktiveringsprodukter</u>				
⁹³ Zr	1.5×10 ⁶ år	β ⁻	5×10 ⁷	90(s), 91(s), 92(s), 94(s), 96(s)

[†]) Beteckningar inom parentes, s = stabil, k = relativt kortlivad, l = långlivad

transmutationsprocesserna.

I huvudsak är det bara tunga grundämnen i aktinidserien som i en rimlig utsträckning uppfyller samtliga krav. Tabell 1 sammanfattar de långlivade atomslag som är tänkbara kandidater för en separations- och transmutations process. I tabellen anges även vilka övriga isotoper av respektive grundämne som normalt förekommer i utbränt bränsle från vanliga kärnkraftverk.

2.2 Transmutation

I princip kan transmutation av ett grundämne till ett eller flera andra, eller i mer begränsad mening en isotop av ett grundämne till en annan isotop av samma grundämne, ske genom bestrålning med neutroner, högenergetiska gammakvanta eller laddade partiklar, vilket leder till en ändrad sammansättning hos atomkärnan.

Eftersom neutronbestrålning idag anses vara mest gynnsamt koncentreras diskussionen till denna partikeltyp. Atomkärnan tar upp en neutron och blir härigenom tyngre. I många fall är den nybildade atomkärnan instabil och sönderfaller radioaktivt under utsändande av en högenergielektron, en heliumkärna eller klyvs i två mindre delar om den från början är så stor att en klyvning medför energiutveckling. Transmutation av uran och plutonium till klyvningsprodukter med hjälp av neutroner sker rutinmässigt i kärnkraftverk.

2.2.1 Fysikaliska grunder

Atomkärnors egenskaper bestäms av deras sammansättning med avseende på antal protoner (definierar grundämnet) och antal neutroner. Summan av dessa partiklar ger atomens vikt. Denna är alltid nära ett heltal atomviktsenheter (atomviktsenhet = $1/12$ av massan hos atomen ^{12}C). Detta heltal kallas för masstal och är samma talvärde som totala antalet protoner och neutroner i atomkärnan. Då vi kan ha något olika antal neutroner vid ett givet antal protoner (ett grundämne) finns det atomer av grundämnet som har olika masstal. Sådana atomer kallas isotoper av grundämnet. En eller flera av grundämnets isotoper är oftast stabila medan övriga sönderfaller radioaktivt med en halveringstid som är karakteristisk för kärnans sammansättning. Genom det radioaktiva sönderfallet omvandlas atomkärnan till en annan, och mer stabil, sammansättning. Samtidigt ändras oftast grundämnet genom att antalet protoner ökar eller minskar. Förändringar av dessa slag leder förr eller senare till en stabil atomkärna. När de radioaktiva förändringarna sker genom utsändning av högenergielektroner, β -partiklar, förblir masstalet konstant. Man säger att sådana atomer tillhör en isobarkedja.

Reaktionshastigheten, dN/dt , uttryckt som reagerande (försvunna) atomkärnor per tidsenhet i ett tunnt strålmål ges av följande ekvation

$$dN/dt = - (\phi \sigma_0 + \lambda_0) N_0 e^{-(\phi \sigma_0 + \lambda_0) t} \quad (1)$$

där ϕ är flödet av partiklar per yta och tidsenhet (enhet $\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$), σ_0 är totala reaktionstvårsnittet hos kärnan i en målatom (m^2), λ_0 är sönderfallskonstanten (s^{-1}) ($\lambda_0 = \ln(2)/t_{1/2}$ där $t_{1/2}$ är halveringstiden i sekunder för aktuellt atomslag om detta är radioaktivt, för stabila atomslag är $\lambda_0 = 0$), N_0 är ursprungligt antal målatomer som befann sig i partikelflödet vid bestrålningens början och t är bestrålningstiden (s). Återstående antal atomer, N , vid tiden t ges av sambandet.

$$N = N_0 e^{-(\phi \sigma_0 + \lambda_0) t} \quad (2)$$

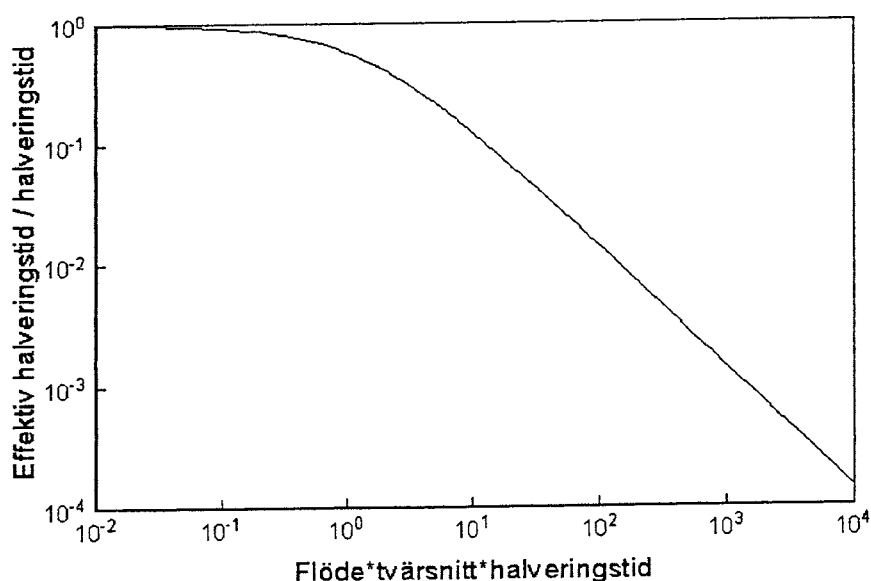
Reaktionstvårsnittet är mycket små, men detta kan kompenseras av ett högt värde på partikelflödet och en lång bestrålningstid. Neutronflöden i storleksordningen $10^{17} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ är vanliga i kraftreaktorer och tiden kan vara år. Observera att tiden i ekvation 2 skall uttryckas i sekunder. Ekvation 2 kan uppfattas som att det bestrålade atomslaget får en effektiv halveringstid i partikelflödet som är $\ln(2)/(\phi \sigma_0 + \lambda_0)$ sekunder. För att bestrålningen skall kunna påskynda det naturliga sönderfallet måste produkten $\phi \sigma_0$ vara av samma storleksordning eller större än λ_0 . Om $\phi \sigma_0 \ll \lambda_0$ sker ingen nämnvärd transmutation genom bestrålningen utan praktiskt taget alla atomer sönderfaller radioaktivt oberoende av om de bestrålas eller ej. Detta syns i Figur 2 där förhållandet mellan effektiv halveringstid under bestrålning och vanlig halveringstid anges för olika värden på produkten av partikelflöde ($\text{m}^{-2} \text{ s}^{-1}$), totalt reaktionstvårsnitt (m^2) och halveringstid (s).

Då även reaktionsproduktens atomer kommer att bestrålas med aktuellt partikelflöde så länge produkten finns kvar i flödet och därigenom kan reagera vidare med projektilerna gäller följande uttryck för antalet produktatomer, N_p , efter bestrålningstiden t .

$$N_p = \{(\phi \sigma_{0r} N_0)/[\phi (\sigma_p - \sigma_0) + \lambda_p - \lambda_0]\} \{e^{-(\phi \sigma_0 + \lambda_0) t} - e^{-(\phi \sigma_p + \lambda_p) t}\} \quad (3)$$

där index p anger data för produktatomerna, index 0 anger data för det ursprungliga atomslaget och σ_{0r} är tvärsnittet för de transmutationsreaktioner i det ursprungliga atomslaget som leder till bildning av den betraktade produkten. Om produkten bildas genom neutroninfångning är således σ_{0r} tvärsnittet för denna process medan σ_0 och σ_p är totala tvärsnitten för alla reaktioner med respektive atomslag. Bildas produkten genom klyvning av det ursprungliga atomslaget är σ_{0r} tvärsnittet för klyvning gånger sannolikheten för bildning av den aktuella klyvnings-produkten.

Laddade partiklar och gammakvanta har normalt små reaktionstvårsnitt, ofta av storleksordningen 10^{-31} m^2 , varför bestrålning med dessa är mindre attraktivt för transmutations-



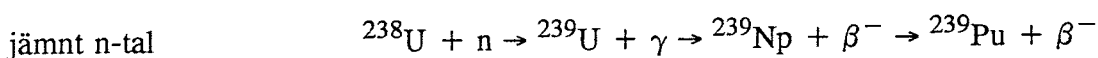
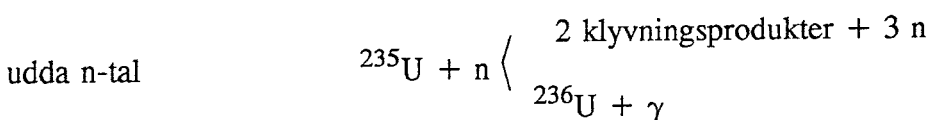
Figur 2. Inverkan av flöde, tvärsnitt och halveringstid på förhållandet mellan effektiv och normal halveringstid.

ändamål då extremt höga partikelflöden och höga partikelenergies skulle krävas för en rimlig reaktionshastighet.

Tvårsnittet för reaktion med långsamma neutroner är relativt högt och detta sjunker sedan med ökande hastighet. Vid låga hastigheter är tvårsnittet normalt omvänt proportionellt mot neutronernas hastighet. I området med medelhöga neutronhastigheter har reaktionstvårsnittet ett komplicerat beroende av hastigheten med omväxlande höga och låga värden, men vid mycket höga neutronhastigheter blir tvårsnittet vanligen nära konstant i storleksordningen 10^{-28} m^2 .

När en atom har fångat in en relativt lågenergetisk neutron uppstår en ny kärna som har ett energiöverskott. För de flesta atomkärnor stabiliseras den nya kärnan permanent eller tillfälligt genom att energiöverskottet utsänds i form av elektromagnetisk strålning, ett gammakvantum. För grundämnen med högre atomnummer än bly kan den nya kärnan också brista i två något olika stora fragment, kärnklyvning. Gammautsändning och kärnklyvning är här två konkurrerande processer. Detta beskrivs med två reaktionstvårsnitt, ett för gammautsändning ($\sigma_{n,\gamma}$) och ett för klyvning ($\sigma_{n,f}$). Totala reaktionstvårsnittet är då summan av dessa och tvårsnitten för spridning etc.

Aktinidatomer med udda antal neutroner i kärnan har stora reaktionstvårsnitt för klyvning med långsamma neutroner (storleksordning 10^{-25} m^2) medan aktinidatomer med jämnt antal neutroner i kärnan har små tvårsnitt för klyvning med långsamma neutroner. Båda typerna av atomer har ett måttligt stort reaktionstvårsnitt för infångning av en sådan neutron följt av energiutsändning i form gammastrålning (storleksordning 10^{-26} m^2). Klyvning och infångning är två konkurrerande processer. Detta medför att långsamma neutroner oftast klyver aktinidkärnor med udda neutronantal medan aktinidkärnor med jämnt neutronantal i stället bygger in neutronen och härigenom ökar sin vikt med en massenhet. Om den nya kärnan nu har fått för många neutroner kommer den att omvandlas under utsändande av en högenergielektron till en atomkärna av nästa högre grundämne. Detta kan illustreras med följande reaktioner som sker under drift av en kraftreaktor.



I detta exempel är ${}^{239}\text{U}$, ${}^{239}\text{Np}$ och ${}^{239}\text{Pu}$ en isobarkedja. Den radioaktiva omvandlingen från ${}^{239}\text{U}$ till ${}^{239}\text{Pu}$ går fort då ${}^{239}\text{U}$ och ${}^{239}\text{Np}$ är kortlivade. ${}^{235}\text{U}$, ${}^{236}\text{U}$, ${}^{238}\text{U}$ och ${}^{239}\text{Pu}$ är alla mycket långlivade och omvandlas sakta radioaktivt under utsändande en heliumatom (α -partikel). Då ${}^{239}\text{Pu}$ har ett udda antal neutroner kan den reagera på liknande sätt som ${}^{235}\text{U}$, det vill säga antingen klyvas eller bilda ${}^{240}\text{Pu}$.

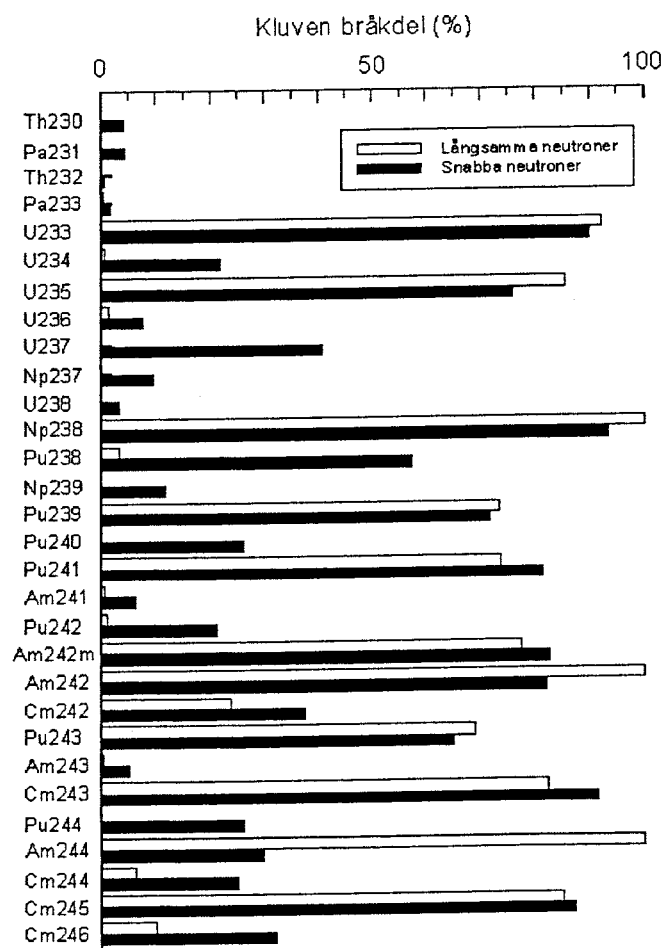
Grundämnen med något lägre atomnummer än aktiniderna kan inte klyvas med neutroner av normala energier utan vi får här bara infångning, vilket kan leda till isobarkedjor. Reaktionstvårsnitten är då av storleksordningen $10^{-29} - 10^{-27} \text{ m}^2$. Denna stegvisa uppbyggnad av högre grundämnen anses också ske i vissa stadier av stjärnors utveckling och anses vara en av huvudorsakerna till att det förekommer grundämnen på jorden med högre atomnummer än

järn.

I de flesta fall leder neutroninfångning i atomkärnan hos ett lättare grundämne till att den nya kärnan har en kortare halveringstid än den ursprungliga kärnan, men många undantag finns. Detta fenomen kan utnyttjas för att omvandla många instabila atomkärnor med långa halveringstider till mer kortlivade kärnor, vilka därigenom snabbare omvandlas spontant till stabila atomkärnor.

2.2.2 Produkter från bestrålning med neutroner

Ekvation (2) beskriver hur mängden av ett atomslag förändras genom bestrålning med neutroner under en given tid. Det reaktionstvärnsnitt som skall användas är summan av reaktionstvärnsnitten för infångning, $\sigma_{n,\gamma}$, och för klyvning, $\sigma_{n,f}$. Data ges i tabellerna 2 och 3 för ett antal utvalda atomslag och några typiska neutronflödestyper. Resultatet av en bestrålning blir således en blandning av klyvningsprodukter och olika aktinidatomer (gamla och nya). Andelen som klyvs kan uppskattas ur kvoten $\sigma_{n,f}/(\sigma_{n,f} + \sigma_{n,\gamma})$ och andelen som undergår neutroninfångning ur $\sigma_{n,\gamma}/(\sigma_{n,f} + \sigma_{n,\gamma})$, se Figur 3.



Figur 3. Andelen fission av samtliga reaktioner vid neutronbestrålning av några viktiga aktinidatomtyper.

Tabell 2. Reaktionstvårsnitt med termiska neutroner för olika typer av aktinidatomer

	$t_{1/2}$	$\sigma_{n,\gamma} (10^{-28} \text{ m}^2)$	$\sigma_{n,\gamma m} (10^{-28} \text{ m}^2)$	$\sigma_{n,f} (10^{-28} \text{ m}^2)$
^{227}Ac	21.8 a	890		2.9×10^{-4}
^{227}Th	18.72 d			200
^{228}Th	1.913 a	123		0.3
^{229}Th	7340 a	54		30.5
^{230}Th	77000 a	23.2		0.0012
^{231}Pa	32500 a	210		0.010
^{232}Th	1.405×10^{10} a	7.32		2.5×10^{-6}
^{232}Pa	1.310 d	464		700
^{232}U	68.90 a	74.9		77
^{233}Th	22.30 m	1500		15
^{233}Pa	26.97 d	19	20	0.1
^{233}U	159200 a	45.5		529.1
^{234}Th	24.1 d		1.8	0.01
^{234m}Pa	1.170 m			500
^{234}Pa	6.700 h			5000
^{234}U	245500 a	99.8		0.6
^{235}U	7.038×10^8 a	98.3		582.6
^{236}U	23420000 a	5.11		0.07
^{237}U	6.750 d	443		0.35
^{237}Np	2140000 a	176		0.0215
^{238}U	4.468×10^9 a	2.68		4.0×10^{-6}
^{238}Np	2.117 d			2088
^{238}Pu	87.7 a	540		17.9
^{239}U	23.45 m	22		14
^{239}Np	2.357 d	36	32	
^{239}Pu	24110 a	269		748.1
^{240}Pu	6563 a	289.5		0.06
^{241}Pu	14.35 a	358		1010
^{241}Am	432.2 a	533	54	3.2
^{242}Pu	373300 a	18.5		0.2
^{242m}Am	141 a	2000		6950
^{242}Am	16.02 h			2100
^{242}Cm	162.8 d	16		5
^{243}Pu	4.956 h	87		196
^{243}Am	7370 a	75.1	3.8	0.184
^{243}Cm	29.1 a	130		617
^{244}Pu	80800000 a	1.7		
^{244m}Am	26.0 m			1600
^{244}Am	10.1 h			2300
^{244}Cm	18.1 a	15.2		1.04
^{245}Pu	10.5 h	150		
^{245}Cm	8500 a	369		2145
^{246}Cm	4730 a	1.22		0.14
^{247}Cm	15600000 a	57		82
^{248}Cm	340000 a	2.6		0.37
^{249}Cm	64.15 m	1.6		
^{249}Bk	320.0 d	746		
^{249}Cf	351.0 a	497		1642
^{250}Bk	3.217 h	350		960
^{250}Cf	13.08 a	2034		
^{251}Cf	898 a	2850		4895
^{252}Cf	2.645 a	20.4		32
^{253}Cf	17.81 d	17.6		1300
^{253}Es	20.47 d	5.8	178	
^{254m}Es	39.3 h			1826
^{254}Es	275.7 d	28.3		1966
^{254}Fm	3.240 h	76		1324
^{255}Es	39.8 d	55		
^{255}Fm	20.07 h	26		3360
^{256}Fm	157.6 m	45		
^{257}Fm	100.5 d			2950

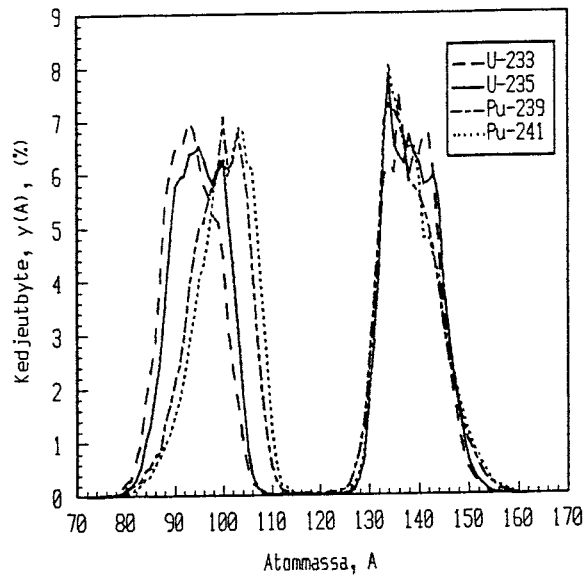
Tabell 3. Reaktionstvårsnitt för olika aktinidatomer med 60 keV neutroner i en metallkyld acceleratordriven reaktor

	$t_{1/2}$	$\sigma_{n,\gamma} (10^{-28} \text{ m}^2)$	$\sigma_{n,\gamma m} (10^{-28} \text{ m}^2)$	$\sigma_{n,f} (10^{-28} \text{ m}^2)$
^{230}Th	77000 a	0.391		0.017
^{231}Pa	32500 a	3.953		0.184
^{232}Th	1.405×10^{10} a	0.578		0.004
^{233}Pa	26.97 d	1.630		0.029
^{233}U	159200 a	0.365		3.304
^{234}U	245500 a	0.913		0.256
^{235}U	7.038×10^8 a	0.739		2.355
^{236}U	23420000 a	0.786		0.065
^{237}U	6.750 d	0.850		0.588
^{237}Np	2140000 a	2.210		0.235
^{238}U	4.468×10^9 a	0.531		0.019
^{238}Np	2.117 d	0.275		4.021
^{238}Pu	87.7 a	0.824		1.126
^{239}Np	2.357 d	2.774		0.371
^{239}Pu	24110 a	0.820		2.085
^{240}Pu	6563 a	0.847		0.305
^{241}Pu	14.35 a	0.701		3.103
^{241}Am	432.2 a		2.570	0.178
^{242}Pu	373300 a	0.698		0.192
^{242m}Am	141 a	0.813		3.941
^{242}Am	16.02 h			
^{242}Cm	162.8 d	0.801		0.484
^{243}Pu	4.956 h	0.578		1.086
^{243}Am	7370 a	2.381		0.130
^{243}Cm	29.1 a	0.355		3.920
^{244}Pu	80800000 a	0.433		0.154
^{244}Am	10.1 h	0.770		0.330
^{245}Cm	8500 a	0.468		3.295
^{246}Cm	4730 a	0.368		0.176

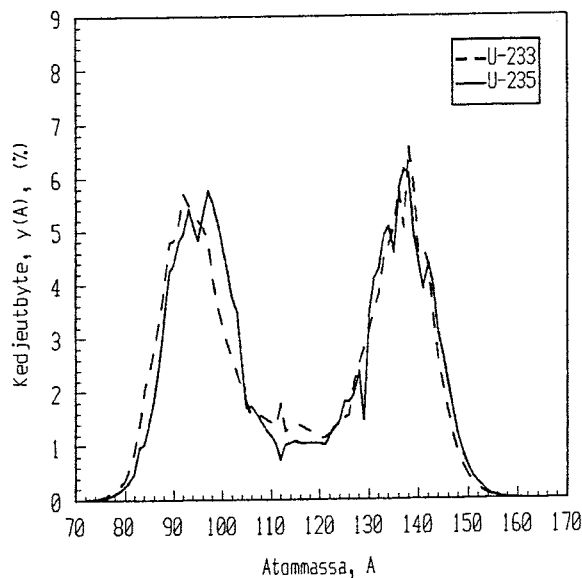
Då klyvning och neutroninfångning i aktinidatomer konkurrerar bildas både klyvningsprodukter och tyngre atomer. En beräkning av de mängder och typer av klyvningsprodukter som bildas är relativt komplicerad. Detta beror på att var atomtyp som klyvs med en neutron av en viss energi ger en unik fördelning av produktatomer. Vanligen beskrivs detta med följande ekvation.

$$y_{A,Z} = y_A s^{-1} (2\pi)^{-1/2} e^{-(Z-Z_p)^2/(2s^2)} \quad (4)$$

Här betecknar $y_{A,Z}$ bråkdelen av klyvningar som leder till atomer av grundämnet med ordningstalet Z och atommassan A , y_A är bråkdelen av alla klyvningar som ger atomer med massan A , även kallat kedjeutbytet, s är en breddparameter som anger hur stor spridningen är med avseende på Z vid aktuellt A och Z_p är det mest sannolika atomnumret för massan A . Z_p har värden som nästan uteslutande leder till neutronrikare atomer än de som är stabila vid samma massa. Följaktligen kommer de flesta klyvningsprodukter att vara radioaktiva och utsända β -strålning när de omvandlas till mer stabila atomer. De tre ingående parametrarna, y_A , s och Z_p beräknas ur mätningar av produkternas mängder vid klyvning under väl definierade betingelser och anges normalt i tabellform för olika A och en given kluven atomtyp. Fördelningen av totalmängden produkter vid en given atommassa, y_A , som funktion av A uppvisar oftast två maxima vid klyvning av de aktinider som är mest intressanta att transmuttera. Några typexempel ges i Figur 4. Som framgår av figuren får man olika mängder av respektive massa när olika aktinidatomer klyvs. Största skillnaderna observeras för de lättaste klyvningsprodukterna. Då en kluven aktinidatom alltid ger två klyvningsproduktsatomer så summerar samtliga kedjeutbyten



Figur 4. Fördelning på olika massor av produkter från klyvning av några aktinidisotoper med termiska neutroner.



