



Strål
säkerhets
myndigheten

Swedish Radiation Safety Authority

Författare: Per Andersson
Fredrik Nielsen
Daniel Sunhede
Totalförsvarets forskningsinstitut, Stockholm

Forskning

2018:12

Upparbetning av använt kärnbränsle
med icke-vätskebaserade metoder

SSM perspektiv

Bakgrund

Sverige har en exportlagstiftning för kontroll av utförelse av speciellt känslig utrustning som kan användas för bl.a. tillverkning av kärnvapen. Syftet är att förhindra att någon stat eller organisation införskaffar sådana vapen. Utrustningen det är frågan om har ofta en legitim användning i civil industri men kan ha vissa speciella egenskaper som även gör den användbar för kärnvapenframställning. Det är Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM, som beslutar om tillstånd för utförelse av kärnämne och kärnteknisk utrustning samt teknik och programvara. Det är viktigt att myndigheten har tillräcklig och aktuell kunskap i ämnet för att korrekt kunna bedöma inkomna exportansökningar. Totalförsvarets forskningsinstitut, FOI, fungerar som teknisk rådgivare till SSM i exportkontrollärenden. FOI har tidigare studerat andra områden inom kärnbränslecykeln med fokus på icke-spridning och exportkontroll på uppdrag av SSM, varav de senaste berör möjligheten att använda låganrikat uran i forskningsreaktorer (SSM2015:15), en historisk dokumentation av det svenska civila anrikningsprogrammet (SSM 2015:42) och laseranrikning av uran (SSM rapport 2016:3).

I dagsläget är PUREX den dominerande tekniken för upparbetning av använt kärnbränsle från kommersiella reaktorer. Framtidens reaktorer, framför allt inom det så kallade Generation IV, kommer sannolikt att ställa andra krav på upparbetningsmetoderna, både av tekniska och kommersiella anledningar. Det arbete som redovisas i denna rapport rör upparbetningsmetoder som inte är vätskebaserade. De studerade metoderna kan delas in i grupperna elektrokemiska metoder och destillationsbaserade metoder. Elektrokemiska upparbetningsmetoder har i ett antal olika forskningsprojekt runt om i världen visat sig vara användbara för upparbetning av använt kärnbränsle. För att en metod inte ska öka spridningsrisken är det viktigt att det inte någonstans i processen förekommer plutonium i ren form. För exportkontrollen är det en utmaning då metoderna med liknande utrustning används inom många olika grenar av metallurgin.

Rapporten beställdes för att öka kunskapen kring icke-vätskebaserade upparbetningsmetoder och hur effektiva dessa metoder är i jämförelse med andra mer beprövade metoder, samt hur dessa framstår ur ett spridningsrisksperspektiv inklusive behovet av exportkontroll.

Resultat

I denna studie har ett antal detaljerade beräkningar och parameterstudier genomförts för att ta fram slutsatser hur effektiva metoderna är för att separera olika nuklider för att göra en bedömning av spridningsrisker. Studien bekräftar vad ett antal olika forskningsprojekt runt om i världen tidigare visat, nämligen att elektrokemiska upparbetningsmetoder kan vara användbara för upparbetning av använt kärnbränsle och kapabla att renframställa plutonium. Vi har valt att låta rapporten endast översiktligt redogöra för metoderna och konsekvenserna för exportkontrollområdet för att inte sprida information som kan vara känslig. Därmed kan flera intressenter såsom andra myndigheter, berörd industri och intresseorganisationer få tillgång till resultatet. Förutom rapporten har projektet resulterat i att personal på FOI och SSM fått ökad insikt kring upparbetningsmetoder genom litteraturstudier och föredrag.

Projekt information

Kontaktperson SSM: Jenny Peterson

Referens: SSM2016-3882 / 7030124-00



Strål
säkerhets
myndigheten

Swedish Radiation Safety Authority

Författare: Per Andersson
Fredrik Nielsen
Daniel Sunhede
Totalförsvarets forskningsinstitut, Stockholm

2018:12

Upparbetning av använt kärnbränsle
med icke-vätskebaserade metoder

Datum: Maj 2018
Rapportnummer: 2018:12 ISSN: 2000-0456
Tillgänglig på www.stralsakerhetsmyndigheten.se

Denna rapport har tagits fram på uppdrag av Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM. De slutsatser och synpunkter som presenteras i rapporten är författarens/författarnas och överensstämmer inte nödvändigtvis med SSM:s.

Upparbetning av använt kärnbränsle med icke-vätskebaserade metoder

Sammanfattning	2
Summary	3
1. Inledning.....	4
2. Varför upparbetning – och hur?	6
3. Elektrokemiska metoder	8
3.1. Elektrokemisk beräkningsmodell.....	11
3.2. Resultat.....	19
4. Destillationsbaserade metoder	28
4.1. Destillation – teori	29
4.2. Resultat.....	33
5. Icke-spridning och exportkontroll	38

Sammanfattning

I denna rapport presenteras en analys av metoder för upparbetning av använt kärnbränsle som inte är baserade på vattenbaserad kemisk separation. Två metodfamiljer har studerats i närmare detalj, både genom genomgång av aktuell litteratur och genom omfattande numeriska modelleringar; elektrokemisk upparbetning och upparbetning genom destillation. Båda typerna av processer sker vid förhöjda temperaturer och kallas därför också pyro-baserade metoder, *pyro processing*, även om den termen delvis har blivit synonym med elektrokemisk upparbetning.

Inom ramen för denna studie har en detaljerad numerisk transportmodell utvecklats för studien av elektrokemisk upparbetning, där koncentrationen av olika ämnen kan beräknas, hur de oxideras och reduceras vid olika elektroder och hur fördelningen av ämnen ser ut i olika produktströmmar som funktion av tid och ett antal makroskopiska och mikroskopiska parametrar så som temperatur och initial ämnesfördelning. I modellen har realistiska data för de ingående ämnenas termodynamiska och elektrokemiska egenskaper använts.

Det har även utvecklats en numerisk modell för destillation i flerstegkolonner med partiell återkokning och återflöde av produktströmmen. Modellen kan hantera ångbildning lik väl som daggbildning och använder en detaljerad modell för partialtrycken av de olika komponenterna.

Även om de beräkningar som genomförts inom studien inte har varit av den omfattning som krävs för att kunna optimera den elektrokemiska processen och de ingående parametrarna, så tyder de resultat som erhållits på att metoden har förutsättningar för att kunna framställa en relativt ren plutoniumprodukt, vilket stämmer väl med de resultat från både beräkningar och experiment som återfinns i litteraturen. Frågan om produkten kan göras tillräckligt ren förblir obesvarad då det förutsätter kunskap om de exakta krav som ställs och som inte finns tillgängliga i den öppna litteraturen.

Destillation är enligt de beräkningar som genomförts en metod för upparbetning som är betydligt svårare att använda för renframställning av plutonium. Separationen av plutonium från de andra ämnena som finns i det använda bränslet är så liten i varje kolonn att det troligen skulle krävas ett stort antal seriekopplade kolonner för att nå en högre renhetsgrad, på ett likande sätt som centrifuger sammankopplas i kaskader vid anrikning av uran. Då detta skulle öka komplexiteten och kostnaden bortom de metoder som finns tillgängliga idag så saknas motivationen för att utveckla en sådan process, och det finns idag inte heller några kända projekt som verkar i den riktningen.

Författarna vill tacka professor Leif Nyholm, institutionen för kemi, Uppsala universitet, för de mycket givande och intressanta diskussionerna om elektrokemi i allmänhet och katodfysik i synnerhet.

Summary

In this report an analysis of methods for the reprocessing of used nuclear fuel not based on aqueous chemical separation is presented. Two families of methods have been studied in detail, both through a review of the current literature and through extensive detailed numerical modelling; electrochemical reprocessing and reprocessing using distillation. Both types of processes are done at elevated temperatures and are therefore called pyro processing, even if that term partly has become synonymous with the former method.

In this study a detailed numerical transport model of electrochemical reprocessing has been developed, where the concentration of selected species can be calculated, how they are oxidized and reduced at the different electrodes, and how the distribution of the different species behave as a function of time and different macroscopic and microscopic parameters like temperature and initial species distribution. Realistic data for the species electrochemical and thermodynamical properties have been used in the model.

A detailed numerical model for distillation has also been developed, describing a multi-stage distillation column with a partial reboiler and partial reflux. The model includes dew and steam formation and uses a detailed submodel for the partial pressures of the species.