Figur 5. Fördelning på olika massor av produkter från klyvning av ^{233}U och ^{235}U med 14 MeV neutroner.

till 200% eftersom antalet atomer fördubblas. Av figuren framgår också att det finns klara skillnader i mängden av vissa lätta massor. Som exempel ger klyvning av ^{241}Pu ungefär halva produktionen av massan 90 jämfört med klyvning av ^{235}U . Då kedjan med massa 90 leder till den relativt långlivade ^{90}Sr blir producerad mängd av denna beroende av vilka aktinidatomer som klyvts. Kurvorna i Figur 4 gäller vid klyvning med termiska neutroner. Vid klyvning med mer och mer högenergetiska neutroner ändrar kurvorna mer och mer utseende. I första hand genom att värdena i minimet runt massan 120 ökar på bekostnad av övriga höga värden. Samtidigt sker en mindre breddning av figuren genom att de nedre och övre gränserna förskjuts något nedåt respektive uppåt i massa. Figur 5 illustrerar detta förhållande genom att visa

kedjeutbyten vid en hög neutronenergi (14 MeV) för samma uranisotoper som i Figur 4. Följaktligen blir sammansättningen av klyvningsproduktblandningen beroende av vilka aktinidatomslag som förekommer i bestrålat material, deras relativa förekomst i materialet och energin på använda neutroner.

Neutroninfångning leder till atomer med högre massa. När en tillräckligt hög massa uppnåtts kommer den nybildade atomen av det aktuella grundämnet att sönderfalla radioaktivt till nästa högre grundämne under utsändning av β -strålning. Ett exempel på denna process har redan givits tidigare där ^{238}U genom neutroninfångning bildar den kortlivade ^{239}U som sedan sönderfaller under utsändning av β -strålning till ^{239}Pu via ett mellanstadium som ^{239}Np .

Mängden av en första neutroninfångningsprodukt efter en given bestrålningsstid, N_p , kan beräknas med hjälp av ekvation (3).

Uppbyggnad av tyngre atomer sker inte bara bland aktiniderna utan även i de klyvningsprodukter som bildas vid bestrålning av tunga grundämnena. Detta medför en långsam förändring av sammansättningen hos blandningen av klyvningsprodukter. I vissa fall bildas därvid nya radioaktiva atomtyper från de stabila som härstammar från radioaktivt sönderfall av kortlivade klyvningsprodukter i en masskedja. Ett typiskt exempel är den måttligt långlivade cesiumisotopen ^{134}Cs ($t_{1/2}$ 2.06 år, $\sigma_{n,\gamma}$ 1.4×10^{-26} m²). Primärt bildade klyvningsprodukter i masskedjan 134 leder relativt snabbt (via β -sönderfall) till den stabila xenonisotopen ^{134}Xe . Ingenting når därför fram till ^{134}Cs som ligger senare i denna masskedja. Radioaktiva sönderfall i masskedjan 133 leder däremot relativt snabbt till bildning av den stabila cesiumisotopen ^{133}Cs . Sedan ger neutroninfångning i ^{133}Cs ($\sigma_{n,\gamma}$ 2.9×10^{-27} m²) bildning av den radioaktiva ^{134}Cs . En mycket kort dusch av en stor mängd neutroner på en aktinid, till exempel ^{233}U , leder därför till att nästan inget ^{134}Cs bildas medan en lång bestrålningsstid med samma mängd neutroner ger påtagliga mängder av ^{134}Cs . Ytterligare bestrålning av ^{134}Cs leder sedan till bildning av den mycket långlivade ^{135}Cs ($t_{1/2}$ 2×10^6 år, $\sigma_{n,\gamma}$ 8.7×10^{-28} m²). I andra fall sker däremot en långsam omvandling av relativt långlivade radioaktiva klyvningsprodukter till kortlivade som snabbt sönderfaller till stabila atomer. Ett exempel på detta är ^{90}Sr ($t_{1/2}$ 28.5 år, $\sigma_{n,\gamma}$ 9×10^{-29} m²), som bildas vid sönderfall av andra kortlivade föregångare i masskedjan 90. Vid neutroninfångning i ^{90}Sr bildas den kortlivade ^{91}Sr ($t_{1/2}$ 9.5 timmar) som sönderfaller via ^{91}Y ($t_{1/2}$ 58.5 dygn) till stabil ^{91}Zr . De korta halveringstiderna för mellanprodukterna medför att dessa uppträder i mycket små mängder om inte neutronflödet är mycket högt (ϕ i ekvation 2). En liten mängd leder i sin tur till en mycket liten mängd av nästa neutroninfångningsprodukt.

Även om vissa enklare överslagsberäkningar kan ske för hand leder problemets omfattning till att beräkningar av sammansättningen efter neutronbestrålning normalt sker med hjälp av datorprogram och omfattande bibliotek över olika atomers egenskaper.

Vanligen använder man ett programpaket för beräkning av neutronspektrum och effektiva transmutationstvärnsnitt och ett annat för utbränningsberäkningar. Behovet av ett specialanpassat program för transmutationsberäkningar har under de senaste åren lett till framtagandet av flera nya datorprogram för detta ändamål.

Genom förekomsten av olika konkurrerande processer erhålls ofta en optimal produktblandning om bestrålningen av det material som skall transmutteras sker under kort tid och med relativt lågt

flöde av enbart högenergetiska neutroner. Denna följs sedan av en kemisk separation av produkter (avfall) och oreagerat material varefter det oreagerade materialet återförs för ytterligare bestrålning. Tyvärr leder detta till en relativt stor förlust av icke transmuterat material till avfallet (se appendix 2). Tiden för en rimlig transmutationsgrad blir dessutom mycket lång, vilket ger ett stort inventarium av otransmuterat material som cirkulerar i systemet. Dessa förhållanden medför att en kompromiss måste göras mellan använd neutronenergi, transmutationshastighet, produktsammansättning, bestrålningstid mellan separationerna och förluster av otransmuterat material till avfallet. Detta diskuteras närmare i nästa avsnitt.

2.2.3 Strålmål och bränsle

Det material som skall bestrålas för att minska mängd och/eller halveringstid är per definition radioaktivt, se Tabell 1. Av denna anledning måste det vara väl inneslutet för att hindra spridning till omgivningen. Radioaktiva ämnen producerar alltid energi som omvandlas till värmeenergi dessutom leder kärnreaktionerna under bestrålningen också till värmeutveckling, varför det bestrålande materialet måste kunna kylas effektivt. I det följande avsnittet kommer i huvudsak bara fysikaliska och kemiska egenskaper att diskuteras. De nukleära egenskaperna såsom neutronmultiplikation, kriticitet, etc. kommer att behandlas i senare avsnitt.

Bestrålningen sker normalt med materialet i flytande eller fast form. Då utformningen av bestrålningsanordningen, inneslutningen och hanteringen av bestrålat material blir olika beroende på om strålmålet är flytande eller fast kommer dessa alternativ att behandlas var för sig.

Flytande ämnen som strålmål. Flytande strålmål kan vara ett rent flytande ämne, till exempel en metallsmälta, eller en lösning av det ämne som skall bestrålas i ett lämpligt lösningsmedel, till exempel ett smält salt. En fördel med flytande strålmål är att detta även kan fungera som kylmedel varför ett särskilt kylmedel för strålmålet blir onödigt. En generell nackdel med flytande strålmål är att brott eller läckage i det inneslutande tank- och rörsystemet lätt leder till spridning av höggradigt radioaktivt material inom anläggningen.

Rena metallsmältor har fördelen av stort antal atomer per volymenhet, vilket ger stora värden på antalet bestrålande atomer per volymenhet, stort N_0 per volymenhet i ekvationen för reaktionshastigheten. Man får härigenom största möjliga transmutationshastighet vid en given volym. Metallsmältor är också fysikaliskt resistent mot effekterna av partikelflöde och utsänd strålning genom att upptagen energi snabbt och fullständigt övergår till värmeenergi. Graden av omvandling genom kärnreaktioner som kan tolereras utan rening av smältan bestäms till stor del av lösligheten av de bildade reaktionsprodukterna och av hanteringsmöjligheterna med hänsyn till den resulterande strålnivån. En allmän fördel med smälta metaller är deras stora förmåga att transportera värme. Metallsmältan måste inneslutas i ett tättslutande system av tankar och ledningar för att undvika spridning av radioaktivt material till omgivningen. Materialet i dessa måste kunna klara aktuella partikelflöden, strålnivåer, temperaturer och inte påverkas av den inneslutna metallsmältan eller reaktionsprodukterna i denna.

Lösningar av det ämne som skall bestrålas leder till ett lägre antal bestrålande målatomer per volymenhet och härigenom till en lägre reaktionshastighet per volymenhet. Lösningsmedel i form av molekylära vätskor, till exempel vatten, kan användas men är mindre lämpade än metaller och saltsmältor. Detta beror på att upptagen strålningsenergi i viss omfattning leder till sönderdelning av molekylära vätskor. I fallet vatten bildas vätgas, syrgas, väteperoxid, fria

radikaler, mm. Metall- och jonsmältor ger i huvudsak omvandling av upptagen strålningsenergi till värme. Fördelen med en lösning är att antalet atomer per volymenhet av det ämne som skall undergå avsedda kärnreaktioner lätt kan påverkas. Härigenom kan energiproduktionen per volymenhet styras, halterna av reaktionsprodukter hållas på en rimlig nivå och lösligheten av produkterna vara tillräckligt hög vid lämpligt val av lösningsmedel. Andra egenskaper såsom smältpunkt, viskositet och värmetransportförmåga kan också påverkas genom val av lösningsmedel och halt. Härigenom kan i princip relativt stora omvandlingsgrader av målämnets atomer tolereras. Valet av lösningsmedel styrs också av dess korrosionsegenskaper gentemot de material som kan användas i inneslutande tankar och rörsystem.

Flytande strålmål medger en kontinuerlig rening och tillförsel av nytt material. Härigenom kan strålmålet ges konstant sammansättning, vilket underlättar den kärnfysikaliska dimensioneringen. Som framgår av appendix 2 leder dock en kontinuerlig rening av strålmålet till större relativa förluster av oreagerat material än diskontinuerlig rening.

Fasta ämnen som strålmål. Vid användning av fasta ämnen måste normalt strålmålet uppdelas i diskreta enheter. Uppdelningen är nödvändig för att medge kylning via ett omgivande kylmedium. Då enheterna kommer att innehålla stora mängder radioaktiva ämnen bör de kapslas in i lämpligt material. Inkapslingen sker dels för att hindra växelverkan mellan inneslutet material och omgivande kylmedel dels för att hindra att bestrålat material och reaktionsprodukter kommer ut i kylmedlet. Genom att sammansättningen av det fasta strålmålet ändras när reaktionsprodukter bildas leder detta efter hand till form- och volymändringar. Sådana förändringar medför en mekanisk belastning på kapslingen vilket begränsar den mängd som kan tillåtas reagera. Kapslingsmaterialet utsätts också för bestrålning med de partiklar (vanligen neutroner) som används för att driva kärnreaktionerna i målaterialet. Härigenom förändras sammansättningen hos kapslingsmaterialet långsamt samtidigt som dess mekaniska egenskaper förändras. Ofta leder detta till en liten volymökning och relativt kraftig försprödning. Slutligen kan större halter av transmutationsprodukter leda till kemiska reaktioner med kapslingen.

Den vanligaste geometriska formen hos kapslade fasta strålmål är långsmala cylindrar, men även prismor och kulor förekommer. Själva strålmålet måste ha en kemisk form som är stabil under bestrålningsbetingelserna, ha en hög smältpunkt och en rimlig värmeledningsförmåga. Vidare måste den kemiska formen hos strålmålet vara sådan att den inte leder till en oönskad kemisk eller fysikalisk växelverkan med kapslingsmaterialet. Vanliga kemiska former hos kapslade fasta strålmål är oxider, nitrider och karbider. I äldre reaktorer förekom även metalliskt bränsle. Liksom flytande strålmål kan vara lösningar i ett inert lösningsmedel kan fasta strålmål bestå av en blandning mellan målämnet och ett inert fyllnadsmaterial. Genom utspädning med inert material kan energiutvecklingen per volymenhet minskas och värmeledningsförmågan ändras. Kapslingsmaterialet måste i sin tur tåla en stor dos av aktuella partiklar och uppträda inert mot omgivande kylmedel.

Strålmålen uttages ur bestrålningsanordningen efter en lämplig omvandlingsgrad av målämnet. För att kunna genomföra en separation mellan reaktionsprodukter och oreagerat målmaterial måste oftast kapslingen skiljas från innehållet. Avkapslingen kan ske antingen kemiskt eller mekaniskt. Det senare är vanligast då en mekanisk avkapsling normalt ger mindre radioaktivt kapslingsavfall. Samband mellan omvandlingsgrad under bestrålningen, kemisk återvinningsgrad för oreagerat material, förluster, etc. och mängden bestrålat material som blir radioaktivt avfall

ges i appendix 2.

2.2.4 Tekniska systemlösningar

Som framgått ovan är neutroner de mest attraktiva partiklarna för omvandling av atomer genom partikelbestrålning. I grova drag kan man urskilja fem typer av möjliga systemlösningar och dessutom finns explosiva system. En kort beskrivning av samtliga alternativ ges nedan.

Termiska reaktorer. Termiska kärnreaktorer är kritiska självgående system, det vill säga produktion och konsumtion av neutroner balanserar varandra exakt under drift med konstant energiutveckling. Reactorerna kallas termiska eftersom de har ett lågenergetiskt neutronspektrum. Detta åstadkoms genom att högenergetiska neutroner från kärnklyvningen bromsas till lägre fart med hjälp av en moderator. Detta ger ett förhållandevis mjukt neutronspektrum, det vill säga huvuddelen av neutronerna har energier som motsvarar termisk jämvikt med omgivningen. Av denna anledning har klyvbara aktinidatomer reaktionstvärsnitt i storleksordningen $10^{-26} - 10^{-25} \text{ m}^2$, se tabell 2. Detta medför att både klyvningshastighet och infångningshastighet kan bli förhållandevis stora vid ett rimligt neutronflöde. Reaktionstvärsnittet för klyvning av de av bränslets atomer som har udda antal neutroner är här betydligt större än reaktionstvärsnittet för infångning. Exponering av ett strålmål under ett år i en typisk termisk reaktor motsvarar en fluens på ca 10^{25} neutroner/ m^2 .

Lättvattenmodererade kraftreaktorer har ett mer energirikt neutronspektrum än motsvarande tungvatten- eller grafitmodererade reaktorer. Oberoende av typ är dessa reaktorer mest användbara för transmutation av uran och plutonium.

Moderna reaktorbränslen innehåller ofta brännbara absorbatörer i form av gadolinium eller erbium. En brännbar absorbatör är ett kraftigt neutronabsorberande ämne som avlägsnas genom transmutation under reaktordriften och härigenom kompenserar för förbrukningen av klyvbart material. I princip skulle man kunna ersätta en del eller allt av dessa ämnen med en lämplig blandning av icke klyvbara aktinider i ett inert fyllmedel, till exempel ^{237}Np och ^{241}Am i magnesiumoxid. En sådan åtgärd skulle leda till en långsam men betydande transmutation av dessa atomslag. I motsats till vad som tidigare ansetts uppfattas nu transmutation av de mängder neptunium och americium som normalt produceras i samma reaktor som möjlig, även om inventariet av dessa grundämnen kommer att bli ganska högt innan produktion och destruktion balanserar varandra [And78, Cam77, Sow77].

Några praktiska och ekonomiska nackdelar med transmutation i termiska reaktorer är:

- Reaktivitetsförlust vilket medför att inverkan av strålmål med neptunium och americium måste kompenseras genom en något högre anrikning av reaktorbränslet vilket leder till högre bränslekostnader.
- Speciell forcerad kylning när reaktorn är avstängd för service kommer att krävas för de stavar som innehåller aktinider under transmutation.
- Neutronstrålningen från högre aktinider kommer att kräva extra neutronsärmning vid transporter av såväl nytt som utbränt bränsle samt vid bränslebyte i reaktorn.

Snabba reaktorer. Snabba reaktorer är självgående kritiska system som arbetar direkt med högenergetiska neutroner och därför inte behöver någon moderator för att sänka neutronenergin.

Neutronflödet i en snabb reaktor är på grund av neutronernas större hastighet flera storleksordningar större än i en termisk reaktor vid samma neutrontäthet (antal n per volymenhet). Därmed kompenserar man för att tvärsnitten för infångning och klyvning av tunga kärnor med udda antal neutroner är 100 - 1000 gånger mindre än för långsamma neutroner.

I en ideal snabbreaktor skulle neutronspektrum vara samma som hos de neutroner som frigörs vid klyvningen. I en självgående reaktor produceras neutronerna genom kärnreaktioner i de klyvbara atomerna. Ett högt flöde kräver då att många neutroner produceras per volymenhet. Detta kan åstadkommas genom en stor mängd klyvbart material per volymenhet. Då en snabbreaktor således kräver ett mycket högt neutronflöde i en begränsad volym bränsle blir energiutvecklingen i enskilda bränslestavar mycket hög och speciella åtgärder behövs för att kunna kyla bort värmen. Detta kräver oftast metallkylning, men även helium har diskuterats. Närvaron av ett metalliskt kylmedel, oftast smält natrium men även smält bly - vismut blandning har använts, medför dock en viss moderering av neutronerna. Natrium har en bromsförmåga för neutroner som motsvarar ca 1% av den hos grafit, men bromsförmågan hos bly är betydligt lägre. De minskade neutronenergierna gör en natriumkyld reaktor till en något sämre transmutationsanordning än en ideal eller blykyld snabbreaktor. Å andra sidan är de flesta natriumföreningar relativt eller helt ogiftiga medan bly och blyföreningar är giftiga. Årsdoser på 10^{27} - 10^{28} neutroner/m² är möjliga.

Fördelar ur transmutationssynpunkt med en snabbreaktor är bland annat att samtliga aktinidatomer är klyvbara med högenergineutroner, oberoende av om de har jämnt eller udda antal neutroner. Kvoten mellan tvärsnitt för klyvning och absorption är dessutom högre i ett snabbt neutronspektrum. Antalet frigjorda neutroner per klyvning är också högre i ett snabbt spektrum. Sammantaget innebär det att man erhåller ca 0.2 – 0.4 extra neutroner per aktinidklyvning för att transmuttera klyvningsprodukter, jämfört med ett långsamt spektrum. Det höga neutronflödet leder också till en snabb transmutation, även vid relativt måttliga reaktionstvårsnitt.

Snabbreaktorer skulle kunna ha en speciell uppgift i ett system med lättvattenreaktorer som återanvänder uran och plutonium från upparbetning i form av MOX-bränsle. Efter några återcyklningar har plutonium en klart försämrad kvalitet som lättvattenreaktorbränsle eftersom det innehåller en ökad halt av icke termiskt klyvbara plutoniumisotoper med jämnt antal neutroner. Om plutonium med sådan sammansättning utnyttjas som bränsle i härden i en natriumkyld snabb bredreaktor kommer plutonium från upparbetad härd och mantel att ha en kraftigt förbättrad kvalitet genom att halten av plutoniumisotoper med jämnt neutrontal sjunkit starkt. Detta beror på att alla plutoniumisotoper klyvs med jämförbar hastighet i härden medan nytt plutonium, med i huvudsak udda antal neutroner, bildas i manteln. Återvunnet plutonium lämpar sig därför på nytt som råmaterial till MOX-bränsle för termiska reaktorer. Man talar litet skämtsamt om att en snabbreaktor kan fungera som "tvättmaskin" för plutonium.

Termiska accelerator drivna underkritiska reaktorer. Om en lämplig accelerator används för att bestråla ett tjockt strålmål av ett relativt tungt grundämne med högenergetiska protoner erhålls stora mängder neutroner, till stor del genom spallation (sönderslagning) av atomkärnorna i

strålmålet. Typiskt erhålls flera 10-tal neutroner från var proton som träffar strålmålet. Detta medför att en riklig ström av protoner (till exempel 20 mA vid 1 GeV protonenergi) kan producera en stor mängd neutroner per tidsenhet. Placeras spallationsmålet i centrum av en reaktorhård kan denna fungera som en neutronmultiplikator även om den inte annars skulle vara självgående. Detta beror på att förluster av neutroner kan kompenseras genom tillförsel av nya neutroner från spallationsmålet. Genom de klyvningar som sker i hårdens under neutronmultiplikationen kan mer energi genereras än vad som förbrukas för att producera protonstrålen. Detta ger således en annan typ av självgående system. Omvandling av värme från hårdens till elektricitet på konventionellt sätt via ånggeneratorer, turbiner och generatorer ger el-energi som mer än väl räcker för att driva acceleratoren. Denna producerar i sin tur de protoner som, efter omvandling till neutroner i strålmålet, underhåller energiutvecklingen i hårdens.