Even though the calculations of the electrochemical process that have been performed in this study are not of that extent needed for an optimization of the process or the parameters, the results indicate that the process could be suitable for the production of a pure plutonium stream, which is in line with the experimental and theoretical findings published in the literature. The question whether the plutonium stream can be made pure enough must be left open as it depends on knowledge of the end use that is not available in the open literature.

Distillation is according to the calculations that have been performed less suitable for reprocessing of used fuel if a pure plutonium product is needed. The separation of plutonium from the other species in each column is too low, so that a number of columns connected in series would be needed to reach a high level of purity, much in the same way as centrifuges are connected into a cascade in a uranium enrichment plant. That would increase the complexity and cost beyond that of the processes used today, making the idea of reprocessing using distillation moot, and there are no known projects today have or are planning to implement distillation for reprocessing used nuclear fuel.

The authors would like to thank professor Leif Nyholm, Department of Chemistry, Uppsala university, for interesting and educational discussions about electrochemistry in general and cathode physics in particular.

1. Inledning

I en kärnreaktor används något fissilt material, oftast någon av uranisotoperna med mass-talen 233 eller 235 (^{233}U respektive ^{235}U) eller plutonium, ibland i kombination av fertila material som torium (^{232}Th) eller uranisotopen ^{238}U , för att genom kärnklyvning åstadkomma en önskad effekt. Ändamålet kan vara exempelvis produktionen av värme och/eller elektricitet, produktionen av medicinska nuklider, produktion av neutroner för forskning eller produktionen av plutonium av en sådan kvalitet att det går att använda i kärnvapen. I alla idag förekommande reaktortyper är den så kallade utbränningen¹ relativt låg jämfört med det energiinnehåll som finns latent i bränslet². Ett sätt att komma åt det kvarvarande energiinnehållet i bränslet är att ta ut det ur härden, upparbeta det och sedan tillverka nytt bränsle. Om man ur bränslet vill utvinna någon enskild komponent, till exempel en viss nuklid för medicinskt bruk eller plutonium för kärnvapentillverkning, måste även då bränslet upparbetas.

Det finns ingen internationellt vedertagen definition av vad kärnteknisk upparbetning är, men till exempel IAEA beskriver³ upparbetning, *reprocessing*, som ”A process or operation, the purpose of which is to extract radioactive isotopes from spent fuel for further use”, medan den amerikanska myndigheten Nuclear Regulatory Commission, NRC, som ansvarar för översynen av all civil kärnteknisk verksamhet i USA, beskriver upparbetning som⁴ ”the processes used to separate spent nuclear reactor fuel into nuclear materials”. Av olika skäl, i vissa fall politiska, menar en del aktörer att med upparbetning avses endast processer där plutonium förekommer i ren form i någon procesström och att det i övriga fall enbart handlar om ”bearbetning av använt bränsle”. I denna rapport och i de frågor som den försöker besvara är den semantiska skillnaden oviktig och här används termen upparbetning i betydelsen ”alla processer där olika nuklider i använt kärnbränsle separeras”.

De första upparbetningsprocesserna utvecklades inom det amerikanska Manhattanprojektet under andra världskriget och den idag helt dominerande processen, Plutonium Uranium Redox EXtraction, PUREX, är en relativt nära arvtagare till den ursprungliga processen. Även om de ingående kemikalierna skiljer sig åt, är båda så kallade vätskebasebaserade metoder där bränslet först löses i koncentrerad syra. Då syrafasen därefter sätts i kontakt med organiska lösningsmedel utnyttjas att de nuklider man önskar separera reagerar med den organiska fasen och att reaktionsprodukterna har högre löslighet i denna. Därmed ansamlas dessa nuklider i den organiska fasen. Det är frågan om rent kemiska processer och dessa sker vid rumstemperatur.

Det har under de senaste 70 åren forskats om och utvecklats metoder som inte är vätskebaserade. De nya metoderna kan grovt delas in i grupperna elektrokemiska metoder och destillationsbaserade metoder, och vi har i denna rapport studerat både dessa grupper och utvecklat beräkningsmetoder för att kunna analysera dem både kvalitativt och kvantitativt.