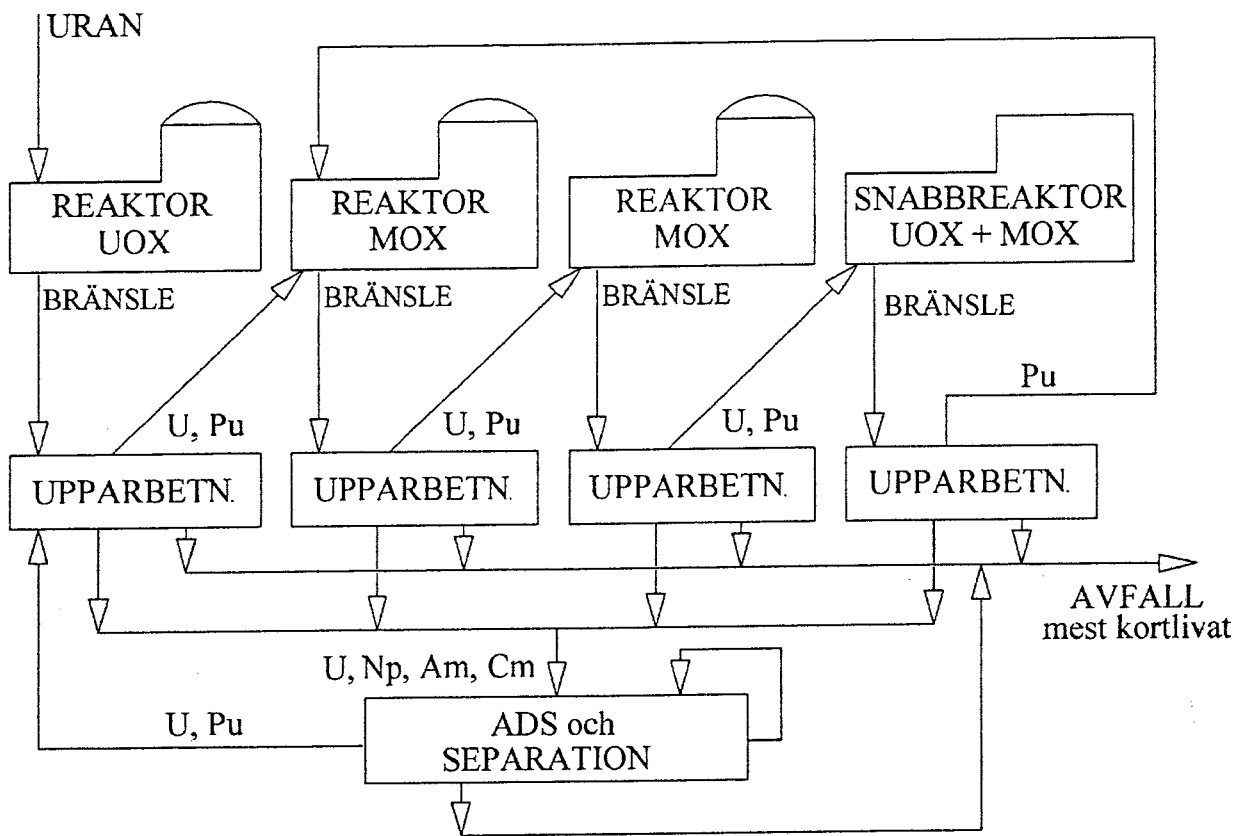
De nya neutronerna från såväl strålmål som bränsle i reaktorhården har ursprungligen höga energier. Genom att införa en moderator kan energin sänkas på samma sätt som i en termisk reaktor. Fördelen med detta är att de flesta reaktionstvårsnitt är större vid låga neutronenergier än vid höga. Följaktligen behövs mindre klyvbart material för en given reaktionshastighet vid låg neutronenergi än vid hög neutronenergi, det vill säga för en given energiutveckling. I princip kan betydligt högre neutronflöden åstadkommas i denna typ av anordning än i en termisk självgående reaktor.

Vatten och grafit kräver normalt kapslat fast bränsle och är därför mindre lämpade som moderatorer i acceleratordrivna på grund av de stora gradienterna i effekttäthet etc., varför "termiska" saltmältor, där aktinider är upplösta i olika typer av fluoridsalter har uppfattats som en bättre kombination av bränsle och moderator. Man får dock en sämre bromsning av neutronerna i dessa system än i självgående, vattenmodererade reaktorer, varför tvårsnittet för klyvning blir något lägre än för system där neutronerna bromsas fortare till låga energier. Dessutom innebär homogeniseringen av bränslet att man får ett kraftigt neutronflöde i närheten av strålmålet, med hög transmutionshastighet, medan den största delen av hårdens har betydligt lägre neutronflöde. Detta kan svårligen kompenseras genom att öka tillförseln från det acceleratordrivna strålmålet, emedan materialskador på acceleratorfönster, men framför allt på vägg mellan strålmål och hård, blir oacceptabla vid höga proton och neutronflöden [Tak97].

Snabba acceleratordrivna underkritiska reaktorer. Eftersom tillförseln av neutroner från strålmålet kan vara hög är det relativt sett mycket lättare att konstruera en lämplig neutronmultiplikerande hård som drivs med högenergetiska neutroner från strålmålet än om reaktorn skulle behöva vara självgående.

På samma sätt som för självgående snabbreaktorer medför de höga neutronenergierna att samtliga typer av aktinidatomer är klyvbara med klyvningstvårsnitt som är minst av samma storleksordning som infångningstvårsnittet. Det höga neutronflöde som kan uppnås ger också en snabb transmution. Eftersom neutronekonomin är mindre kritisk än för termiska underkritiska, samt för självgående reaktorer, kan större mängder av material som bara förbrukar neutroner, till exempel klyvningsprodukter, placeras i hårdens för transmution.

På samma sätt som vid ett termiskt acceleratordrivet system kan utvecklad reaktionsvärme utnyttjas för att producera elektrisk energi. En del av denna förbrukas naturligtvis för drift av acceleratoren. Denna andel är i ett snabbt acceleratordrivet system typiskt av storleken 4 – 5 %,



Figur 6. Tänkbart kombinationssystem med termiska, snabba och acceleratordrivna reaktorer

och jämförbar med den energi som går till sekundära behov i en självgående reaktor.

Kombinationssystem. Ett koncept för att kombinera förbränning av plutonium i MOX-form i termiska kritiska reaktorer med snabba kritiska reaktorer och acceleratordrivna system för förbränning av transuraner har tagits fram i Japan och vidareutvecklats i Frankrike (se Figur 6). I detta kombinerade system ("Double Strata" på engelska) använder man existerande reaktorer i transmutationscykeln på ett effektivt sätt, "förbättrar" isotopsammansättningen av plutonium i snabbreaktorn som beskrivits ovan, samtidigt som ackumulation av neptunium, americium och curium i bränslet för de kritiska systemen kan hållas till ett minimum. Dessa förbränns istället i ett underkritiskt acceleratordrivet system tillsammans med överskottsuran. Bildat plutonium återförs till de termiska reaktorerna. Bränsleformerna antas vara oxider i de kritiska reaktorerna, medan nitrider och klorider bör användas i det underkritiska systemet för att ge bästa möjliga neutronekonomi, vilket medger samtidig transmutation av enstaka klyvningsprodukter. I Tabell 4 ges en uppskattning av mängden aktinider vid olika steg i den kombinerade bränslecykeln.

Explosiva system. Även om explosiva anordningar troligen aldrig kan utnyttjas meningsfullt för transmutation förtjänar det att påpekas att samtliga aktinidisotoper, till och med ^{231}Pa , har sådana tvärsnitt att lämpligt utformade och tillräckligt stora massor i princip kan bringas att explodera. I fallet ^{237}Np anges till exempel att den ofreflekterade kritiska massan är så låg som 51.18 kg [Sri89]. Neutronmängden som produceras under en kärnexplosion är mycket stor och kan motsvara 100-tals års bestrålning i en kraftreaktor. Samtidigt är neutronflödet extremt högt

Tabell 4. Mängder av viktigare transuranatomslag i en kombinationscykel

PWR serie 1 UOX: 10 st/snabbreaktor		In (kg/år)	Ut (kg/år)
Uran		$1,77 \times 10^5$	$1,67 \times 10^5$
Neptunium		0	95,4
Plutonium		0	$1,81 \times 10^3$
Americium		0	54,7
Curium		0	4,75
PWR serie 2 MOX: 5,25 st/snabbreaktor		In (kg/år)	Ut (kg/år)
Uran		$8,67 \times 10^4$	$8,47 \times 10^4$
Neptunium		0	52,2
Plutonium		$4,56 \times 10^3$	$2,18 \times 10^3$
Americium		0	298
Curium		0	65,4
PWR serie 3 MOX: 2,5 st/snabbreaktor		In (kg/år)	Ut (kg/år)
Uran		$4,13 \times 10^4$	$3,96 \times 10^4$
Neptunium		0	39,8
Plutonium		$2,18 \times 10^3$	$1,50 \times 10^3$
Americium		0	269
Curium		0	160
Snabbreaktor UOX + MOX: 1 st		In (kg/år)	Ut (kg/år)
Uran		$1,62 \times 10^4$	$1,45 \times 10^4$
Neptunium		0	12,7
Plutonium		$1,50 \times 10^3$	$1,97 \times 10^3$
Americium		0	58,3
Curium		0	8,07
Accelerator driven snabbreaktor: 1 st (data för första bränslesatsen)		In (kg/år)	Ut (kg/år)
Uran		$4,66 \times 10^3$	$3,70 \times 10^3$
Neptunium		200	78
Plutonium		0	822
Americium		680	196
Curium		238	409

nära centrum.

2.2.5 Transmutationsgrad

Den uppnåbara transmutationsgraden under en bestrålning beror av flera olika faktorer.

För flytande strålmål beror denna gräns på hur höga koncentrationer av klyvningsprodukter som kan accepteras innan lösligheten hos någon produkt överskrids. Korrosiva reaktioner mellan väggmaterial i inneslutande tankar och rörsystem kan också begränsa tillåten halt reaktionsprodukter. Då klyvningsprodukterna omfattar nära 70 olika grundämnen behövs omfattande kemiska undersökningar för att säkerställa att inte utfällningar sker på grund av överskriden löslighet vid en given halt. För många vätskor, oftast metall- eller saltsmältor,

saknas kompletta löslighetsdata för alla aktuella grundämnen (och kemiska föreningar mellan dessa) vid olika temperaturer, varför övre gränsen för halten av klyvningsprodukter är relativt osäker. Korrosions- och utfällningsfenomen observerades till exempel under drift av Molten Salt Breeder Reactor Experiment men kunde behärras tillfredsställande genom olika åtgärder, till exempel kylfällor där en del av bildade produkter kylde ut ur det smälta saltet [Fer67].

För fasta strålmål beror gränsen på uppkommande volymändringar, gstryck vid aktuell arbetstemperatur, kemiska reaktioner mellan klyvningsprodukter och målatomer, och sist men inte minst möjliga korrosiva reaktioner mellan kapsling och målmaterial innehållande klyvningsprodukter och neutroninfångningsprodukter. Allmänt verkar den acceptabla halten klyvningsprodukter vara betydligt lägre än för flytande strålmål. Utspädning av målatomerna med ett inert fyllnadsmaterial kan i princip medge högre transmutionsgrad än utan utspädning.

Typen av transmutionsanordning är också viktig för transmutionshastigheten och sammansättningen av transmutionsprodukterna. Detta beror, som tidigare påpekats, på att reaktionstvårsnittet varierar med neutronenergin och att fördelningen av klyvningsprodukter på olika atomslag också beror på neutronenergin. Diskussionen kan därför med fördel delas upp efter neutronenergin i termiska och snabba system. Huruvida neutronerna produceras i ett kritiskt eller underkritiskt system har i de flesta fall ingen betydelse, men för bränsletyper som medför små negativa termiskoefficienter (till exempel nitrid av transuraner) kan det vara fördelaktigt ur säkerhetssynpunkt att använda underkritiska acceleratordrivna reaktorer.

Termiska system. Termiska neutroner har fördelen av att de flesta reaktionstvårsnitt är någon eller några 10-potenser högre än för högenergetiska neutroner, speciellt gäller detta för infångningstvårsnitt och för klyvningstvårsnitt hos tunga atomer med udda antal neutroner, se tabell 2.

I och med att klyvningstvårsnittet för tunga kärnor med jämnt antal neutroner är mycket litet, krävs det i allmänhet två neutroner för att transmuttera dessa till klyvningsprodukter. Neutron-ekonomin tillåter då endast i undantagsfall transmution av långlivade klyvningsprodukter.

Snabba system. Neutronflödet i snabba system är normalt över 100 gånger högre än i termiska system. Samtidigt är reaktionstvårsnittet motsvarande lägre för många atomslag. Den största skillnaden finns hos aktinider med jämnt antal neutroner. Dessa har klyvningsstvårsnitt med snabba neutroner som är av samma storleksordning som infångningstvårsnittet, se tabell 3, trots att motsvarande tvårsnitt för termiska neutroner är små. Detta medför att bestrålning av aktinider med neutroner av högre energi generellt leder till en större andel klyvning och en mindre andel neutroninfångning. För ^{237}Np leder detta till exempel till att ca 20% klyvs och 80% bildar ^{238}Np medan motsvarande siffror för ett termiskt neutronflöde är <1% och >99%.

2.2.6 Energiproduktion

Energifrigörelsen vid klyvning av aktinidatomer stiger marginellt inom aktinidserien och för varje grundämne ökar den något med masstalet. För enkla uppskattningar av den momentant frigjorda energin vid klyvning kan 200 MeV användas för alla kluvna atomtyper utan att felet blir särskilt stort [Cho95]. Detta leder till att energiutvecklingen blir praktiskt taget proportionell mot klyvningshastigheten oberoende av vilka atomer som klyvs.

Den hastighet varmed värmeenergi produceras, effekten, begränsas liksom i en konventionell reaktor av högsta tillåtna temperatur i härden. Denna är i sin tur beroende av bränsleform och konstruktionsmaterial. I en konfiguration med fast bränsle måste man undvika smältning, vilket begränsar den maximala effekttätheten till ca 200 MW/m³ termisk värmeutveckling för vattenkylda termiska reaktorer. Den maximala effekttätheten kan vanligen inte utnyttjas i hela härden, då neutronflödet minskar i gränssytan mot den omgivande reflektorn. I en självgående reaktor försöker man kompensera detta genom att utnyttja brännbara absorbatörer som gadolinium och erbium för att initialt sänka flöde och effekttäthet i centrala delar av härden. Dessutom använder man sig av olika grader av anrikning i olika delar av härden. I en självgående transmutationsreaktor kan man tänka sig att använda tunga kärnor med jämnt antal neutroner som brännbar absorbatör. I en underkritisk reaktor har man ännu större problem med skillnader i effekttäthet och dåligt utnyttjande av perifera härddelar om bränslesammansättningen är homogen. I detta fall kan man svårligen uppnå totaleffekter större än 1000 MW termisk energi, oavsett strömstyrka hos den externa neutronkällan. Dock har man bättre möjligheter att använda koncentrationen av klyvbart material som variabel i utformningen av härden, då man i ett underkritiskt system inte är beroende av fördröjda neutroner som säkerhetsmekanism. Genom att placera klyvningsprodukter i inre delen av härden, och gradvis högre koncentration av transuraner i yttre delar, kan man uppnå totaleffekter i samma storleksordning som i lättvattenreaktorer.

2.3 Upparbetning och separation

2.3.1 Separation

För att kunna transmuttera de långlivade radioaktiva atomslagen i avfallet är det nödvändigt att separera dessa från övriga atomslag. Orsaken till detta är att fissionsprodukterna i avfallet annars kommer att absorbera de neutroner som behövs för att "förbränna" aktiniderna och man får då en ineffektiv transmutationsprocess. En lång och intensiv neutronbestrålning av klyvningsprodukter leder också till bildandet av några oönskade långlivade radioaktiva atomslag. Det finns ett antal separationsmetoder som kan tänkas vara intressanta i en framtida transmutationsanläggning. För en mer ingående beskrivning av dessa hänvisas till en nyutkommen OECD/NEA rapport [NEA97].

2.3.2 Vätske-vätske extraktion

Vattenbaserad separation är den metod som är mest utvecklad vilket betyder att det finns mycket kunskap om både de kemiska och tekniska problemen. Vätske-vätske extraktion är en separations-metod som baserar sig på att man har två oblandbara vätskefaser, t.ex. en vattenfas och en organisk fas [Ryd92]. I den organiska fasen finns ett extraktionsreagens löst med vissa specifika egenskaper och i vattenfasen finns ett antal olika grundämnen lösta som man vill separera. Genom att kontakta de två faserna med varandra under lämpligt valda betingelser (till exempel pH, ligandhalt) och sedan låta dem separera kan man få utvalda grundämnen att anrikas i den organiska fasen. Separationsmetoden har länge använts i upparbetningsindustrin där man återvunnit uran och plutonium från utbränt kärnbränsle [Mus92]. I en framtida separationsprocess i en transmutationsanläggning krävs att man dessutom kan separera ut de övriga aktiniderna (i huvudsak neptunium, americium och curium). I den traditionella upparbetningen (PUREX-processen) har man använt sig av TBP (tributylfosfat) för att extrahera uran och plutonium. TBP innehåller fosfor vilket leder till att man i slutet av processen får ett

fosforhaltigt avfall som ej går att förbränna fullständigt. Andra fosforbaserade reagens t.ex. CMPO (carbamoylmetylfosfinoxid) och DIDPA (diisodecylfosforsyra) är tänkta att kunna separera även de tyngre aktiniderna i en framtida separationsprocess, men ger således problem med sekundärt avfall. Minimering av mängden sekundärt avfall är en förutsättning för att erhålla en mycket hög återvinningsgrad i dessa processer. De mest intressanta reagensen kommer troligen att vara uppbyggda av endast kol (C), väte (H), syre (O) och kväve (N). De följer den så kallade CHON-principen (från de ingående grundämnenas kemiska symboler) och är därigenom full-ständigt förbränningsbara [Mad98]. Man har även funderat på att byta ut TBP mot en lämplig monoamid som uppfyller CHON-principen.

2.3.3 Pyrometallurgi

Kemiska processer som sker vid hög temperatur brukar sammanfattas under begreppet pyrometallurgi. Ordet syftar oftast på någon typ av metallseparation och två olika processer är numera mest aktuella inom kärnenergiområdet; i) metallurgi med tillsats av slaggbildande medel och separation av metall från slagg, ii) tvåfasextraktion genom blandning av en metallsmälta med en saltsmälta följt av separation av metall och salt.

Vid slaggnings erhålles separationen genom att beståndsdelarna i metallsmältan har olika stor benägenhet att reagera med slaggbildaren. Slaggprodukten skall vara svårslöslig i metallsmältan och ha en annan täthet än denna, eventuellt kan den vara gasformig. Denna teknik används i stor industriell skala, till exempel vid stål- och koppartillverkning, men har en icke obetydlig miljöpåverkan. Den har tidigare även använts i relativ stor skala inom kärnteknikområdet, till exempel oxiderande slaggnings för upparbetning av bränslet från (den numera nedlagda) bldreaktorn EBR-II [Hes63].

Separation genom tvåfasextraktion baseras oftast på att de lösta ämnena i metall- eller saltfasen har olika löslighets- och/eller redoxegenskaper. Genom en lämplig tillsats av reducerande/oxiderande ämnen, till exempel metalliskt litium eller zirkonium, till metallfasen eller saltsmältan kan ämnen som förekommer som joner i saltsmältan reduceras till metall och övergå från saltsmältan till metallfasen eller motsatsen. Denna teknik har bland annat använts för rening av vapenplutonium från det americium som bildats vid sönderfall av den relativt kortlivade ^{241}Pu , som förekommer som en oönskad förorening i plutonium av vapenkvalitet [Kni81].

En annan möjlighet är att använda elektrolytisk reduktion eller oxidation för att åstadkomma en ändrad fördelning mellan metall och saltsmälta. Denna teknik har stor industriell användning, till exempel vid framställning av aluminium genom smältelektrolys. Upparbetning av kärnbränsle genom elektrolys i saltsmälta med smält metallektrod har studerats i laboratorieskala [Lai94, Lem97].

I båda fallen skapas betydande mängder extra avfall, till exempel avgasfilter. Dessutom innehåller det separerade avfallet ofta en oacceptabel mängd bränsle- eller strålmålsmaterial och måste därför renas ytterligare, troligen med vattenbaserade metoder [Kni81]. En annan svårighet ligger i att konstruera apparatur så att processerna blir kontinuerliga i stället för satsvisa.

Pyrometallurgi erbjuder eventuellt en enklare och billigare upparbetningsväg för metalliskt bränsle, kanske även för oxidbränsle [Kor96], eftersom man inte behöver omvandla från fast

material till lösning före separationen och från lösning till fast material efter separationen. Frånvaron av svåra radiolyseffekter och frånvaron av neutronmodererande lätta grundämnen kan medge processer med höga halter av klyvbart material, vilket minskar anläggningens storlek vid en given årsproduktion. Dessa fördelar erhålls dock normalt på bekostnad av återvinningsgraden ty mängden material som oavsiktligt förloras med olika typer av avfall är troligen större än för vattenbaserade processer. Inom industrin har pyrometallurgiska processer i åtskilliga fall ersatts av vattenbaserad kemi, till exempel vid framställning av koppar och nickel ur malm. Härigenom har en viss minskning av energiförbrukningen erhållits, men framför allt har utsläppen av miljöskadliga ämnen till luft och vatten minskat kraftigt.

2.4 Återanvändning och förluster

Återvinning och återanvändning av klyvbart material ur använt kärnbränsle borde vara en "grön" målsättning eftersom detta kan leda till att kärnenergin blir en ren och oerhört uthållig energikälla med relativt begränsad förbrukning av naturresurser i form av uranmalm.

Mängden använt kärnbränsle som nu finns i centrallagret för använt kärnbränsle, CLAB, motsvarar ca 2800 ton uran, räknat som oanvänt kärnbränsle. Med hänsyn till de förändringar som sker under reaktordriften motsvarar detta de mängder av olika aktinider som ges i Tabell 5.