¹ Utbränningen är ett mått på hur stor andel av de fissila kärnorna som faktiskt har klyfts vid en viss tidpunkt, till exempel då reaktorn töms på använt bränsle och nytt fylls på. Eftersom en viss massa av ett givet bränsle har ett bestämt antal fissila kärnor och varje klyvning frigör en bestämd mängd energi så kan utbränningen anges i energi per mängd bränsle. För att lättare kunna kopplas till reaktorns driftförhållande så anges utbränningen oftast som megawatt-dygn per ton bränsle eller gigawatt-dygn per ton. I en typisk modern lättvattenreaktor är utbränningen vid bränslebyte av storleksordningen 50 GWd/t. Vid produktion av plutonium av vapenkvalitet sätts gränsen för utbränningen i den öppna litteraturen till 1 GWd/t.

² I uranbränsle anrikat till 3,5 % uran-235 är den maximala utbränningen från enbart den initiala mängden uran-235 33,2 GWd/t, men i härden sker det en ständigt pågående omvandling av uran-235 till plutonium-239 genom neutroninfångning. Plutonium kan också klyvas och frigöra energi så i teorin skulle, om allt bränsle kunde utnyttjas, utbränningen kunna uppgå till så mycket som 950 GWd/t, men det finns flera fysikaliska och tekniska hinder som omöjliggör en så hög utbränning direkt i härden.

³ IAEA RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT GLOSSARY STI/PUB/1115, http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1115_web.pdf

⁴ <https://www.nrc.gov/materials/reprocessing.html>

tivt. Både destillation och elektrokemisk separation är fysikaliska metoder. Destillation av använt kärnbränsle är principiellt samma process som traditionell destillation där de ingående ämnas olika ångtryck används för att skilja dem från varandra. Elektrokemisk separation utnyttjar skillnader i oxidations- och reduktionspotentialer mellan olika ämnen som ingår i det använda kärnbränslet, så att vissa ämnen selektivt kan fällas ut beroende på hur spänningen över systemets elektroder väljs.

Även om de två grupperna av upparbetningsmetoder skiljer sig åt på flera avgörande sätt sker de vid förhöjda temperaturer och kallas därför ofta pyrobaserade metoder eller helt enkelt pyroprocessning. Det bör noteras att det namnet i litteraturen mer eller mindre har blivit synonymt med den dominerande elektrokemiska metoden, som beskrivs i kapitel 3, men i denna rapport avser termen pyroprocessning alla icke-vätskebaserade upparbetningsmetoder som sker vid förhöjd temperatur.

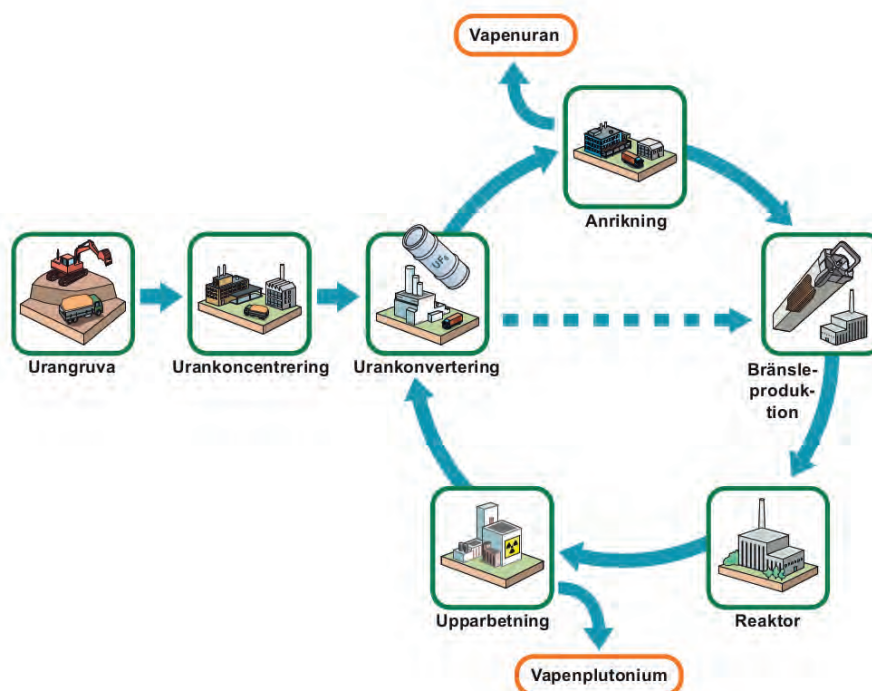


Figur 1. Den processcell som används vid elektrokemisk upparbetning. Publicerat i enlighet med Förenta Staternas regler för bilder skapade inom statlig verksamhet.