Återanvändning av det material som nu finns lagrat i CLAB i ett hybridsystem bestående av lättvattenreaktorer, snabba brydreaktorer och acceleratordrivna underkritiska reaktorer enligt Figur 6 ger en beräknad elenergiproduktion i området 2000 - 16000 TWh. Var man hamnar i detta intervall beror dels på antal PWR per snabbreaktor och dels på antal och storlek av de acceleratordrivna anläggningarna. Den lägre elproduktionen motsvarar ett system med materialflöden och anläggningar enligt Tabell 4. Den maximalt möjliga elmängden motsvarar Sveriges nuvarande elproduktion från kärnkraft, ca 70 TWh/år, under mer än 200 år. Genom att systemet innehåller uppberednings- och separationsanläggningar, snabba reaktorer och acceleratordrivna system kommer med stor sannolikhet kostnaden för el producerad med ett sådant system att vara påtagligt högre än från dagens system med bara lättvattenreaktorer och planerad slutdeponering av använt bränsle.

Som framgår av de exempel som redovisas i appendix 2 krävs en kombination av högsta möjliga flöde, största möjliga klyvningstvårsnitt, längsta möjliga beträlningstid och satsvis separation med hög total kemisk verkningsgrad för att uppnå minsta möjliga mängd av radiotoxiska långlivade aktinider i det avfall som måste slutdeponeras. En optimering enbart med hänsyn till dessa faktorer leder med säkerhet till relativt komplicerade hybridsystem där olika typer av

Tabell 5. Uppskattat innehåll av tunga grundämnen i bränsle som fanns lagrat i CLAB år 1997.

Grundämne	Mängd (ton)
Uran	2650
Neptunium	2,2
Plutonium	24
Americium	0,9
Curium	0,2

grundämnen separaras och transmutteras i speciella anläggningar som ger maximal destruktion av respektive grundämne respektive minimal förlust till radioaktivt avfall. Mellan dessa anläggningar sker transporter av de återvunna aktinider och speciella klyvningsprodukter som inte skall bestrålas på nytt i den anläggning där de producerats. Om man även väger in övriga faktorer, det vill säga ekonomi och säkerhet, kan systemets utformning förändras kraftigt. Tyvärr saknas idag tillförlitliga data på såväl prestanda som kostnader hos många av komponenterna i tänkbara hybridsystem då dessa bara existerar som idéer, på ritbordet, i laboratorieskala eller, i bästa fall, som prototyper, varför det är mycket svårt, eller omöjligt, att föreslå optimala system med hänsyn till samtliga faktorer.

2.5 Safeguardfrågor

Accelerator drivna system måste liksom konventionella reaktorer underställas icke-spridningskontroll. Vissa nya frågor tillkommer dock:

Bearbetning av bränsle, som är ett nödvändigt steg i transmutationsprocessen, ger i princip en möjlighet att komma åt vapenmaterial i relativt ren form. Även om torium, uran och plutonium redan finns på IAEAs och Euratoms inspektionslista krävs det troligen en viss översyn av rutiner för att anpassa inspektionsrutinerna till de nya systemen. Å andra sidan finns det något större möjligheter att utforma bränsle, strålmål eller hela accelerator drivna system mer spridningssäkert än vad som är fallet med konventionella reaktorer.

Acceleratorer och deras eventuella användning i transmutationssystem bidrar också till ett behov av strängare kontroll. Acceleratorer har, precis som reaktorer, redan från början använts för att producera eller försöka producera kärnvapenmaterial. Det var med hjälp av en accelerator som Glenn Seaborg för första gången tillverkade plutonium. Redan en medelstor accelerator har potential att producera några kilo vapenmaterial per år.

Ett safeguard-koncept för accelerator drivna system kan baseras på följande element:

- (i) kontroll (verifikation) av design (för att undvika enkla metoder för processändringar),
- (ii) kontroll av bränsle design, komponenter och deras transport,
- (iii) kontroll på plats av inventariet,
- (iv) slumpmässig kontroll (som på reaktoranläggningar, med fotograferings- eller videoteknik, datorer kan bidra till bättre kontroll) på plats,
- (v) kontroll av bokföringssystem för potentiellt kärnvapenmaterial, samt
- (vi) monitorering av viktiga driftparametrar (acceleratoreffekt, härdeffekt etc.) för acceleratorsystem och uppberedningsanläggning.

3.1 S&T ur svenskt perspektiv

Omfattande studier av separation och transmutation gjordes i flera länder under 1960-, 1970- och början av 1980-talen. Detta gav breda kunskaper inom vissa delar av området. I Sverige drevs forskning finansierad av dåvarande programrådet för radioaktivt avfall (Prav) vid institutionen för kärnkemi på Chalmers Tekniska Högskola. Forskningsverksamheten kulminerade i och med att en nyutvecklade separationsprocess demonstrerades framgångsrikt på högaktiv avfallslösning i samarbete med Institutt for Energiteknik, Lilleström, Norge. Intresset för denna verksamhet avtog i takt med att satsningarna på brydreaktorer minskade och intresset för upparbetning och plutoniumåterföring svalnade i Sverige.

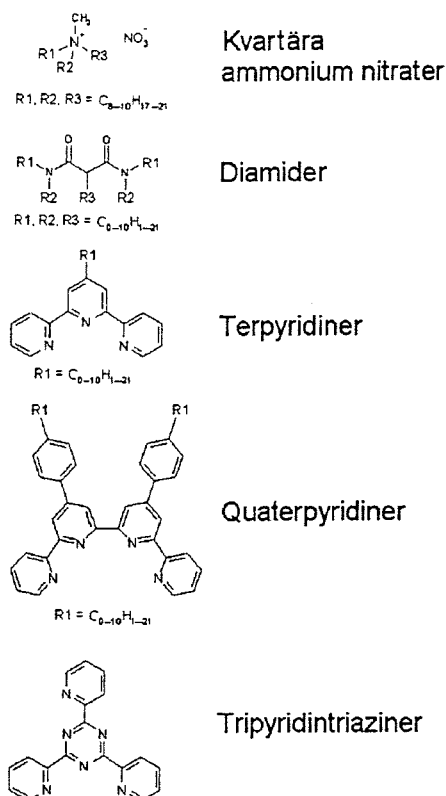
Utvecklingen på acceleratortekniken gjorde att det i början på 1990-talet uppstod ett intresse av att utvärdera möjligheterna att använda acceleratordrivna system för transmutation. Den tidigare nämnda konferensen i Saltsjöbaden sommaren 1991 var därvid för svenskt vidkommande en viktig händelse. I SKB:s FUD-program 1992 föreslogs att ett djupförvar för använt kärnbränsle skulle byggas ut i etapper. En första etapp skulle omfatta en mindre mängd använt bränsle och följas av en omsorgsfull utvärdering av resultaten från denna etapp och av parallellt pågående forskning och utveckling på alternativa metoder i Sverige och utomlands. För att ge underlag för denna framtida utvärdering ansåg SKB det angeläget att stödja och i viss mån initiera svenska forskningsarbeten på alternativa metoder, speciellt transmutation av långlivade radioaktiva ämnen. I programmet angavs som speciellt intressant att studera separation av långlivade ämnen, tekniskt möjlig effektivitet för transmutation, materialproblem samt processernas tillförlitlighet och säkerhet.

SKB inledde sålunda ett samarbete med institutionen för kärnkemi vid Chalmers Tekniska Högskola i Göteborg samt med Centrum för säkerhetsforskning och institutionen för neutron- och reaktorfysik vid Kungliga Tekniska Högskolan i Stockholm. Detta samarbete har under åren utvidgats något.

Inom det statliga energiforskningsprogrammet har Studsvik sedan lång tid till uppgift att följa den internationella utvecklingen på ny kärnteknik.

3.2 Verksamhet vid CTH

Verksamhet på utveckling av selektiva separationsprocesser med hög verkningsgrad började 1974 vid institutionen för kärnkemi, Chalmers tekniska högskola, Göteborg, med ekonomiskt stöd från programrådet för radioaktivt avfall, PRAV, samt i början även från AB Atomenergi. Projektet ledde fram till försök i pilotskala under början av 1980-talet med användning av 16 liter koncentrerad högaktiv avfallslösning från den gamla norsk-svenska upparbetningsanläggningen i Kjeller, Norge. Funktionen hos såväl kemi som apparatur blev därvid verifierade. Processen fungerade i huvudsak som beräknat och gav mycket god separation vid en extremt hög verkningsgrad, till exempel uppmättes totalverkningsgrader på >99.8% för neptunium, >99.99% för plutonium och >99.83% för americium. Att angivna värden är nedre gränser



Figur 7. Några CHON-reagens som kan användas vid separation av aktinider och lantanider

beror i huvudsak på mättekniska svårigheter med att upptäcka extremt små kvarvarande halter av respektive grundämne i det renade högaktiva avfallet. Renat högaktivt avfall innehöll efter den vätske-vätske-extraktionsbaserade separationsprocessen mindre än 1/100000 av ursprunglig α -aktivitet. Huvuddelen av resultaten finns publicerade [Lil80, Lil81:1, Lil81:2, Lil82, Lil84, Lil91, Per80, Per83, Per84:1, Per84:2, Sva79:1, Sva79:2, Sva80, Sva82, Sva84, Win84].

Sedan 1991 driver institutionen för kärnkemi vid Chalmers tekniska högskola ett SKB-finansierat projekt inom separations- och transmutionsområdet och sedan i maj 1996 deltar institutionen även i EU-programmet "Nuclear Fission Safety" inom projektet NEWPART (New Partitioning Techniques). Förutom Sverige deltar även Commisariat à l'Énergie Atomique (CEA, Frankrike), University of Reading (England), Europeiska Transuraninstitutet (EU), Forschungszentrum Karlsruhe (FzK, Tyskland), Forschungsanlage Jülich (Fa, Tyskland) och Ente per le Nuove tecnologie, l'Energia e l'Ambiente (ENEA, Italien) i NEWPART projektet. Institutionen har även mer informellt samarbete med Los Alamos National Laboratory (LANL, USA) och Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI, Japan).

Verksamheten vid institutionen innefattar utveckling av nya vattenbaserade separationsprocesser och för att minska mängden avfall från framtida avancerade separationsprocesser innehåller extraktionsreagensen endast kol, väte, syre och kväve (kallad CHON-principen efter de kemiska beteckningarna för ingående grundämnena) vilket gör att reagensen är fullständigt förbränningsbara och inte bidrar till det sekundära avfallet. Fem olika typer av reagens studeras, se Figur 7.

Aliquat-336 är ett kvarternärt ammoniumsalt som fungerar som ett anjonbytesreagens. Reagenset är föreslaget av LANL att användas i en separationsprocess där Aliquat-336 är löst i ett aromatiskt lösningsmedel, diisopropylbensen. I det första steget extraheras Pu, Np, Tc och I från en 2 M salpetersyralösning. Genom att sedan sänka respektive höja salpetersyrahalten i vattenfasen kan Pu och Np respektive Tc och I återföras till vattenfasen.

Malonamider är en grupp reagens som föreslagits att användas i DIAMEX-processen (Frankrike) för att extrahera både trevärda aktinider och lantanider från resten av fissionsprodukterna [Mad98]. För att sedan separera de trevärda aktiniderna från lantaniderna har det visat sig att kvävedonerande oligopyridiner har förmågan att separera de två grupperna. Trevärda aktinider och lantanider är svåra att separera från varandra eftersom de har liknande kemiska egenskaper, samma laddning och jonradie. Oligopyridiner är tänkta att användas i SANEX-processen för separation av trevärda aktinider från lantanider utvunna med DIAMEX-processen.

3.3 Verksamhet vid KTH

Forskning på transmutionsområdet vid Kungliga Tekniska Högskolan i Stockholm i Stockholm koncentreras i huvudsak till acceleratordrivna system (ADS). Denna verksamhet har växt och utvecklats väsentligt under de senaste två åren. För närvarande arbetar fem forskare på avdelningen med ADS, huvudsakligen finansierade av SKB.

Simuleringar av transmutionsförlopp som funktion av neutronspektrum visar att flytande tungmetaller som kylmedel bereder möjlighet att vidmakthålla konstanta transmutionshastigheter för många atomslag vid stora koncentrationsvariationer [Möl97]. Den låga bromsförmågan hos tungmetaller medger också transmution av klyvningsprodukterna ^{99}Tc och ^{129}I om dessa placeras i härdens reflektor.

En analys av transient neutronflöde i anslutning till spallationsstrålmål har genomförts, och visat att flödet till väsentlig del är givet av transienta komponenter.

En koppling mellan en Monte Carlo-kod för beräkning av neutronflöde och transmutionsrater för fix bränslesammansättning har kopplats med en utbränningskod som en del av ett projekt att skapa ett komplett verktyg för beräkningar på acceleratordrivna system. Justeringar av tvärsnittsdata-baser och omräkningar för olika härdtemperaturer har gjorts. Resultaten av en första serie beräkningar är under publicering [Tuc97].

Simulering av spallationsprocessen och termohydraulik i flytande bly/vismut-strålmål har utförts med koderna FLUKA [Car96, Tal97] respektive Flow3D [Car98]. Modelleringen av termohydrauliken görs i samarbete med Forskningscentret ISPRA i Italien.

En studie av acceleratorbeteende hos linjära acceleratörer med syfte att skapa en databas att användas i sannolikhetsbaserade säkerhetsanalyser och tillförlitlighetsuppskattningar har inletts i samarbete med Los Alamos.

Avdelningen har formulerat, tilldelat och genomfört certifieringsprocessen för ISTC:s projekt 559. I projektet tillverkas ett flytande bly/vismut-strålmål av IPPE (Institute of Physics and Power

Engineering) i Obninsk, med avsikt att bestråla detta vid acceleratoren i Los Alamos under totalt sex månaders tid år 2000-2001. KTH är en av de huvudansvariga för projektet, vars resultat kommer att vara väsentliga vid ett eventuellt framtida arbete med att utforma en demonstrationsanläggning för ADS.

Avdelningen har varit ansvarig redaktör för IAEA:s statusrapport om acceleratordrivna system [Gud97:2] och är koordinator för EU:s IABAT-projekt (Impact of Accelerator Based Technologies on nuclear fission safety).

3.4 Övrig verksamhet inom landet

3.4.1 Uppsala Universitet

Acceleratordrivna system innefattar produktion av neutroner med energier upp till GeV-området, vilket är mycket högre än de neutronenergier som förekommer i självgående reaktorer. För att kunna simulera och optimera strålmål och hård i ett sådant system behövs kunskap om neutroninducerade kärnreaktioner för dessa energiregioner. Vid höga energier är en betydligt större mängd reaktionskanaler öppna. De experiment som finns på OECD:s lista över högprioriterade mätningar kommer därför att ta decennier att utföra med existerande resurser. Av särskild vikt är tvärsnittet för elastisk spridning, som utgör cirka hälften av det totala tvärsnittet. Detaljerade data för differentiella elastiska tvärsnitt hos ett begränsat antal kärnor kan användas för att bestämma parameterer i optiska modell potentialer vid relevanta energier. Med en god optisk modell kan man förutsäga både elastiska, totala och reaktiva tvärsnitt.

Vid Uppsala universitets institution för neutronfysik startades 1997 ett projekt med målet att mäta differentiella elastiska tvärsnitt vid 100 MeV. Mätningarna kommer att utföras vid den unika kvasimonoenergetiska neutronstråleanläggningen vid The Svedberg-laboratoriet i Uppsala. En prototyp av SCANDAL (SCattered Neutron Detection AssembLy) har byggts och installerats i anslutning till neutronstrålen. Uppsättningen består av två identiska armar, täckande spridningsvinklar mellan 10 och 50 grader samt mellan 30 och 70 grader. Varje arm består av en tunn veto-scintillator för snabb diskriminering av laddade partiklar, en plastscintillator för trigging, två driftkammare för protonuppföljning, och en rad cesiumjodid-detektorer för bestämning av energi. Veto-scintillatorn reagerar i huvudsak för laddade partiklar och signalen från denna kan därför utnyttjas för att blockera övriga signaler som uppstår när en laddad partikel anländer utifrån. Utrustningen blir därför okänslig för inkommande laddade partiklar och reagerar huvudsakligen för fenomen som utlöses av inkommande neutroner. Uppsättningen är utformad för en energiupplösning på runt 2.5 MeV, tillräcklig för att isolera grundtillstånd från första exciterade tillstånd hos de flesta kärnor av intresse, det vill säga ^{12}C (4.4 MeV), ^{16}O (6.1 MeV), ^{40}Ca (3.3 MeV), ^{90}Zr (1.8 MeV), och ^{208}Pb (2.6 MeV).

Stöd från kärnkraftinspektionen, kärnkraftverken och SKB gör det nu möjligt att komplettera utrustning och anställa doktorander. Insamling av data i full skala kommer att kunna utföras under 1998.

Vid OSIRIS anläggningen i Studsvik genomförs experiment för fastställande av fördelning av klyvningsprodukter vid snabb fission av ^{232}Th och ^{233}U samt utvidgning av transportkoder och tvärsnittsdatabibliotek till energiområdet 20 - 150 MeV.

Vid det nybildade centrum för astronomi och fysik i Uppsala (CAP) kommer dessutom en industrirelaterad forskarskola (AIM) att starta under 1998. Ett par doktorandprojekt inom transmutationsområdet bör kunna genomföras inom denna forskarskola.

3.4.2 *Studsvik*

Studsvik AB har sedan lång tid haft regeringens uppdrag att följa och analysera den internationella utvecklingen av ny kärnteknik och att årligen avrapportera läget. Som ett led i detta följde man även utvecklingen inom separations- och transmutationstekniken. Man bedrev dock ingen egen forskning på området. Verksamheten har nyligen upphört

Forskning om transmutation av långlivade och biologiskt farliga radioaktiva atomtyper har sedan slutet av 1980-talet ökat världen över. Speciellt har intresset för acceleratordrivna system för transmutation av kärnavfall och energiproduktion vuxit under de senaste två åren. I Frankrike och Japan, där det under ett decennium funnits aktiva forskningsprogram på transmutation, har nyuppkomna politiska problem beträffande blyreaktorer lett till ett ökat intresse för acceleratordrivna system som en lösning på avfallshanteringsfrågan och i båda länderna är idag omkring 100 forskare sysselsatta med arbetsuppgifter relaterade till separation och transmutation av kärnavfall. I Ryssland är idag ca 500 före detta vapenforskare engagerade i transmutationsforskning, finansierade av USA, EU och Sverige genom ISTC. USA har ett militärt program för utveckling av högintensitetsacceleratorer, som endast till mindre del är sekretessbelagt, varför resultat från detta kommer att kunna användas i bedömning och eventuell konstruktionen av en accelerator för ett underkritiskt system.

Länder som Italien och Spanien har nyligen påbörjat forskningsprogram, medan andra länder gett ökade anslag till existerande program (Belgien, Indien, Sverige, Sydkorea, Tjeckien).

Medan forskningen tidigare präglats av sökande efter systemparametrar, med ibland diametralt motsatta uppfattningar i olika läger, har systematiska studier de senaste åren lett till en mer enhetlig syn på flera viktiga punkter. Bland annat:

- Transmutation av kärnavfall kan inte ersätta ett geologiskt förvar, men kan eventuellt bli ett komplement som leder till att mängden långlivade ämnen som behöver deponeras i ett sådant förvar minskar avsevärt. Uppskattningar av möjlig reduktions faktor varierar mellan 90 och 99 procent av ursprunglig mängd avfall.
- Protonstrålmål i acceleratordrivna system bör bestå av en flytande metall; bly/vismut-smälta, alternativt bly. Vid högeffektanläggningar skulle en användning av volfram eller aktinider som strålmål kunna leda till problem med både kontaminering och kylning.
- Neutronspektrum bör vara snabbt, för att få god neutronekonomi samt bästa möjliga transmutation av aktinider och enstaka klyvningsprodukter.
- Flytande metall (bly/vismut eller bly) bör därför användas som kylmedel. Natrium finns fortfarande med i bilden, men bedöms som mindre attraktivt efter olyckan i Monju-reaktorn, Japan, och stängningsbeslutet av den stora multinationella blyreaktorn Super Phenix, Frankrike.
- Forskning om pyrometallurgiska metoder för separation bör göras för att utröna om kända problem med sekundära avfallsströmmar kan övervinnas. Pyrometallurgiska metoder kan tänkas ha vissa kostnadsmässiga, fördelar samt eventuellt medge separation på plats utan extern transport av klyvbart material.

Transmutationsexperiment utförs i CERN, Frankrike, Ryssland och andra länder. Utveckling av acceleratorkomponenter görs i USA, Japan och på CERN.

Simuleringsmodeller har förbättrats, bland annat har EET-gruppen vid CERN skapat en komplett kod specialoptimerad för acceleratordrivna system. Nya tvärsnittsdata för kärnreaktioner har tillkommit, framför allt i energiområdet 20-150 MeV.

4.1 Belgien

I Belgien [IAE97, Gud97:2] utförs forskning och utveckling inom separations- och transmutationsområdet av Belgonucléaire. Kunskap finns inom områden som teknik för separation av aktinider och fissionsprodukter, radioanalytiska procedurer för mätningar på utbränt kärnbränsle samt aktinidproduktion. I framtiden tänker man sig att separera och transmuttera ^{237}Np , ^{241}Am , ^{243}Am och curium samt några av de långlivade fissionsprodukterna ^{129}I och ^{99}Tc . Separationen av ^{237}Np kan göras genom en mindre förändring av den befintliga PUREX-processen medan separationen av Am och Cm från lantaniderna (Ln) anses som ett av de viktigaste problemen att lösa. Huvudinriktningen är dock fortfarande att ett geologiskt slutförvar kommer att konstrueras för huvuddelen av det i Belgien producerade avfallet. Sedan 1972 pågår undersökningar av ett sådant slutförvar bland annat i ett underjordiskt laboratorium (SCK-CEN). Vidare har Myrrha-projektet, inriktat på produktion av radioisotoper för medicinskt bruk, vidareutvecklats. Forskningsgrupper vid SCK-CEN och IBA (Ion Beam Applications) har visat att två små cyklotroner av en typ som redan i dag produceras på kommersiell basis av IBA (150 MeV, 2 mA) applicerade i ett acceleratordrivet system skulle vara tillräckligt för att täcka världsbehovet av till exempel $^{99\text{m}}\text{Mo}$. Kostnaden för systemet, baserat på ett strålmål av flytande bly/vismut samt en mantel av anrikade uranplåtar, skulle troligen bli lägre än kostnaden för särskilda reaktorer för samma ändamål.

4.2 Frankrike

Inom det franska kärntekniska programmet började man tidigt att återvinna plutonium från använt reaktorbränsle med hjälp av vattenbaserade separationsmetoder [Skå95]. Av det återvunna plutoniumet tillverkar man sedan MOX-bränsle medan återvunnet uran bland annat omvandlas till uranhexafluorid och återanrikas. Upparbetningstakten planeras motsvara återanvändningen av plutonium som MOX-bränsle. Härigenom motverkas en ackumulering av stora mängder oanvänt plutonium. Man räknar fortfarande med att framtida avancerade separationsmetoder kommer att bygga på vattenbaserade system som kan integreras med nuvarande separationsprocesser.

Sedan december 1991 gäller i Frankrike en lag som definierar de politiska kraven på forskningen inom kärnavfallsområdet fram till år 2006. De alternativ som i första hand bör studeras anges vara (i) separation i kombination med transmutation, (ii) separation i kombination med grundämnesanpassade avfallsformer, (iii) säker geologisk slutlagring av förglasat högaktivt avfall, och (iv) säker direkt geologisk slutlagring av använt kärnbränsle. CEA startade därför långsiktiga forskningsprogram för nå de kunskapsmål som lagen anger. Programmet som bearbetar det första alternativet kallas SPIN (förkortning för Separation et Incineration, på svenska separation och förbränning). Forskningsprogrammet på separationsteknik är idag uppdelat i två underprogram; PURETEX som avser att förbättra den befintliga PUREX-processen genom att minska volymen av processavfallet till en tredjedel samtidigt som även

neptunium utvinns kvantitativt, samt ACTINEX som innefattar de mer långsiktiga avfallsproblemen med tyngre aktinider och långlivade klyvningsprodukter och där man undersöker möjligheten att utvinna dessa atomtyper ur den högaktiva avfallsströmmen. Avsikten är sedan att i första hand transmuttera dessa atomtyper med hjälp av vanliga kärnreaktorer eller underkritiska acceleratorbaserade system, i andra hand att finna bättre kemiska slutprodukter för lagring. Målet är att minska volymen och radiotoxiciteten av avfallet i ett geologiskt djupförvar [IAE97].

Experiment i PHENIX reaktorn (SUPERFACT 1-experimentet) har visat att man kan använda U-Pu-dioxid och urandioxid för att transmuttera de tyngre aktiniderna (Np och Am). Resultatet från SUPERFACT 1-experimentet finns i Tabell 6. Ett andra experiment (SUPERFACT-2) planeras att utföras i PHENIX-reaktorn där man använder en högre utbränningsgrad än i SUPERFACT-1. Även bestrålning av Tc i PHENIX-reaktorn är planerat. Grundläggande bestrålningsstudier har också planerats i den termiska reaktorn OSIRIS (ACTINEAU-experimentet).

Förverkligandet av accelerator drivna system kräver forskning och utveckling inom ett flertal områden som i Frankrike är samlat under GEDEON-programmet där forskningsorganisationerna CEA och CNRS, samt kärnkraftindustri (EDF), deltar [Sal97, Gud97:2].

Inom CEA:s ISAAC-program undersöks reaktor fysikaliska fenomen hos underkritiska accelerator drivna system. I MASURCA anläggningen (CEA/Cadarache) har experiment utförts med källdrivna underkritiska reaktorhårdar under tidsperioden 1995-1997 (MUSE 1, 2 och 3). En rad mätningar har därvid utförts för att verifiera modeller och systemparametrar. CEA/Cadarache:s förslag till prototyp för accelerator drivet system (HADRON) fick status som nationellt program i december 1997.

4.3 Indien

Det indiska kärnkraftprogrammet [IAE97] består av tre delar varav det första steget är att bygga ett antal tungvattenreaktorer (PHWR). Det plutonium som produceras i dessa utvinns och används i ett andra steg i snabba bredreaktorer för att producera ytterligare plutoniumbränsle från uran och/eller ^{233}U -bränsle från torium. Det tredje steget som pågår parallellt med det andra består av reaktorer som körs på bränsle med ^{233}U . Indien har utvecklat teknik som täcker hela området från uranbrytning till upparbetning. Forskning och utveckling för förbättring av existerande upparbetningsprocesser pågår, vilket inkluderar aktinidseparation och separation av långlivade fissionsprodukter. Förbättringar av PUREX-processen för att reducera plutonium-

Tabell 6. Resultat från SUPERFACT-1 experimentet.

Bränslesammansättning	Utbränning (atom%)	Effektiv halveringstid Nuklid	(år)
74% U, 24% Pu, 2% Np	6.4	^{237}Np	2.05
60% U, 20% Am, 20% Np	4.1	^{237}Np	1.8
		^{241}Am	2.2
65% U, 45% Np	4.5	^{237}Np	2.2
74% U, 24% Pu, 2% Am	6.4	^{241}Am	2.2

förlusterna till avfallet samt för att utvinna ^{237}Np och möjligen ^{99}Tc och ^{129}I beaktas. TRUEX-processen med extraktionsreagenset CMPO (carbamoylemetylfosfinoxid) undersöks som en möjlig väg att separera aktinider (Np, Am och Cm) från högaktivt PUREX-avfall. Forskningen sker på Bhabha Atomic Research Centre.

4.4 Italien

Italienska forskningscentra deltar i utprovningen av DIAMEX processen inom ramen för ett pågående EU-projekt (NEWPART). Italien saknar idag kommersiell kärnkraft, men radioaktivt avfall finns från tidigare kärnkraftprogram i form av använt kärnbränsle och i form av högaktivt avfall från småskalig upparbetning. För att stärka konkurrenskraften hos italiensk forskning och industri inom området har ministeriet för vetenskap och teknik beviljat finansiellt stöd till ett forskningsprojekt om separation och acceleratordrivna system.

4.5 Japan

AEC (Atomic Energy Commission), som är ansvarigt för Japans användning och utveckling av kärnkraft, startade i oktober 1988 det s.k. OMEGA-programmet. OMEGA står för "Options for Making Extra Gain of Actinides and fission products generated in the nuclear fuel cycle" och inkluderar forskning om både separation och transmutation. JAERI (Japan Atomic Energy Research Institute), PNC (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) och CRIEPI (Central Research Institute of Electric Power Industry) är de tre större forskningsinstitut i Japan som är involverade i OMEGA programmet. Den första fasen (1988-1996) har ägnats åt grundläggande studier och undersökning av möjligheten att utveckla separations- och transmutationstekniken [Skå95].

De olika instituten har olika inriktning på sin forskning. JAERI har föreslagit en tvåvägs bränslecykel där man kombinerar en konventionell kärnbränslecykel med återvinning av uran och plutonium med en separations- och transmutationscykel för aktinider. Man har också ett förslag på en separationsprocess där man återvinner ett antal aktinider och återför dem som nytt bränsle för lättvattenreaktorer. PNC:s föreslagna separationsprocess bygger på en förbättrad PUREX-process med en efterföljande TRUEX-liknande process där resten av aktiniderna separeras. Det är sedan tänkt att aktiniderna skall förbrännas tillsammans med MOX-bränsle i en snabb brydreaktor (FBR). CRIEPI undersöker däremot möjligheten att använda pyrometallurgiska separationsmetoder för att utvinna aktiniderna och sedan återföra dem som metalliskt bränsle i en FBR.

År 1995 skedde en omorganisation och OMEGA-programmet blev integrerat med ett nationellt neutronforskningsprogram, där utvecklades av en supraleddande högintensitetsaccelerator med protonenergi på 1.5 GeV och 5.3 mA strömstyrka äger rum. Acceleratorn beräknas tas i drift runt år 2005, för att efter år 2008 kompletteras med en experimentell transmutationsanläggning.

Då det japanska snabbreaktorprogrammet lagts på is från 1998 kan man tänka sig en förskjutning av tyngdpunkten mot acceleratordrivna system under de närmaste åren.

4.6 Kina

Högaktivt avfall från kinesiska uppberedningsanläggningar förvaras för närvarande i lagringstankar i väntan på att en förglasningsanläggning ska stå färdigbyggd någon gång under 1998-2000 [IAE97]. Forskning pågår om hur man skall kunna ta tillvara aktiniderna och värdefulla metaller innan slutförvaringen. Ett av världens största neutrondatabibliotek, CENDL-2, släpptes av CNDC (Chinese Nuclear Data Center) 1992 och CNDC har också tagit fram ett ännu större bibliotek, CLIB-2, som bygger på bl a CENDL-2 men är mer lämpat för transmutationsberäkningar. Med data från dessa bibliotek har beräkningar gjorts för att undersöka möjligheten att transmuttera tyngre aktinider i CEFR (China Experimental Fast Reactor) och i fusion-fission-hybridreaktorer. För aktinidseparation har i huvudsak tre olika separationsprocesser studerats, den omvända TALSPEAK-processen [Ryd92, Sva79:2, Sva82, Sva84], DHDECMP-processen [Sch73, Hug90, Ron93] och TRPO-processen [Cho92]. Kinesiska forskare har visat att högren Cyanex 301 har stor förmåga att selektivt extrahera de trevärda aktiniderna Am och Cm från en blandning med lantanider [Jin96, Zhu96]. Utprovningen av detta reagens sker i samarbete med tyska forskare vid Forschungsanlage Jülich inom EU-projektet NEWPART.

4.7 Nederländerna

ECN i Petten har sedan 1991 ett transmutationsforskningsprogram som går under beteckningen RAS. Målet är att bidra till internationell forskning om transmutation och bränsleåtervinning och visa om det är möjligt att på ett acceptabelt sätt införa en sådan process i avfallshanteringen. Efter en första granskning av projektet har regeringen godkänt en fortsättning (1994-1997) vars mål är att utvärdera de tekniska möjligheterna och riskerna med separation och transmutation samt föreslå en möjlig strategi för avfallshanteringen.

4.8 Ryska Federationen

De politiska aspekterna vad gäller kärnavfall i den Ryska Federationen kompliceras av efterdyningarna av Tjernobylolyckan, att stora områden är kontaminerade med radioaktiva atomslag från militär nukleär verksamhet, gränsproblem på grund av Sovjetunionens uppdelning i flera stater, säkerhets- och spridningsproblem vid nedmontering av kärnvapen, samt stora ekonomiska problem. Trots detta pågår ett FoU-program som täcker många olika områden och med många olika forskningsinstitut involverade. Huvudlinjen i det ryska kärnkraftprogrammet är densamma som före Tjernobylolyckan, dvs termiska reaktorer som körs på uranbränsle och natriumkylda snabba reaktorer som utnyttjar återcyklat bränsle. I den Ryska Federationen finns idag fyra olika typer av aktinidnehållande material temporärt lagrade: (i) Överblivet reaktoravfall med låg utbränningsgrad varur U och Pu har separerats (^{237}Np är den huvudsakliga aktinidkomponenten i avfallet). (ii) En komplicerad blandning av tyngre aktinider som blivit kvar efter uppberedning av väl utbränt kärnbränsle från kommersiella kärnreaktorer (hälften av massan utgörs av ^{237}Np och resten av Am och Cm). (iii) Utbrända bränsleelement det vill säga avfallsprodukten från en öppen kärnbränslecykel. (iv) Vapenplutonium i form av demonterade stridsspetsar. Aktinider anses vara lämpliga för transmutation på grund av att de är mycket radiotoxiska och att de är klyvbara med neutroner och således möjliga att använda som

komponenter i kärnbränsle. Två olika koncept för aktinidtransmutation beaktas, nämligen acceleratordrivna underkritiska system och snabba reaktorer kyllda med flytande metall (Pb, Bi).

Sedan 1994 har flera ryska forskningsinstitut varit engagerade i forskning på acceleratordrivna system som en möjlig väg att oskadliggöra vapenplutonium och kärnavfall. Studierna har innefattat realiseringen av en 100 MW linjär protonaccelerator för att driva en specialutformad underkritisk transmutationshärd samt uppberedningsprocesser möjliga att tillämpa i en integrerad transmutationsanläggning. Arbetet har till största delen finansierats av ISTC (International Centre of Science and Technology). Den studerade transmutationsanläggningen innefattade ett strålmål av flytande bly/vismut samt en underkritisk härd med två zoner. Viktiga resultat som framkommit är rekommendationen att använda lättare material som titan eller grafit som fönstermaterial för protonstrålen, samt slutsatsen att problem med ackumulering av ^{210}Po i bly/vismut-kyllda system är av mindre betydelse än tidigare befarat.

Det finns i Ryssland en unik erfarenhet (totalt 70 driftår) av bly/vismut som kylmedel för reaktorer i ubåtar. Inom ISTC:s projekt #559, som fick finansiering och starttillstånd 1996, kommer ett flytande bly/vismut strålmål att konstrueras i Obninsk för att bestrålas i Los Alamos före utgången av 1999. Detta kan bli ett experiment av avgörande karaktär för utvecklingen mot en demonstrationsanläggning. I experimentet deltar IPPE (Obninsk), LANL, CEA/Cadarache och KTH.

4.9 Spanien

Spanska universitet och spansk industri har nyligen (1996-1997) påbörjat forskningsprogram om acceleratordrivna system i samarbete med CERN. Samarbetet sker i bolagsform genom LAESA-konsortiet, vars första uppgift kommer att bli att övertyga lokalbefolkning och den spanska regeringen om behovet av att bygga en prototyp av CERN:s energiförstärkare på spansk mark i Zaragoza. Nuvarande finansiering är dock blygsam.

4.10 Sydkorea

Sedan 1992 pågår ett långsiktigt forskningsprojekt hos KAERI (Korean Atomic Energy Research Institute) med syfte att ta fram en metod för att reducera radiotoxiciteten hos det högaktiva avfallet [IAE97]. Detta program innefattar utvärdering av data, studium av möjligheten att transmuttera tyngre aktinider i PWR, utveckling av programvara för transmutationshastighetsberäkningar och design av transmutationssystem. Konventionella reaktorer, snabba reaktorer och hybridssystem bestående av en underkritisk reaktor och en accelerator studeras. År 1997 reviderades programmet och beslut togs om att forskning på acceleratordrivna system skall vara en av KAERI:s huvudinriktningar fram till år 2007 (för perioden 1997-2001 motsvarar tilldelade medel 30 miljoner kronor per år). På separationsområdet undersöker man en fyrgruppsprocess där man samfäller tyngre aktinider och lantanider med oxalsyra och sedan separerar dessa genom extraktion med HDEHP varefter de tyngre aktiniderna renas ytterligare.

4.11 Tjeckien

I Tjeckien pågår ett forskningsprojekt inom separation och transmutation där man som ett första steg har byggt upp ett nationellt centrum för dokumentation av forskning inom området [Hro97]. Tjeckien har stor erfarenhet av saltsmältor och pyrometallurgiska metoder, och därför ses accelerator-drivna system som en möjlig lösning på problemet med kärnavfallshantering i ett tätbefolkat land. Forskningsinstitut och industri (SKODA) har bildat ett konsortium för att samarbeta om att utveckla teknik för saltsmältor och planerar ett komplext experiment kallat LA-0 för att testa en mängd parametrar i en fluoridbaserad underkritisk reaktor och därtill hörande kemiska processer. Tjeckien kommer dessutom att arrangera 1999 års konferens om accelerator driven transmutationsteknik med tillämpningar.

4.12 USA

I USA har flera olika strategier för transmutation av kärnavfall presenterats. Syftet med FoU inom området är inte klart definierat men man anger tre mål nämligen (i) utveckling av ett ur spridningssynpunkt säkert energisystem, (ii) snabb destruktion av vapenplutonium och (iii) ett energisystem utan långlivat radioaktivt avfall. Några projekt är inriktade mot accelerator drivna system och ett av dessa (APT) undersöker möjligheten att producera tritium, bland annat till kärnvapen. The National Research Council of the National Academy of Science presenterade 1995 en rapport om separation och transmutation i USA och gav rekommendationer för framtida forskning på området [Ras96]. Sex stycken olika separations- och transmutationskoncept diskuterades, baserade på lättvattenreaktorer (LWR), avancerade flytande metall reaktorer (ALMR), accelerator drivna underkritiska reaktorer (ATW), partikelbäddreaktorer, respektive en blandning av snabba och termiska reaktorer (CURE). Rapporten drar slutsatsen att separation och transmutation inte är en tillräcklig orsak att försena utvecklingen av det första slutförvaret för använt kärnbränsle. Det deponerade bränslet i slutförvaret bör dock vara åtkomligt de närmaste 100 åren eftersom eventuella separations- och transmutationssystem kan ha förbättrats under denna tid. Man anser också att tre av de utvärderade koncepten kan vara användbara för transmutation av transurana grundämnen. Slutligen fastslås att man i USA under den närmaste tioårsperioden skall bedriva fortsatt forskning och utveckling inom området, med betoning på förbättrade separationsprocesser för uppärbetning av lättvattenreaktor- och transmutationsbränslen, det vill säga man separerar fler aktinider och vissa utvalda fissionsprodukter med större verkningsgrad.

Under 1996 och 1997 har forskning om S&T aktivt bedrivits främst i Los Alamos där experiment med pyrometallurgiska metoder och bly/vismut-teknik är under utförande [Ven98]. Inom ramen för APT-projektet (Accelerator driven Produktion av Tritium) utvecklas en högeffektsaccelerator. Utsikterna att denna verkligen kommer att byggas är dock små.

Förutom APT-projektet saknas federala anslag för forskning på accelerator drivna system, men i januari 1998 gjordes en oberoende utvärdering av LANL:s ADS-projekt för att ge underlag till ett förslag i senaten om en finansiering på ca 175 miljoner kronor per år.

4.13 Vitryssland

I Vitryssland genomförs ett mycket intressant experiment vid institutet för strålningsfysik och kemi i Sosny. En kraftfull 14 MeV DT-neutrongenerator har konstruerats och används för att mäta transmutationshastigheter för klyvningprodukter och aktinider i underkritiska härdar vid olika neutronspektra. Detta experiment kommer att vara betydelsefullt vid valideringen av kodsysteM och tvärsnittsdata-baser.

4.14 EU

EU:s vetenskapliga tekniska kommitté (STC) delgav under 1997 EU-kommissionen sin syn på ett energiförstärkarsystem för produktion av elektricitet [EU97:1]. STC anser att det inte är realistiskt att omedelbart utveckla ett totalt system eftersom ny teknik måste utvecklas på flera områden, till exempel nya reaktorsystem, nya accelerators, nya bränslen, ny bränsletillverkning, nya uppberedningssystem och nya metoder för att ta hand om avfallet. Utvecklingen av ett helt system skulle bli mycket dyrbart. Man uppskattar grovt denna utvecklingskostnad till tiotals miljarder ECU. Ett energiförstärkarsystem skulle därför inte bli tillräckligt ekonomiskt konkurrenskraftigt jämfört med de nya förbättrade lättvattenreaktorer som är under utveckling, till exempel den europeiska tryckvattenreaktorn. STC rekommenderar därför EU-kommissionen att satsa på utveckling och utvärdering av toriumbaserade bränslen samt att dessutom fortsätta att stödja forskning på underkritiska, snabba neutronmultiplikatorer avsedda för förbränning av aktinider. EU har sedan 1990 bidragit med forskningspengar till olika separations- och transmutationsprojekt (Radioactive waste 1990-1994), bland annat till CEA (Frankrike) som undersökt möjligheterna och kostnaderna för S&T av långlivat avfall. Siemens (Tyskland) har analyserat användningen och säkerheten hos reaktorer avsedda för transmutation och ECN (Nederländerna) har byggt upp en databas för transmutation och datainsamlingen har påbörjats. Även Belgonucléaire (Belgien) och AEA Technology (England) har fått forskningsbidrag. CERN-experimentet TARC (Transmutation through Adiabatic Resonance Crossing) är också finansierat av EU. Parallellt med dessa program har forskning på transmutation i snabba reaktorer utförts vid Transuraninstitutet (TUI) i Karlsruhe, som är ett EU-laboratorium. Vid TUI har man även studerat separationen av några aktinider med ett antal olika extraktionsreagens (CMPO, TRPO, DIDPA). Det nya EU programmet "Nuclear Fission Safety 1994-1998" har en total budget på 170.5 miljoner ECU och inkluderar ett S&T program. Sverige deltar i två av de ingående projekten [EU97:2].

Forskningsprojektet "Impact of Accelerator Based Technologies on nuclear fission safety" (IABAT) finansieras av Europeiska Unionen och startade 1996 med 11 deltagande institut/universitet från sex länder. Projektet koordineras av KTH och är uppdelat i fyra paket:

- Systemstudier av acceleratordrivna hybridsystem
- Utvärdering av acceleratorteknik samt kostnader för cirkulära accelerators
- Grundläggande tvärsnitts- och materialdata
- Studier av bränslecykler för acceleratordrivna system

Under det första året har olika typer av system analyserats ur bränslecykel-, neutronfysik- och toxicitetsperspektiv, genom uppsättande av ett antal kodsysteM. Jämförelser med transmutation

i lättvattenreaktorer har gjorts. Experiment för fastställande av fördelning av klyvningsprodukter vid snabb fission av ^{232}Th och ^{233}U har utförts vid OSIRIS-anläggningen i Sverige. Arbete med utvidgande av transportkoder och tvärsnittsdatbibliotek till energiområdet 20 - 150 MeV har påbörjats.

4.15 IAEA, OECD/NEA och CERN

4.15.1 IAEA

IAEA har arrangerat ett flertal konferenser i S&T och koncentrerar sitt arbete på att sammanställa arbete från länder som forskar inom området, bland annat i rapporten "Status report on actinide and fission product transmutation studies" (IAEA-TECDOC-948) som gavs ut i juni 1997. IAEA stöder forskning på acceleratordrivna system inom ett generellt program om kärntekniska system för energiproduktion och transmutation. Målet är att skapa ett globalt forum för diskussion och teknisk information om utvecklingen på området. Under de senaste åren har följande projekt genomförts.

- Framtagning och publicering av en statusrapport om acceleratordrivna system. Rapporten ger en översikt av pågående forskningsaktiviteter världen över, trender i utvecklingen samt utvärdering av potentialen för acceleratordrivna system tillämpad på energiproduktion, förbränning av vapenplutonium och transmutation av radioaktivt avfall.
- Framtagande och publicering av en statusrapport om toriumbaserade bränslecykler. Rapporten ger en överblick om erfarenhet och ny forskning, samt pekar på områden som kräver ytterligare kunskaper.
- Ett koordinerat forskningsprogram om toriumbaserade bränslecykler i acceleratordrivna system där tiotalet forskningsgrupper världen över deltar i en jämförande studie av beräkningsmetoder för neutronfysik, utbränning och toxicitet, med syfte att nå fram till väldefinierade utvärderingsmetoder för simuleringskoder för acceleratordrivna system.

4.15.2 OECD

OECD-Nuclear Energy Agency (NEA) startade 1988 ett program kallat "International Information Exchange Programme" som behandlar fysikaliska och kemiska egenskaper hos elementen i kärnbränslecykeln, separation och transmutation. NEA:s ståndpunkt i frågan kan sammanfattas i fyra punkter: (i) S&T av aktinider har potential att bidra till lösandet av problemen med det radioaktiva avfallet genom att reducera mängden långlivade radioaktiva atomtyper. S&T bör dock inte betraktas som ett alternativ till geologiska djupförvar och bör inte presenteras som ett sådant. (ii) Värdet av S&T måste verifieras genom utvärdering av strategi, vetenskap, teknik, ekonomi och säkerhet. (iii) S&T är ett område som lämpar sig för internationellt samarbete där NEA bör verka inom olika områden såsom avfallshantering, vetenskapliga och strategiska studier, teknik och säkerhet. (iv) För att uppnå god koordination av arbetet krävs ett effektivt informationsutbyte mellan de olika kommittéerna inom NEA.

4.15.3 CERN

Rubbias EET-grupp (Emerging Energy Technology) har sedan 1995 arbetat på ett acceleratordrivet system med flytande bly som strålmål och kylmedel samt en toriumbaserad bränslecykel. Målet har gradvis övergått från "säker" energiproduktion med en "ren" $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ -cykel, till transmutation av högre aktinider med toriumcykeln som grund. Experimentella studier i samarbete med franska CRNS och sydeuropeiska universitet har förbättrat kunskapen om spallationsprocess och neutronfysik i ett lättvattenmoderat ^{238}U -strålmål (FEAT - First Energy Amplifier Test) och fast bly-strålmål (TARC - Transmutation through Adiabatic Resonance Crossing). CERN har också initierat bildandet av LAESA-konsortiet (Laboratorio del Amplificador de Energia), se 4.9 ovan.

Ett betydelsefullt arbete har gjorts genom framtagandet av EET:s Monte Carlo kod för simulering av ett acceleratordrivet system. Hela händelsekedjan från protoninducerad spallation och högenergikaskad till tidsutveckling av sammansättningen under utbränning finns beskriven i ett väl integrerat programpaket.

CERN arbetar också med acceleratorkonstruktion och har pekat på fördelarna med att använda en högintensitetcyklotron som protonkälla. Konceptet verkar framför allt intressant för konstruktionen av en kompakt prototyp, där protonenergier på 400-800 MeV och strömstyrkor på 2-5 mA vore tillräckliga. För de effekter som beräknas vara nödvändiga i fullskaleanläggningar (> 10 MW) krävs det antingen flera cyklotronkomplex eller linjära acceleratörer.

Möjligheten att genomföra separation och transmutation som ett led i hanteringen av använt kärnbränsle och högaktivt avfall kan idag i huvudsak anses som vetenskapligt belagd. Det är emellertid ännu för tidigt att bedöma om denna typ av avfallsbehandling har kostnadsmässiga eller säkerhetsmässiga fördelar i ett kort tidsperspektiv jämfört med nuvarande planer för hantering av använt bränsle och högaktivt avfall. Neutroner från såväl termiska reaktorer som snabbreaktorer och acceleratordrivna underkritiska reaktorer kan utnyttjas för transmutation av långlivade radioaktiva atomtyper. Det bör påpekas att termiska reaktorer och snabbreaktorer har byggts och drivits med god erfarenhet under lång tid, medan acceleratordrivna reaktorer fortfarande bara finns på ritbordet. Var och en av dessa neutronkällor har sina för och nackdelar vid transmutation och passar förmodligen bäst för vissa bestämda atomtyper. Vid inbördes jämförelse är man idag överens om att transmutation i reaktortyper med högenergetiska neutroner har fördelar beträffande reduktion av den totala mängden högre aktinider parat med en relativt effektiv energiproduktion, medan reaktorer med lågenergetiska neutroner framförallt är fördelaktiga om man bara vill reducera mängden av vissa radiotoxiska atomslag och producera energi till låg kostnad. En möjlig utveckling är att man utnyttjar sammansatta system där var typ av neutronkälla har en bestämd uppgift. Ett tänkbart exempel på ett sådant kombinationssystem ges i Figur 6. I detta system utnyttjas de speciella egenskaperna hos ett acceleratordrivet system för att åstadkomma en effektiv transmutation av neptunium, americium och curium och möjligen även andra atomtyper med små reaktionstvårsnitt. Här är det acceleratordrivna systemet därför snarare ett komplement till mer konventionella kärnreaktorer än en ersättning för dessa.

Karakteristiskt för alla transmutationsprocesser är att de måste samverka med en lämplig kemisk separationsprocess där otransmuterat material återvinns från bestrålat material med hög verkningsgrad. Resten blir radioaktivt avfall. När man bedömer effekten hos en kombinerad separations- och transmutationsprocess finns det en stark koppling mellan återvinningsgraden i separationsprocessen, transmutationsprocessens effektivitet och förlusterna av otransmuterat material till olika avfallströmmar. Såväl vattenbaserad vätske-vätskeextraktion som olika pyrokemiska separationsmetoder har föreslagits för separationsprocessen. Kunskaperna om vattenbaserad vätske-vätskeextraktion är stora och bygger på över 40 års driftserfarenheter i industriell skala. Detta medför att man är väl medveten om såväl fördelar som problem med denna teknik. Å andra sidan måste pyrokemiska separationsmetoder för behandling av radioaktiva ämnen ännu anses vara på laboriestadiet och kräver fortfarande en omfattande utveckling av både metoder och nya apparatyper. Detta medför att vi ännu saknar god kännedom om dessa metoders för- och nackdelar vid behandling av radioaktiva ämnen i industriell skala. Det verkar därför ännu vara allt för tidigt för att försöka jämföra vattenbaserad kemi med pyrokemi på likvärdig kunskapsgrund. Intresset för pyrokemi är för närvarande störst i USA och Ryssland medan de stora länderna inom EU i huvudsak fortsätter att fokusera sina utvecklingsinsatser på förbättring och vidareutveckling av vattenbaserade metoder. Om separation och transmutation skall kunna bli ett realistiskt alternativ till nuvarande bränslecykler krävs fortfarande betydande och långsiktiga F&U insatser på separationstekniken. Ännu finns dock inga tecken som motsäger att stora förbättringar kan vara möjliga.

Det är idag helt klart att separation och transmutation inte kan eliminera behovet av ett slutlager för högaktivt avfall. I ett kort tidsperspektiv kommer radioaktiviteten hos avfallet till och med att vara högre än i det klassiska fallet beroende på att långlivade atomtyper i stor utsträckning

omvandlats till betydligt mer kortlivade atomslag. De kortare halveringstiderna medför å andra sidan att avfallets farlighet minskar relativt snabbt med tiden. Trots användning av en effektiv separations- och transmutationsteknik kommer dock avfallet att innehålla mindre mängder av mycket långlivade radioaktiva atomtyper.

Även om det finns en bred vetenskaplig övertygelse om att nuvarande typer av bränslecykler i kombination med planerad avfallshantering och geologiska slutförvar kommer att ge ett tillfredsställande skydd för mänskligheten för all överskådlig framtid finns fortfarande ett betydande intresse av att undersöka om en ytterligare minskning av den framtida potentiella farligheten hos avfallet kan erhållas genom separation och transmutation och till vilken kostnad detta kan ske. En av svagheterna hos nuvarande planerade slutförvar är svårigheten att förutse alla möjliga framtida händelser som skulle kunna påverka slutlagrets funktion. Styrkan hos en separations- och transmutationsprocess skulle vara att minska de möjliga framtida konsekvenserna av sådana oförutsedda händelser. Är det å andra sidan så att en utveckling av separations- och transmutationsprocesser kommer att dölja det faktum att de framtida riskerna från ett väl utfört slutlager redan bedöms som mycket små?

Redan i våra tidigare rapporter har vi påpekat att införandet av en ekonomiskt självbärande separations- och transmutationsteknik är mest sannolik i ett expanderande kärnkraftprogram. I detta sammanhang debatteras fortfarande om en ökande användning av kärnkraft med tillhörande separations- och transmutationsprocesser bör ses som ett tänkbart mål eller om separations- och transmutationsteknik kan utgöra ett mål oberoende av den framtida utvecklingen av konventionell kärnkraft. En relativt snabb global kärnkraftutbyggnad medför med säkerhet stigande priser på nytt kärnbränsle, vilket kan göra bränslehantering med upparbetning och återcyklning mer ekonomiskt än idag. Snabbreaktorer och acceleratordrivna reaktorer kan då vara ekonomiskt och naturresursmässigt attraktiva eftersom de förmår utnyttja energiinnehållet i naturligt uran och torium hundrafalt bättre än dagens lättvattenreaktorer. Dagens använda kärnbränsle kan därvid tänkas övergå från att vara ett avfall till att vara en viktig råvara för fortsatt framställning av kärnenergi.

Forskning på och utvärdering av separation- och transmutation pågår framgent i många industriländer och inom flera internationella organisationer på grund av dess potential som en långsiktigt uthållig, miljövänlig energikälla och på grund av dess förmåga att destruera många långlivade radioaktiva, vilket kan leda till lättare accepterbara slutlager för radioaktivt avfall. Kostnaderna för forsknings- och utvecklingsinsatserna på separation- och transmutation bedöms vara så stora att kräver internationell samverkan. I detta sammanhang kan det vara värt att observera att europeiska och japanska motiv för utveckling av separations- och transmutationstekniken tycks vara andra än de som styr utvecklingen i USA.

Vad gäller separationsområdet har Sverige tidigt medverkat i utveckling av de vattenbaserade separationssystem som idag utgör grunden för upparbetningsteknologin. Dessutom har svensk forskning tidigare medverkat i utveckling av de mer avancerade separationsprocesser som beskrivs i rapporten. Kompetens och erfarenheter av vattenbaserad separationsteknik har därför alltid varit stor i Sverige, under senare årtionden med tyngdpunkten vid Institutionen för kärnkemi på CTH och med dagens forskning som bedrivs inom separations och transmutationsområdet kan kompetens inom området vidmakthållas i viss omfattning. Vad gäller andra separationsmetoder som genomförs vid hög temperatur (metallurgi, elektrolytisk separation)

är den svenska erfarenheten mycket begränsad inom kärnteknisk verksamhet. Däremot finns stor industriell erfarenhet av dessa metoder inom den svenska metallindustrin, men tekniken i vad gäller avfallsproduktion, utsläpp till omgivningen, arbetsmiljö- och säkerhetsaspekter kan då inte på något vis jämföras med den kärntekniska verksamheten.

Neutronfysik och reaktorteknologi har också en mycket stark kompetensgrund i Sverige, vilket bland annat visar sig i att 9 av Sveriges 12 reaktorer är av svensk originalkonstruktion. Internationellt har även senare svenska förslag från ABB Atom (tidigare Asea-atom) angående ny reaktorteknik (t.ex. PIUS) väckt stort internationellt intresse, även om man nu i efterhand kan konstatera att dessa förslag till nya säkra reaktorkonstruktioner kom för tidigt och ännu inte accepterats internationellt. Detta har föranlett ett stort avbräck i den breda kompetensen som fanns inom området, även om kunskapen ännu inte gått förlorad. Forskningsverksamhet inom reaktorteknologi och neutronfysik genomförs vid KTH, CTH och Uppsala universitet. KTH har där klart profilerat mot acceleratordriven transmutation vilket beskrivs i rapporten.

Vad gäller acceleratorteknik har även Sverige hållit sig väl framme på FoU och även kunnat hävda sig i kommersiell tillverkning av accelerators. Med nära koppling till universitet och högskola (Uppsala universitet och Manne Siegbahn Institutet, MSI) pågår numera utveckling av komponenter till accelerators som erhåller internationellt erkännande.

Forskning angående säkerhetsaspekter inom kärnteknisk verksamhet startade tidigt i Sverige vilket bland annat har resulterat i internationellt accepterade metoder för riskanalyser. Denna verksamheten bedrivs numera vid Centrum för säkerhetsforskning på KTH.

Sammanfattningsvis kan vi konstatera vi för svenskt vidkommande har goda möjligheter att bibehålla en relativt hög kompetens inom områden som har direkt anknytning till separation och transmutation under förutsättning att det finns medel till att bedriva forskning inom dessa områden.

Då fortsatt utbildning av högkvalificerad personal krävs så länge som landet har kvar kärnkraftanläggningar utgör forskning och utveckling på separations- och transmutationstekniken en bra grund för att kunna attrahera nya goda studenter till ämnen inom kärnkraftområdet. Även om en separations- och transmutationsanläggning kanske aldrig blir aktuell för svenskt vidkommande finns ett fortsatt behov av personer med kvalificerad kunskap inom de kärntekniska områdena under överskådlig tid.

Vi rekommenderar därför att SKB även fortsättningsvis stödjer svensk FoU inom området, med målsättningen att verksamheten bedrivs i ett brett internationellt samarbete, samt att SKB (eventuellt i samarbete med någon statlig myndighet som SKI och SSI) medverkar i koordinering av de svenska insatserna inom området. Att enbart följa den internationella utvecklingen inom separation och transmutation räcker inte för att hålla tillräcklig kompetens inom området. Sverige måste bedriva egen forskning för att få insikt och framförallt för att skapa tilltro till bedömningar av den internationella utvecklingen inom separations och transmutationsområdet.

LITTERATUR

Dagsaktuell information kan hämtas via internet: <http://www.itumagill.fzk.de/ADS/>

- Adn96 Adnet, J. M., Donnet, L., Brossard, Ph., Bourges, J., *The Selective Extraction of Oxidized Americium*, C-O3 i Vol. I, F. David, J. C. Krupa (Eds), 4th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, St Malo, France, Sept. 8-13, 1996.
- And78 Andersson, G., *On Waste Transmutation Strategies*, Studsvik Arbetsrapport-Technical Report K2-78/8, Studsvik, 1978.
- Cam77 Cametti, J., Schmidt, E., *On the Neutron-Physical Feasibility of Transmutation of Actinides Other than Fuel in Nuclear Power Reactors*, sid. 177 i Proc. 1st Technical Meeting on the Transmutation of Actinides, Ispra, Italy March 16-18, 1977, EUR-5897 EN/FR (1977).
- Car96 Carlsson, J., *Optimisation of neutron production in a spallation target with the FLUKA code*, Examensarbete, KTH (1996)
- Cho92 Chongli, S., Yongjun, Z., Dazhu, Y., et al., *The Removal of Actinide Elements from High Level Radioactive Waste by Trialkyl Phosphine Oxide (TRPO)*, Chinese Journal of Nuclear Science and Engineering, 12(3) (1992) 225.
- Cho95 Choppin, G., Liljenzin, J. O., Rydberg, J., *Radiochemistry and Nuclear Chemistry*, Butterworth-Heinemann, Oxford, 1995.
- Con97 Condé, H., (Ed.), *Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications*, Proc. 2:nd Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, June 3-7, 1996, Kalmar, Department of Neutron Research, Uppsala University, ISBN 91-506-1220-2 (2 volumes), Stockholm, 1997.
- Cro90 Croff, A. G., *Historical Perspective on Partitioning and Transmutation*, in C. W. Forsberg et. al. Historical Perspective, Economic Analysis and Regulatory Analysis of the Impacts of Waste Partitioning-Transmutation on the Disposal of Radioactive Wastes, Oak Ridge National Laboratory Report ORNL/TM-11650, Oktober 1990.
- Dev96 Devell, L., Hedin, G., *Transmutationsreaktioner för långlivade aktinider och klyvningsprodukter*, Arbetsrapport ES-96/44, Studsvik Eco & Safety AB, Nyköping, Augusti 1996.
- Don96 Donnet, L., Fedosseev, A. M., Chartier, D., Adnet, J. M., *Studies on Electrochemical Oxidation of Americium with Lacunary Heteropolyanions in Nitric Acid Media*, C-P5 i Vol. I, F. David, J. C. Krupa (Eds), 4th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, St Malo, France, Sept 8-13, 1996.
- EU97:1 *Opinion of the Scientific and Technical Committee (STC) on a Nuclear Energy Amplifier*, EU rapport EUR 17616 EN, Luxemburg 1997.

- EU97:2 *Annual Progress Report 1996 on Exploring Innovative Approaches, Reactor Safety, Radioactive Waste Management and Disposal and Decommissioning Research Areas of the "Nuclear Fission Safety" Programme 1994-98*, EU rapport EUR 17852 EN, Luxemburg 1997.
- Fer67 Ferguson, D.E., *Molten-Salt Reactor Processing*, sid. 95-103, Chem. Technol. Div. Ann. Progr. Rept., May 31, 1967, ORNL-4145.
- Gee96 van Geel, J., Magill, J., Matzke, Hj., *Bury or Burn? Plutonium - The Next Nuclear Challenge*, in Proc. of the 21st Annual Symposium of the Uranium Institute, The Uranium Institute, London, 1996.
- Gla96 Glatz, J.-P., Apostolidis, C, Molinet, R., Nicholl, A., Pagliosa, G., Römer, K., Bokelund, H., Koch, L., *Reprocessing of Irradiated Transmutation Fuel Targets*, G-O3 i Vol. II, F. David, J. C. Krupa (Eds), 4th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, St Malo, France, Sept. 8-13, 1996.
- Gud93 Gudowski, W., Pettersson, K., Thedéen, T., *Accelerator transmutation of wastes (ATW) - Prospects and safety*, SKB Technical Report 93-22, SKB, Stockholm, Oktober 1993.
- Gud97:1 Gudowski, W., *Conference Wrap-up*, Proceedings of the 2nd international conference on Accelerator Driven Transmutation Technologies and Applications, Uppsala University (1997).
- Gud97:2 Gudowski, W., (Ed.), *Accelerator Driven Systems: Energy Generation and Transmutation of Nuclear Waste - Status Report*, IAEA-TECDOC-985, IAEA, Wien, November 1997.
- Haa96 Haas, D., *The Recycling of Weapons Grade Plutonium in Nuclear Power Plants*, in Proc. of the 21st Annual Symposium of the Uranium Institute, The Uranium Institute, London, 1996.
- Hag77 Hage, W., Schmidt, E., *Reactor Physics Aspects of Burning Actinides in a Nuclear Reactor*, sid. 13 i Proc. 1st Technical Meeting on the Transmutation of Actinides, Ispra, Italy, April 16-18, 1977, EUR-5897 EN/FR (1977).
- Hes63 Hesson, J. C., Feldman, M. J., and Burris, L., *Description and Proposed Operation of Fuel Cycle Facility for Second Experimental Breeder Reactor*, Report ANL-6605, Argonne National Laboratory, April 1963.
- Hro97 Hron, M., Pazdera, F., *The LA-0 Project for Complex Testing of Nuclear Incineration Systems*, i Proc. Global 97, sid 1295, 1997.

- Hug90 Hugon, Z., Lichun, F., Xinfang, W., et al., *Separation of Actinides and Lanthanides from Nuclear Power Reactor Fuel Reprocessing Waste by Bidentate Organophosphorous Extractant*, Atomic Energy Science and Technology (China), 24(4) (1990) 66.
- IAE96 *Advanced fuels with reduced actinide generation*, Proc. of a Technical Committee meeting held in Vienna 21-23 November 1995, IAEA-TECDOC-916, ISSN 1011-4289, IAEA, Wien, November 1996.
- IAE97 *Status report on actinide and fission product transmutation studies*, IAEA-TECDOC-948, ISSN 1011-4289, IAEA, Wien, Juni 1997.
- Ike96 Ikegame, R., *Nuclear Power and Recycling in Japan*, i Proc. of the 21st Annual Symposium of the Uranium Institute, The Uranium Institute, London, 1996.
- Jam91 Jameson, R. A., Ed., *Proceedings of the Specialist Meeting on Accelerator-Driven Transmutation Technology for Radwaste and other Applications*, Saltsjöbaden, Stockholm, Sweden, 24-28 June 1991, SKN Report No. 54, November 1991.
- Jen95 Jensen, S. E., Ølgaard, P. L., *Description of the Prototype Fast Reactor at Dounreay*, NKR/RAK-2(95)TR-C1, ISBN 87-550-2265-0, Risø National Laboratory, Risø, December 1995.
- Jin96 Jing, C., Zhu, Y., Jiao, R., *The Separation of Americium from Lanthanides by Purified Cyanex 301 Extraction*, Sep. Sci. Technol. 31(19) (1996) 2723.
- Kha96 Khankhasayev, M. Kh., Kurmanov, Z. B., Plendl, H. S., (Eds.), *Nuclear Methods for Transmutation of Nuclear Waste: Problems, Perspectives, Cooperative Research*, Proc. Int. Workshop, Dubna, Russia, May 29-31 1996, ISBN 981-02-3011-7, December 1996.
- Kni81 Knighton, J. B., Hagan, P. G., Navratil, J. D., Thompson, G. H., *Status of Americium-241 Recovery at Rocky Flats Plant*, sid 53 i Navratil, J. D., and Schulz, W., (Eds), *Transplutonium Elements - Production and Recovery*, ACS Symposium Series 161, American Chemical Society, Washington, D.C., 1981.
- Kor96 Kormilitzyn, M. V., Bychkov, A. V., Smolensky, V. V., *Application of Pyroelectrochemical Methods for Production of the Fuel Compositions (U,Np)O₂, (U,Pu,Np)O₂, (U,Am)O₂ in Molten Chlorides*, G-08 i Vol. II, F. David, J. C. Krupa (Eds), 4th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, St Malo, France, Sept. 8-13, 1996.
- Lai94 Laidler, J. J., *Use of Pyroprocessing in the Separation of Spent Fuel for Transmutation*, sid. 627, i E. D. Arthur, A. Rodrigues, S. O. Schriber (Eds), Proc. Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications, AIP Conf. Proc. 346, Woodbury, New York, 1995.

- Lem97 Lemort, F., Piccinato, R., Boen, R., Berthier, P., Allibert, M., *Investigation of Actinide-Lanthanide Separation by a Pyrochemical Process in a Molten Fluoride and Liquid Zinc Alloy Medium*, Proc. OECD/NEA Workshop on Long-Lived Radionuclide Chemistry in Nuclear Waste Treatment, CEA-VALRHÔ, 18-20 June, 1997, under tryckning.
- Lil80 Liljenzin, J. O., Hagström, I., Persson, G., Svantesson, I., *Separation of Actinides from PUREX Waste*, Proc. ISEC-80, Sess. 14/80-180, Liège, 1980.
- Lil81:1 Liljenzin, J. O., Persson, G., Svantesson, I., Wingefors, S., *Experience from Cold Tests of the CTH Actinide Separation Process*, Transplutonium Elements - Production and Recovery, ACS Symp. Ser 161, American Chemical Society, Washington, 1981, sid. 203-221.
- Lil81:2 Liljenzin, J. O., Persson, G., *Equipment, Operation and Some Results from a Hot Test of the CTH Actinide Separation Process*, sid 321-337 i R. Odoj, E. Merz (Eds.), Proc. International Seminar on Chemistry and Process Engineering for High-Level Liquid Waste Solidification, Jül-Conf-42 (Vol 1), ISSN 0344-5798, Jülich, 1981.
- Lil82 Liljenzin, J. O., *A Method for the Final Treatment of Nuclear Fuel Wastes*, IAEA Technical Report Series No. 214, IAEA, Vienna, 1982, sid. 63-65.
- Lil84 Liljenzin, J. O., Persson, G., Svantesson, I., Wingefors, S., *The CTH-process for HLLW Treatment. Part I - General Description and Process Design*, Radiochim. Acta. 35, 1984, sid. 155-162.
- Lil91 Liljenzin, J. O., Skålberg, M., *The CTH-Process for Actinide and Fission Product Separation from HLLW*, Specialist Meeting on Accelerator-Driven Transmutation Technology for Radwaste and other Applications, Saltsjöbaden, Stockholm, Sweden, 24-28 June 1991, National Board for Spent Nuclear Fuel, Stockholm and Los Alamos National Laboratory, USA, LA-12205-C Conference SKN Report No. 54, 1991, sid. 441-447.
- Lil96 Liljenzin, J. O., Rydberg, J., *Risks from Nuclear Waste*, SKI Report 96:70, ISSN 1104-1374, SKI, Stockholm, November 1996.
- Lin96 Lindholm, I., *Depleted Uranium: Valuable Energy Source or Waste for Disposal?* in Proc. of the 21st Annual Symposium of the Uranium Institute, The Uranium Institute, London, 1996.
- Mad98 Madic, C., Hudson, M. J., *High-level liquid waste partitioning by means of completely incinerable extractants*, Report EUR 18038 EN, ISBN 92-828-2364-4, European Commission, Luxembourg, 1998.

- Mag96 Magill, J., Peerani, P., van Geel, J., Landgren, A., Liljenzin, J. O., *Inherent Limitations in Toxicity Reduction Associated with Fast Energy Amplifiers*, sid. 1114-1120, i [Con97].
- Mag95:1 Magill, J., Matzke, Hj., Nicholaou, G., Peerani, P., van Geel, J., *A Once Through Scheme for Weapons Grade Pu Disposition in LWR's: Proliferation and Criticality Aspects*, Proc. Techn. Committee Mtg. on the Recycling of Plutonium and Uranium in Water Reactor Fuel, Newby Bridge, Windemere U.K., 3-7 July 1995, IAEA under tryckning.
- Mag95:2 Magill, J., Matzke, Hj., Peerani, P., van Geel, J., *A Strategy for Pu Destruction in PWR's*, i Advanced fuels with reduced actinide generation, Proc. of a Technical Committee meeting held in Vienna 21-23 November 1995, IAEA-TECDOC-916, ISSN 1011-4289, IAEA, Wien, November 1996.
- Mag95:3 Magill, J., Carroll, O., Gerontopoulos, P., Richter, K., van Geel, J., *Advantages and Limitations of Thorium Fuelled Energy Amplifiers*, sid. 81-96, i Unconventional Options for Plutonium Disposition, IAEA-TECDOC-840, IAEA, Wien 1995.
- Mos96 Moisy, Ph., Gaquer, I., Madic, C., *Redox Chemistry of Np(VI)/Np(V) Couple in Nitric/Nitrous Acid Aqueous Media*, C-P7, vol. 1, i F. David, J. C. Krupa, 4th International Conference on Nuclear and Radiochemistry, St Malo, France, Sept. 8-13, 1996.
- Mus92 Musikas, C., and Schulz, W. W., *Solvent Extraction in Nuclear Science and Technology*, sid 413 i Rydberg, J., Musikas, C., Choppin, G. R., (Eds), Principles and Practices of Solvent Extraction, Marcel Dekker, New York 1992.
- Mö197 Möller, E., *Impact of the neutron energy spectrum on the performance of Accelerator Driven Transmutation of waste*, Proceedings of the 2nd international conference on Accelerator Driven Transmutation Technologies and Applications, Uppsala University (1997)
- NEA97 OECD/NEA, *Actinide Separation Chemistry in Nuclear Waste Streams and Materials*, NEA/NSC/DOC(97)19, OECD, Paris, 1997.
- Per80 Persson, G., Liljenzin, J. O., Wingefors, S., Svantesson, I. *Reducing the Long-term Hazard of Radioactive Waste*, Proc. 2nd Technical Meeting on the Nuclear Transmutation of Actinides, Ispra, 1980, sid. 247-255.
- Per83 Persson, G. *A Process for Recovery of Actinides from Reprocessing High-Level Liquid Waste*, Thesis, Chalmers Univ. of Techn., Göteborg, 1983.
- Per84:1 Persson, G., Wingefors, S., Liljenzin, J. O., Svantesson, I. *The CTH-Process for HLLW Treatment. Part II - Hot Test*, Radiochim. Acta., 35, 1984, sid. 163-172.

- Per84:2 Persson, G., Svantesson, I., Wingefors, S., Liljenzin, J. O. *Hot Test of a TALSPEAK Procedure for Separation of Actinides and Lanthanides using Recirculating DTPA - Lactic Acid Solution*, Solvent Extraction & Ion Exchange, 2(1), 1984, sid. 89-113.
- Poo97 Pooley, D., *Opinion of the Scientific and Technical Committee (STC) on a nuclear energy amplifier*, EUR 17616, ISBN 92-828-0106-3, European Commission, Luxembourg, 1997.
- Ras96 Rasmussen, N. C., Burke, T. A., Choppin, G. R., Croff, A. G., Forsen, H. K., Garrick, B. J., Googin, J. M., Grunder, H. A., Hebel, L. C., Hunter, T. O., Kazimi, M. S., Kintner, E. E., Langley, R. A., Mason, E. A., McLafferty, F. W., Pigford, T. H., Reicher, D. W., Watson Jr., J. E., Wiltshire, S. D., *Nuclear Wastes: Technologies for Separations and Transmutation*, National Academy Press, Washington D.C., 1996.
- Ras97 Rasmussen, N. C., Pigford, T. H., *Transmutation of radioactive waste: Effect on the nuclear fuel cycle*, Proc. Int. Symp. on Nuclear Fuel Cycle and Reactor Strategies, IAEA-SM-346/41, IAEA, Wien, Juni 1997.
- Ron93 Ringhua, S., Hugen, Z., Jingxi, H., et al., *Study on the Separation of Actinides and Lanthanides Recovered from High-Level Liquid Waste (HLLW) by CMP Process*, Atomic Energy Science and Technology (China), 27(3) (1993) 242.
- Ryd92 Rydberg, J., Musikas, C., Choppin, G. R., (Eds), *Principles and Practices of Solvent Extraction*, Marcel Dekker, New York 1992.
- Sal97 Salvarores, M., et al., *A Multipurpose Experimental Accelerator-Driven Reactor: The HADRON Concept*, i Proc. Global 97, sid 428, 1997.
- Sas97 Sasa, T., et al., *Conceptual Design Study and Code Development for Accelerator-Driven Transmutation Systems*, i Proc. Global 97, sid 435, 1997.
- Sch73 Schulz, W. W., USAEC Report ARH-SA-203, Atlantic Richfield Hanford Company, Richland, Washington, 1973.
- Skå92 Skålberg, M., Liljenzin, J. O., *Partitioning and transmutation. A review of the current state of the art*, SKB Technical Report 92-19, SKB, Stockholm, Oktober 1992.
- Skå93 Skålberg, M., Liljenzin, J. O., *Partitioning and Transmutation, The State of the Art*, Nuclear Engineering International, Vol. 38(463) (1993) 30-33.
- Skå95 Skålberg, M., Landgren, A., Spjuth, L., Liljenzin, J. O., Gudowski, W., *Partitioning and transmutation (P&T) 1995. A review of the current state of the art*, SKB Technical Report 95-32, SKB, Stockholm, December 1995.

- Sow77 Sowerby, M.G., *Nuclear Incineration Strategies*, sid. 237 i Proc. 1st Technical Meeting on the Transmutation of Actinides, (see 1977), Ispra, Italy, April 16-18, 1977, EUR-5897 EN/FR (1977).
- Sri89 Srinivasan, M., Subba Rao, K., Dingankar, M. V., *Special Actinide Nuclides: Fuel or Waste?* sid. 799-806 i J. W. Behrens, A. D. Carlson (Eds), 50 Years with Nuclear Fission, ISBN 0-89448-144-4, American Nuclear Society, 1989.
- Ste64 Steinberg, M., Watsak, G., Manowitz, B., *Neutron Burning of Long-Lived Fission Products for Waste Disposal*, Brookhaven National Laboratory Report BNL-8558, September 1964.
- Sva79:1 Svantesson, I., Hagström, I., Persson, G., Liljenzin, J. O. *Distribution ratios and empirical equations for the extraction of elements in Purex high level waste solutions. I:TBP*, J. Inorg. Nucl. Chem., 41, 1979, sid. 383-389.
- Sva79:2 Svantesson, I., Hagström, I., Persson, G., Liljenzin, J. O. *Separation of Am and Nd by Selective Stripping and Subsequent Extraction with HDEHP using DTPA-Lactic Acid Solution in a Closed Loop*, Radiochem. Radioanal. Letters, 37, 1979, sid. 215-222.
- Sva80 Svantesson, I., Hagström, I., Persson, G., Liljenzin, J. O. *Distribution Ratios and Empirical Equations for the Extraction of Elements in PUREX High Level Waste Solutions. II:HDEHP*, J. Inorg. Nucl. Chem., 42, 1980, sid. 1037-1043.
- Sva82 Svantesson, I., Lundqvist, R. *Extraction mechanisms of Am in the Talspeak Process*, Proc. 12ème Journées des Actinides, Institut de Physique Nucleaire, Orsay, France, 24-25 May, 1982, sid 65.
- Sva84 Svantesson, I. *A Reversed TALSPEAK Process for the Separation of Actinides from Lanthanides*, Thesis, Chalmers University of Technology, Göteborg, 1984.
- Tak97 Takashita, H., Takahashi, H. Nucl. Instr. & Meth. A 399 (1997) sid. 421
- Tal97 Talamo, A. *Studies of spallation neutron sources for sub-critical multiplying systems*, Examensarbete, KTH och Polytechnico di Torino (1997).
- Tuc97 Tucek, K., Wallenius, J., Gudowski, W. and Soltan, A., *IAEA Accelerator Driven System Benchmark*, Proceedings of IAEA Technical committee meeting on feasibility and motivation for hybrid concepts, (to be published).

- Ven98 Venneri, F., Li, N., Williamson, M., Houts, M., Lawrence, G., *Disposition of Nuclear Waste Using Subcritical Accelerator-Driven Systems: Technology Choices and Implementation Scenario*, Rapport LA-UP 98-985, Los Alamos National Laboratory, 1998.
- Win84 Wingefors, S., Persson, G., Liljenzin, J. O. *Treatment of Radioactive Waste Solution by Sorption on Inorganic Ion Exchangers*, *Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle*, 5, 1984, sid. 327-343.
- Zhu96 Zhu, Y., Jing, C., Jiao, R., *Extraction of Am(III) and Eu(III) from Nitrate Solutions with Purified Cyanex 301*, *Solvent Extr. Ion. Exch.*, 14(1) (1996) 61.

APPENDIX 1

Accelerator drivna underkritiska system

Under det senaste decenniet har en gammal kärnteknisk idé fått ny luft under vingarna, nämligen det källdrivna underkritiska systemet, eller "hybridsystemet". Idén går ut på att en kraftfull neutronkälla driver en underkritisk härd. I den underkritiska härden produceras då ännu fler neutroner och stora mängder värme genom fission av klyvbart material. Tack vare tekniska framsteg kan idag högeffektacceleratorer tillverkas som gör hybridsystem praktiskt tillämpbara. Spallation (utrivning) av neutroner i strålmål för acceleratorer utgör den kraftigaste tillgängliga neutronkällan för dessa system.

Partikelaccelerator- och reaktorteknologi har under flera decennier utvecklats på parallella spår, där ett gemensamt mål varit förmågan att producera ett stort antal neutroner via kärnklyvning (reaktorer) eller spallation (acceleratorer). Framsteg i partikelaccelerator teknik parad med politiska hinder för att bygga nya reaktorer har lett till att flera storskaliga tillämpningar av accelerator drivna system föreslagits. Dessa tillämpningar är baserade på den bättre neutronbalansen i hybridsystem och på deras, i jämförelse med klassiska reaktorer, större flexibilitet under drift. Till dem hör spallationsneutronkällor, accelerator driven produktion av särskilda isotoper för medicinska och militära ändamål, accelerator driven transmutation av kärnavfall, och accelerator driven energiproduktion.

Acceleratorer och strålmål

För fysiker har partikelacceleratorer under lång tid varit viktiga forskningsverktyg. För att nå höga energier, samlar man laddade partiklar till knippen och accelererar dem med elektromagnetiska fält. Alla laddade partiklar kan accelereras, men vanligtvis används protoner för neutronproduktion genom kollision med ett strålmål.

Både linjära acceleratorer och cyklotroner kan accelerera oavbrutna tåg av strålpaket, men har olika egenskaper. I en cyklotron cirklar strålen runt banans mittpunkt många gånger, med en radie som varierar mellan några decimeter upp till flera meter, men då avståndet mellan en bana och nästföljande blir mycket liten när partiklarna närmar sig ljusets hastighet, får man problem med att ta ut strålen. Därmed blir cyklotroner mest effektiva för lägre energier, där partiklarnas energier är icke-relativistiska. Cyklotroner producerar idag en medelström på något mer än 1 mA, och kan accelerera protoner upp till 700 MeV.

Linjära acceleratorer är större än cyklotroner, ofta flera hundra meter långa (ca 1 m per MeV protonenergi), och är dyrare att konstruera. Dock är linjära acceleratorer kapabla att nå upp till en medelström på runt 100 mA, med en maximal partikelenergi begränsad endast av accelerators längd och är därför det bästa valet för tillämpningar som kräver kraftiga strålar med energier större än 1 GeV.

Fram tills nyligen användes kopparkaviteter för partikelacceleration i de flesta acceleratorer, samt järnmagneter med kopparspolar för att böja av eller fokusera strålarna. Högintensitetsystem kräver dock stora mängder elektricitet och i både kopparkaviteter och magnetspolar får man problem med resistiva förluster och värmeutveckling. Under det senaste decenniet har framgångsrika försök med supraledande kaviteter av niob och magnetspolar av niob-titan

legeringar gjorts, vilka tillåter mycket högre gradienter i accelerationen och sänker de resistiva förlusterna till ett minimum. Supraledande kaviteter används nu i flera acceleratorer.

Den högsta kapaciteten hos en linjär accelerator som planeras för konstruktion är den för APT-projektet (Accelerator driven Produktion av Tritium) i USA, som antas nå en ström på 100 mA vid 1.7 GeV. Projektet syftar primärt till att säkra försörjningen av tritium till kärnvapen. Utvecklingsarbete på linjära accelerators sker även inom det japanska OMEGA-projektet.

Arbete med utformning av högintensitetcyklotroner bedrivs bland annat vid CERN och PSI (Paul Scherrer Institute) i Schweiz. Protoncyklotronen vid PSI uppgraderades nyligen till en ström på 1.5 mA vid 650 MeV. En ytterligare kapacitetshöjning till ~5 mA är genomförbar och planeras att utföras inom de närmaste åren.

Alla föreslagna accelerator drivna system har vissa gemensamma huvudkomponenter. Bland dessa återfinns förutom en accelerator även ett spallationsstrålmål, som utsätts för ett bombardemang av högenergetiska laddade partiklar (vanligen protoner med energier från 0.5 - 2 GeV) och avger neutroner och andra partiklar, ett multiplikationsområde, där högenergetiska partiklar från strålmålet inducerar sekundärproduktion av neutroner och en mantel där neutronerna från strålmålet utnyttjas för olika ändamål, samt en region för att avskärma strålning mot yttervärlden.

Den inledande kollisionen mellan den inkommande partikeln och en kärna i strålmålet leder till en "intranukleär kaskad", där neutroner, protoner eller lättare kärnfragment rivs ut och lämnar kärnan i ett exciterat tillstånd. Därefter vidtar "avdunstning" av nukleoner från den exciterade kärnan när den återgår till sitt grundtillstånd. De flesta av dessa nukleoner är neutroner, av vilka merparten lämnar kärnan under avdunstningsfasen, som är isotropisk. I tunga material som bly och volfram kan även högenergifission äga rum. Använder man aktinider som uran och torium kan även lågenergineutroner inducera klyvning.

Det högsta antalet neutroner per inkommande proton får man för ett strålmål av aktinider, även om man räknar bort bidraget från sekundärfission. För protonstrålar av hög intensitet blir dock kylningen av strålmålet ett svårslöst problem både på grund av värmeutvecklingen från fissioner och den stora mängden av klyvningsprodukter. Därför är för närvarande aktinider ej aktuella som komponenter i strålmål. De vanligast föreslagna materialen är volfram, bly, och en flytande eutektisk bly-vismut blandning. Bly har ett betydligt lägre tvärsnitt för neutronabsorption (0.17 barn, jämfört med 18.2 för volfram, vid termiska energier). Bly antas dessutom vara i flytande form under körning av systemet, medan volfram är i fast form.

Aktinider förekommer i multiplikator- och mantelområden. Dessa områden kan innehålla tillräckliga mängder fissilt material för att uppnå signifikanta underkritiska multiplikationsfaktorer. Med en tillräckligt stark neutronkälla (strålmål av bly och 1 GeV protoner med 10-100 mA strömstyrka) kan man i princip köra en underkritisk hård ($k \sim 0.95$, neutronmultiplikation ~ 20) med utveckling av fissionsvärme fullt jämförbar med den i stora kärnkraftverk.

Underkritiska bränslecykler

En viktig fråga är vilken fördel som ett accelerator drivet system (ADS) har framför en kritisk

reaktor när det gäller att klyva aktinider. Det finns ett par tekniska motiv.

- För vissa bränsletyper med hög värmekonduktivitet och låg andel fördröjda neutroner (t ex nitider av Am och Cm) får man ökade säkerhetsmarginaler vid (oavsiktliga) reaktivitetstillskott.
- I ett accelerator drivet system med ett högenergetiskt neutronspektrum kan även enstaka klyvningsprodukter transmutteras och i större mängd än med kritiska snabbreaktorer.
- Möjligheten till en hög utbränningsgrad (10-20% av ingående material) leder till mindre förluster i separationsprocessen vid ADS. Detta även vid självgående snabba reaktorer.

APPENDIX 2

Matematiska samband för systemverkningsgraden

För den matematiskt och processtekniskt intresserade ger vi här en kortfattad beskrivning av hur transmutionsanordningens prestanda, separationsprocessens verkningsgrad och systemets driftsätt samverkar till en total verkningsgrad för avlägsnande av långlivade produkter ur det avfall som behöver slutlagras. Då det är mest intressant för en bedömning av ett systems ändamålsenlighet beräknar vi den bråkdel av ursprungligen närvarande långlivat ämne som slutligen återfinns i det avfall som måste slutlagras. Målet för en kombinerad transmutions- och separationsprocess är att nå värden på denna bråkdel, F , som till exempel understiger en hundradel, det vill säga till exempel $< 1\%$ av ursprunglig mängd får återfinnas i någon form av avfall.

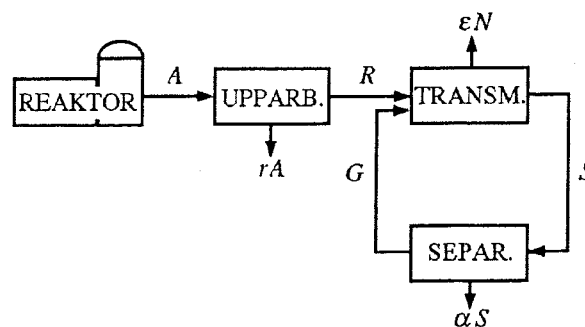
Vi kan från början särskilja två huvudfall. I det första fallet sker separationen kontinuerligt on-line till transmutionsanordningen, vilket kräver gasformiga, flytande, pulverformiga eller kulformade strålmål. Transmutions- och separationsanläggningarna måste i detta fall vara samlokaliserade. I det andra fallet sker separationen diskontinuerligt off-line på likartat sätt som vid reaktordrift med upparbetning av använt kärnbränsle. I detta fall är den fysiska formen hos strålmålet mycket mindre betydelsefull. Material transporteras vid behov mellan anläggningarna, som därigenom kan lokaliseras oberoende av varandra. I båda fallen antages att transmutionshastigheten är oberoende av bestrålningstiden, vilket är en grov approximation. Eftersom beräkningarna sker på olika sätt kommer vi att behandla fallen i tur och ordning.

A.3.1 Kontinuerlig transmution och separation

Vid kontinuerlig operation av en transmutionsprocess med direktansluten kontinuerlig separation strävar man troligen efter att hålla halten målatomer konstant i bestrålningsanordningen. Detta leder till ett flödesschema enligt figur A.3.1. Enligt detta schema tillförs då lika många nya målatomer per tidsenhet till systemet som de som försvinner per tidsenhet genom transmution och som förlust i separationsprocessen. Följande materialbalans kan då uppställas för hela processen:

$$(1-r) A = R = \epsilon N + \alpha S \quad (3.1)$$

där N är totala antalet målatomer som är under bestrålning, ϵ är transmutionshastighetskonstanten, R är antalet målatomer som tillförs per tidsenhet, S är antal målatomer per tidsenhet



Figur A.3.1. Flödesschema för kontinuerlig transmution och separation men diskontinuerlig upparbetning.

som passerar över till separationsprocessen och α är den bråkdel av S som förloras till avfallet från separationsprocessen. Vi antar nu att bestrålningsanordningen har en given volym V och att volymsflödes hastigheten v till separationsanläggningen är en fix bråkdel k av bestrålningsvolymen V . Detta leder oss till följande serie av samband:

$$\begin{aligned} C &= N / V \\ v &= k V \\ S &= v C \end{aligned}$$

Om vi betecknar totala förlusten till avfallet från hela processen med L så erhålls:

$$L = r A + \alpha S$$

där A anger mängden material (antalet atomer) som per tidsenhet passerat in till upparbetningen. Eftersom vi är intresserade av hur stor bråkdel, F , av A som slutligen hamnar i avfallet kan vi skriva detta som:

$$F = L / A$$

Om vi nu sätter in våra olika samband i ekvation (3.1) och förenklar resultatet så erhålles:

$$F = r + (1-r)/[1 + \{\epsilon/(k \alpha)\}] \quad (3.2)$$

Som framgår av denna ekvation skall vi sträva efter största möjliga värde på $\epsilon/k\alpha$ för att erhålla minsta möjliga förlust vid en given förlust i upparbetningen. Enligt ekvation (1) kan vi för relativt korta bestrålningsstider, t , uttrycka transmutionshastigheten $\epsilon N (= -dN/dt)$ som produkten $\phi_{\text{medel}} \sigma_{\text{medel}} N$. Inför vi slutligen detta samband i ekvation (3.2) så erhålles:

$$F = r + (1-r)/[1 + \{\phi_{\text{medel}} \sigma_{\text{medel}} / (k \alpha)\}] \quad (3.3)$$

Vid rimliga tvärsnitt och neutronflöden kommer alltid produkten $\phi_{\text{medel}} \sigma_{\text{medel}}$ att ha ett mycket litet värde, $< 10^{-8}$. Detta ställer då kravet att produkten $k \alpha$ skall vara $\ll 10^{-8}$ för att förlusterna till avfallet skall vara rimliga. Å andra sidan, om vi väljer att processen skall arbeta vid mycket små k -värden kommer en av fördelarna med en kontinuerlig separation att försvinna; möjligheten att minimera mängden transmutionprodukter i bestrålningsanordningen.

Som illustration kan vi välja transmution av plutonium i ett metallkyllt accelerator drivet system. Klyvningstvårsnittet antages vara ca $2 \times 10^{-28} \text{ m}^2$ och neutronflödet $10^{19} \text{ n m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Vid upparbetningen är förlusten till avfallet 0.2% ($r = 0.002$), och vid den kontinuerliga "on-line" separationen antages att förlusten är lika stor, det vill säga 0.2% ($\alpha = 0.001$). Flödet genom separationsprocessen väljs så att hela den bestrålade volymen i medeltal passerar genom separationsanläggningen en gång per dygn ($k = 1.16 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$). Om dessa talvärden insättes i ekvation (3.3) erhåller vi en beräknad total förlust, F , av plutonium till olika typer av avfall som är ca 92%, vilket betyder att separations och transmutionsprocessen är mycket ineffektiv under dessa förutsättningar.

A.3.2 Diskontinuerlig transmutation och separation

Vid diskontinuerlig operation av en transmutationsprocess och motsvarande separationsprocess med flödesschema enligt figur A.3.2 kan vi i tanken följa en given inkommande materialmängd A när den cirkulerar runt i systemet varv efter varv tills den förintats, det vill säga inget mer finns som kan cirkulera. En sådan betraktelse leder efter några enklare matematiska operationer till ett samband för totalt förlorad bråkdelen av ursprunglig mängd av ett atomslag som man försöker transmutera, F .

Processen startar efter uttag av en viss mängd använt kärnbränsle, som innehåller mängden A av det ämne som skall förstöras genom transmutation. I figuren anges värden för första varvet genom processen. Använt bränsle upparbetas på sedvanligt sätt, varvid bråkdelen r av ursprunglig mängd i bränslet förloras som avfall. Återvunnet material, $(1-r)A$, går sedan vidare till en anläggning för tillverkning av mål för transmutationsprocessen. I denna tillverkning förloras bråkdelen δ som avfall. I bestrålningsanläggningen transmuteras därefter bråkdelen ϵ av återstående mängd av ämnet. Vi antar att denna bråkdelen avlägsnas fullständigt ur processen vid passage genom separationsprocessen. Efter bestrålningen går målet vidare till separationsprocessen där otransmuterat material återvinns. Därvid förloras bråkdelen α till olika avfallsströmmar medan slutligen framställning av nytt material i lämplig form för transmutation på nytt leder till att bråkdelen δ blir avfall. Sedan upprepar sig förloppet. Detta kan beskrivas matematiskt med följande ekvation för totala förlusten, F , som bråkdelen av A .

$$F = r + (1-r)\{\delta \sum [(1-\delta)^n (1-\epsilon)^n (1-\alpha)^n] + \alpha \sum [(1-\delta)^{n+1} (1-\epsilon)^{n+1} (1-\alpha)^n]\} \quad (3.4)$$

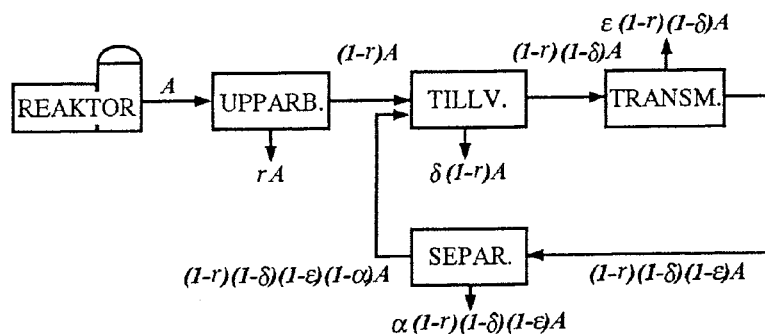
Summatecknen anger att hela uttrycket efter respektive summatecken skall beräknas och summeras för samtliga heltalsvärden på n från noll till oändligheten. Med användning av teorin för oändliga geometriska serier kan ekvation (3.4) omvandlas till följande uttryck:

$$F = r + (1-r)\{\delta + \alpha(1-\delta)(1-\epsilon)\} / \{1 - (1-\alpha)(1-\delta)(1-\epsilon)\} \quad (3.5)$$

En effektiv transmutationshantering kräver att såväl r som α och δ är små ($\ll 1$). Detta leder till att vi kan förenkla ekvation (3.5) med hjälp av räkneregler för blandningar av små och stora tal. Följande approximativa samband erhålles då om även ϵ är relativt liten:

$$(\alpha + \delta) \approx \epsilon(F-r)/(1-F) \quad (3.6)$$

Detta samband medger en uppskattning av nödvändig sammanlagd verkningsgrad hos separations-



Figur A.3.2. Flödesschema för transmutation av material från diskontinuerlig upparbetning och transmutation.

och fabriktionsprocesserna, det vill säga värdet på $\{1-(\alpha + \delta)\}$, för kända värden på förlusten vid upparbetning (r), transmuterad bråkdelen under en bestrålningscykel (ϵ), och tillåten total förlust (F) av ingående material till samtliga avfallsströmmar. Observera att F alltid är större än r men mindre än 1.

Låt oss på nytt betrakta plutonium under antagandet att vi kan betråla med ett medelflöde som är samma som i förra exemplet, 10^{-19} n/m² s, under en tid av 3 år och med ett medeltvärsnitt för klyvning på 2×10^{-28} m². Med dessa värden kan ϵ beräknas till 0.1725. Vi antar vidare samma kemiska verkningsgrad för både upparbetningsprocessen och separationsprocessen, $r = \alpha = 0.2\%$. Erfarenheter från tillverkning av MOX-bränsle visar att tillverkningen av strålmål troligen kan uppnå en verkningsgrad på 99.99%, vilket motsvarar $\delta = 0.0001$. Ur dessa värden kan vi nu beräkna den totala förlusten av plutonium till olika avfallsströmmar, F , med hjälp av ekvation (3.5). Vi finner då att ca 1.2% av det plutonium som ursprungligen fanns i det använda kärnbränslet hamnar i det radioaktiva avfallet medan resten transmuteras till klyvningsprodukter eller till högre aktinider.

De två exemplen på förlusterna vid kontinuerlig separation- och transmutation respektive diskontinuerlig separation- och transmutation visar tydligt på fördelarna med en diskontinuerlig kemisk separation framför en direktansluten kontinuerlig kemisk separation.

APPENDIX 3

Ordlista med synonymer och förklaringar

Engelska synonymerna ges med kursiv stil inom parentes.

ACTINEAU	Franskt forskningsprogram för att förbättra nuvarande teknik för upparbetning.
ACTINEX	(<i>ACTINide EXtraction</i>) Franskt forskningsprojekt för att utveckla ny förbättrad teknik för upparbetning av kärnbränsle med utvinning av inte bara uran och plutonium utan även neptunium, americium och curium. Drivs av CEA i samarbete med COGEMA.
AEA	(<i>Atomic Energy Authority</i>) Statlig engelsk organisation för kärnkraft.
AEC	(<i>United States Atomic Energy Committee</i>) Tidigare federalt organ för såväl forskning som utveckling och användning av kärnenergi i civil och militär verksamhet.
Aktinid	(<i>actinide</i>) Grundämne som tillhör aktinidserien, dvs ämnen med ordningstal (=kärnladdning) från 89 till och med 103.
ALI	(<i>Annual Limit of Intake</i>) Yrkeshygieniskt gränsvärde för årligt intag av en radioaktiv atomtyp för personal i arbete där radioaktiva ämnen förekommer, Bq. I denna rapport antages intaget ske via munnen.
Aliquat-336	Kvarternärt organiskt ammoniumsalt, extraktionsreagens tillverkat av Henkel Corporation.
ALMR	(<i>Advanced Liquid Metal Reactor</i>) Amerikansk reaktortyp som utvecklats för att kunna arbeta tillsammans med en föreklad pyrokemisk upparbetningsprocess. Finns bara på ritbordet.
Anrikat	(<i>enriched</i>) Ett grundämne vars halt av en viss isotop höjts med hjälp av isotopseparation. Exempel: anrikat uran; halten av uranisotopen ^{235}U (och ^{234}U) är höjd i förhållande till naturligt uran.
Anrikning	(<i>enrichment</i>) Ökning av halten av en isotop av ett grundämne (se även isotopseparation). Termen används i inskränkt betydelse även för halten ^{235}U i anrikat uran avsett som reaktorbränsle.
APT	(<i>Accelerator-driven Production of Tritium</i>) Accelerator driven produktion av tritium, F&U-projekt vid LANL.
ATW	(<i>Accelerator-driven Transmutation of Waste</i>) Accelerator driven transmutering av avfall, F&U-projekt vid LANL.

Avrikt	(<i>depleted</i>) Ett grundämne vars halt av en viss isotop sänkts med hjälp av isotopseparation. Exempel: avriktat uran; halten av uranisotopen ^{235}U (och ^{234}U) är sänkt i förhållande till naturligt uran.
BWR	(<i>Boiling Water Reactor</i>) Kokvattenreaktor.
CEA	(Franska: <i>Commissariat à l'Énergie Atomique</i>) Statligt franskt organ med ansvar för forskning och utveckling inom civil och militär kärnteknik.
CEFR	(<i>China Experimental Fast Reactor</i>) Kinesisk experimentell snabbreaktor.
CENDL-2	(<i>Chinese Evaluated Nuclear Data Library</i>) Kinesiskt neutronbibliotek.
CERN	(Franska: <i>Conseil Européen pour la Recherche Nucleaire</i>) Europeisk forskningsorganisation vars verksamhet i huvudsak är inriktad mot elementarpartikelfysik.
CHON-principen	Molekyler som innehåller endast kol (C), väte (H), syre (O) och kväve (N) sägs uppfylla CHON-principen. Sådana substanser är fullständigt brännbara till gasformiga produkter.
CLIB-2	(<i>Chinese LIBrary</i>) Kinesiskt neutronbibliotek.
CMPO	(<i>Carbamoyl Methylene Phosphine Oxide</i>) Extraktionsreagenset oktylfenyl-N,N-diisobutylcarbamoylmetylfosfinoxid.
CNDC	(<i>Chinese Nuclear Data Center</i>) Kinas kärndatacentrum.
CNRS	(Franska: <i>Centre National de la Recherche Scientifique</i>) Franskt statligt organ för naturvetenskaplig grundforskning.
CRIEPI	(<i>Central Research Institute of the Electric Power Industry</i>) Japanskt forskningsinstitut.
CURE	(<i>Clean Use of Reactor Energy</i>) Amerikanskt projekt på reaktorområdet.
Cyanex-301	Extraktionsreagenset bis(2,4,4-trimetylpentyl)ditiofosfinsyra
DHDECMP	Extraktionsreagenset dihexyl-N,N-dietylkarbamoylmetylfosfonat.
DIAMEX	(<i>DIAMide EXtraction</i>) Fransk vätskeextraktionsprocess baserad på diamid.

DIDPA	(<i>Di-IsoDecyl Phosphoric Acid</i>) Extraktionsreagenset diisodecylfosforsyra.
ECN	(Holländska: <i>Energieonderzoek Centrum Nederland</i>) Nederländskt energiforskningscenter.
EDF	(Franska: <i>Electricité de France</i>) Statligt franskt elkraftföretag.
EET	(Emerging Energy Technology) Forskningsgrupp vid CERN som arbetar med toriumbaserad bränslecykel i acceleratordrivna system. Leds av Carlo Rubbia.
ENEA	(Italienska: <i>Ente per le Nuove tecnologie, l'Energia e l'Ambiente</i>) Italiensk energiforskningsorganisation.
FBR	(<i>Fast Breeder Reactor</i>) Snabb bredreaktor.
FEAT	(<i>First Energy Amplifier Test</i>) Underkritiskt experiment vid CERN med ^{238}U som strålmål.
Fission	(<i>fission</i>) Klyvning. Här avses normalt klyvning av en atomkärna till två lättare dito (klyvningsprodukter). Antalet atomer fördubblas vid klyvning av atomkärnor.
FLUKA	(<i>FLUctuating KAScade</i>) Datorprogram för partikeltransportberäkningar vid höga energier.
Halveringstid	(<i>half-life</i>) Den tid som det tar för det ursprungliga antalet av en radioaktiv atomtyp att minska till halva antalet. Eftersom radioaktivt sönderfall är en process som (med något enstaka undantag) inte kan påverkas utifrån är halveringstiden en unik storhet för var typ av radioaktivt atomslag.
HDEHP	(<i>Di EthylHexyl Phosphoric Acid</i>) Extraktionsreagenset di-2-etylhexylfosforsyra.
IABAT	(<i>Impact of the Accelerator-Based Technologies on Nuclear Fission Safety</i>) EU-projekt avsett att utvärdera acceleratordrivna system.
IAEA	(<i>International Atomic Energy Agency</i>) Fristående del av FN-organisationen med syfte att främja kärnenergens fredliga användning.
IBA	(<i>Ion Beam Applications</i>) Belgiskt företag som konstruerar acceleratorer på kommersiell basis.
IPPE	(<i>Institute of Physics and Power Engineering</i>) Ryskt federalt forskningscentrum för kärnkraftsteknik, placerat i Obninsk.

ISAAC	<i>(Investigations on Subcritical Systems Driven by Accelerators)</i> CEA/Cadarache:s forskningsprogram om acceleratordrivna system.
Isotop	<i>(isotope)</i> En atomtyp av ett grundämne som har en unik atommassa. Dessa beror på att antalet neutroner i atomkärnan kan vara olika för atomer med samma kärnladdning, dvs för atomer av ett och samma grundämne. Eftersom atomens massa i huvudsak utgörs av massan hos protoner och neutroner i atomens kärna, så bestämmer kärnans sammansättning i praktiken atomens vikt.
Isotopseparation	<i>(isotope separation)</i> Ändring av den naturliga isotopsammansättningen hos ett grundämne så att en (eller flera) av grundämnets isotoper koncentreras i en produkt (anrikad) medan restprodukten (avrikad) har en minskad halt av motsvarande isotop (eller isotoper).
ISTC	<i>(International Centre of Science and Technology)</i> Organisation med säte i Moskva som bildats för att förmedla forskningsanslag från I-länder till före detta vapenforskare i gamla Sovjetunionen.
JAERI	<i>(Japan Atomic Energy Research Institute)</i> Staligt japanskt kärnforskningsinstitut.
KAERI	<i>(Korean Atomic Energy Research Institute)</i> Sydkoreanskt kärnforskningsinstitut.
Klyvning	Se fission.
Kärnladdning	<i>(nuclear charge)</i> Här avses atomkärnans positiva laddning, dvs antalet protoner i kärnan (=ordningstalet).
LAESA	<i>(Laboratorio del Amplificador de Energia)</i> Spanskt-italienskt konsortium initierat av EET för att finna medel till konstruktion av en acceleratordriven prototypanläggning i Spanien.
LANL	<i>(Los Alamos National Laboratory)</i> Federal forskningsanläggning i USA.
Lantanid	<i>(lanthanide)</i> Grundämne som tillhör lantanidserien, dvs grundämnen med ordningstal (=kärnladdning) 57 - 71. Kallas även för "sällsynta jordarter" i äldre litteratur.
LWR	<i>(Light Water Reactor)</i> Lättvattenmodererad termisk reaktor.
MASURCA	Forskningsreaktor i Cadarache, Frankrike, där ett flertal underkritiska experiment utförts.

MOX	(<i>Mixed OXide</i>) Kärnbränsle som innehåller en blandning av urandioxid och plutoniumdioxid.
Myrrha	() F&U-projekt vid SCK-CEN om acceleratordrivna system.
NEA	(<i>Nuclear Energy Agency</i>) OECD:s kärnenergibyrå.
NEWPART	(<i>NEW PARTitioning Techniques</i>) EU-finansierat forskningsprojekt inom EU-programmet "Nuclear Fission Safety". NEWPART-projektet utvecklar nya reagens och separationsmetoder för aktinider.
Nuklid	(<i>nuclide</i>) Refererar allmänt till atomer av en given typ, dvs en isotop av ett grundämne.
OMEGA	(<i>Options for Making Extra Gain of Actinides and fission products generated in the nuclear fuel cycle</i>) Japanskt forskningsprogram om separation och transmutation.
Ordningstal	(<i>atomic number</i>) Ordningstalet för ett grundämne anger dess plats i grundämnenas periodiska system. Ordningstalet är siffermässigt samma som grundämnets kärnladdning (antalet protoner i atomkärnan).
OSIRIS	(<i>On-line System for Isotopeseperation at the Reactor In Studsvik</i>) Svensk forskningsutrustning vid R0-reaktorn i Studsvik som används för att separera och studera kortlivade klyvningsprodukter.
PBR	(<i>Pebble Bed Reactor</i>) Ursprungligen tysk gaskyld reaktorkonstruktion avsedd för grafitkapslat bränsle i kulform.
PHENIX	Namn på en mindre fransk snabb brydreaktor belägen vid Marcoule i Frankrike (250 MWe). Reaktorn startade 1972 och drivs i samarbete mellan EDF och CEA.
PHOENIX	Namn på en underkritisk acceleratordriven snabbreaktorkonstruktion föreslagen av BNL, USA.
PHWR	(<i>Pressurised Heavy Water Reactor</i>) Tungvattenmodererad tryckvattenreaktor.
PNC	(<i>Power reactor and Nuclear fuel development Corporation</i>) Japanskt företag.
PRAV	Programrådet för Radioaktivt Avfall. Svenskt statligt forskningsorgan för forskning och utveckling på behandling och hantering av radioaktivt avfall.

PUREX	<i>(Plutonium Uranium Redox EXtraction)</i> Namn på den vanligaste kemiska processen för upparbetning av använt kärnbränsle.
PURETEX	Franskt forskningsprojekt som syftar till att förbättra den befintliga PUREX-processen.
PWR	<i>(Pressurised Water Reactor)</i> Tryckvattenreaktor.
Pyrometallurgi	<i>(pyrometallurgy, pyroprocessing)</i> Sammanfattande namn på oorganiska kemiska processer som utförs vid höga temperaturer. Dessa är mest vanliga inom metallurgisk industri (framställning och raffinering av järn, stål, legeringsämnen, koppar, bly, zink, etc.) och för produktion av vissa metaller genom elektrolys i saltsmältor (t ex aluminium och magnesium).
RAS	Transmutationsforskningsprogram hos ECN.
Radioaktivitet	<i>(radioactivity)</i> Radioaktiv sönderfallshastighet. Anges i Becquerel (förkortas Bq), dvs antal sönderfallande atomer per sekund.
Radionuklid	<i>(radionuclide)</i> Refererar helt allmänt till atomer som sönderfaller radioaktivt. Någon typ av strålning avges i sönderfallsögonblicket.
SANEX	<i>(Selective Actinide Extraction)</i> Process för selektiv utvinning av aktinider.
SCK-CEN	<i>(Studie Centrum voor Kernenergie - Centre d'Étude de l'Énergie Nucléaire)</i> Belgiskt kärnforskningscentrum.
Separation	<i>(separation eller partitioning)</i> Utvinning av ett (eller ibland flera) grundämnen i ren form ur en blandning av grundämnen (se även isotopseparation).
SKODA	Tjeckiskt företag som deltagit i konstruktion av ryska tryckvattenreaktorer.
SPIN	<i>(Separation and Incineration in Reactors)</i> Franskt forskningsprogram för utveckling av ny separations- och transmutationsteknik.
STC	(Science and Technology Committee) Kommitté inom EU för utvärderingar och råd på teknikområdet.
TALSPEAK	<i>(Trivalent Actinide Lanthanide Separation by Phosphorous-reagent Extraction of Aqueous Complexes)</i> Namn på kemisk process för separation av aktinider och lantanider genom västeextraktion med HDEHP i närvaro av DTPA:s natriumsalt.

TARC	<i>(Transmutation through Adiabatic Resonance Crossing)</i> CERN-experiment finansierat av EU där mätningar av tvärsnitt för partikelspridning i bly utförts.
TBP	<i>(Tri Butyl Phosphate)</i> Tributylfosfat, extraktionsreagens som bl a används i PUREX-processen
Transmutation	<i>(transmutation)</i> Omvandling av ett grundämne till ett eller flera andra. Detta sker vanligen genom infångning av en neutron följt av radioaktivt β -sönderfall till nästa högre grundämne i ordningen. För tunga grundämnena (høgt ordningstal) kan en isotop av grundämnet i stället klyvas efter neutroninfångningen, varvid två lättare grundämnena bildas (fissionsprodukter). Neutroninfångning och klyvning är i det senare fallet två konkurrerande processer.
TRPO-processen	<i>(TRialkyl Phosphine Oxide)</i> Process avsedd att separera aktinider.
TRUEX	<i>(TRansUraniumEXtraktion)</i> Namn på äldre vätskeextraktionsprocess för separation av trevärda aktinider och lantanider som bygger på aminextraktion från koncentrerade kloridlösningar.
TUI	<i>(Trans Uranium Institute)</i> Europeiska transuraninstitutet, EU-forskningscenter i Karlsruhe, Tyskland.
Upparbetning	<i>(reprocessing)</i> Behandling av utbränt kärnbränsle för att återvinna oförbrukat uran och plutonium. Vanligen sker detta genom PUREX-processen. Andra processer har utvecklats och provats, men dessa har numera inte någon storskalig industriell användning.