2. Varför upparbetning – och hur?

Vid bestrålning av kärnbränsle i en reaktor klyvs det fissila materialet. I färskt kärnbränsle utgörs den fissila komponenten av ^{235}U . Under bestrålningsperioden produceras andra fissila nuklider, huvudsakligen ^{239}Pu genom neutroninfångning hos ^{238}U , som också ger ett fissionsbidrag. Vid hög utbränning minskar andelen fissilt material i bränslet så att härden inte längre kan hållas kritisk, vilket leder till att bränslet måste bytas. Även vid hög utbränning innehåller bränslet emellertid fortfarande betydande halter fissilt material. Andelen fissilt material som finns kvar i bränslet vid bränslebyte beror på bränsletyp, drifhistorik etc. men är typiskt omkring hälften av andelen i färskt bränsle.

Upparbetning är en process där de olika komponenterna i använt kärnbränsle separeras. Det huvudsakliga syftet har varit att utvinna de kvarvarande fissila komponenterna så att dessa kan återanvändas som kärnbränsle. Dessutom separeras de radioaktiva fissions- och aktiveringsprodukterna från stabila och långlivade nuklider, vilket avsevärt minskar volymen vid deponering av använt kärnbränsle.



Figur 2. Upparbetningens position i kärnbränslecykeln.

Upparbetning utnyttjar som regel skillnader i kemiska egenskaper hos de ämnen som ska separeras, och till skillnad från anrikning äger ingen isotopseparation rum. Kemiska processer används för att separera ämnen med olika reaktionshastighet, löslighet, kemisk stabilitet, jämviktshalt, etc.

De allra flesta elproducerande kärnreaktorer använder anrikat uranbränsle. Bortsett från reaktorer som använder naturligt uranbränsle är anrikning ett absolut nödvändigt steg i en

civil kärnbränslecykel. Till skillnad från anrikning är upparbetning inte ett nödvändigt steg i den civila kärnbränslecykeln. Upparbetning används i den civila kärnbränslecykeln för att kunna återanvända fissilt material som MOX-bränsle och minska avfallsvolymer-na.

För tillverkning av plutoniumbaserade kärnvapen är däremot upparbetning nödvändig. Plutonium förekommer inte i naturen annat än i extremt låga halter och måste produceras artificiellt. Det effektivaste sättet att producera plutonium i kilogrammängder är genom bestrålning av uranbränsle i en kärnreaktor. Efter bestrålning föreligger plutoniumet tillsammans med kraftigt aktiva klyvnings- och aktiveringsprodukter i det använda bränslet. För att plutoniumet ska kunna användas för exempelvis vapenändamål måste det separeras dels från de övriga nukliderna, både de som ingick i det ursprungliga bränslet och de som skapats i reaktorn genom fission eller genom neutroninfångning. Detta skiljer sig från civil upparbetning, där man bara behöver utvinna det fissila materialet, som utgörs av både uran och plutonium.

I de stater som utvecklat kärnvapen användes militära upparbetningsanläggningar vars uppgift uteslutande var att producera material för kärnvapen⁵. Samtliga kärnvapenstater förutom Ryssland har sedan lång tid stängt sina militära upparbetningsanläggningar. Civil upparbetning äger däremot fortfarande rum i länder som Storbritannien, Frankrike och Japan. Det finns inga principiella skillnader mellan civil och militär upparbetning, även om militära anläggningar vanligtvis är mindre. Skillnaden avser främst det bestrålade bränsle som upparbetas. Bränsle för vapentillverkning har betydligt kortare bestrålnings-tid i reaktorn än civilt bränsle. Vid lång bestrålning ökar andelen tyngre plutoniumisoto-per i bränslet. Vapenplutonium bör vara mycket isotoprent och eftersom ingen isotopse-paration äger rum vid upparbetning måste bestrålnings-tiden vara kort.

Hur spridningssäker⁶ en upparbetningsmetod beror huvudsakligen på två egenskaper, dels vilka typer av bränsle som kan användas i matarströmmen, dels om processen kan sepa-rera plutonium eller om plutoniumet är blandat med andra ämnen som uran. En metod som kan upparbeta flera olika typer av bränsle och genererar plutonium separerat från andra ämnen är lättare för en proliferatör att inkorporera i ett vapenprogram.

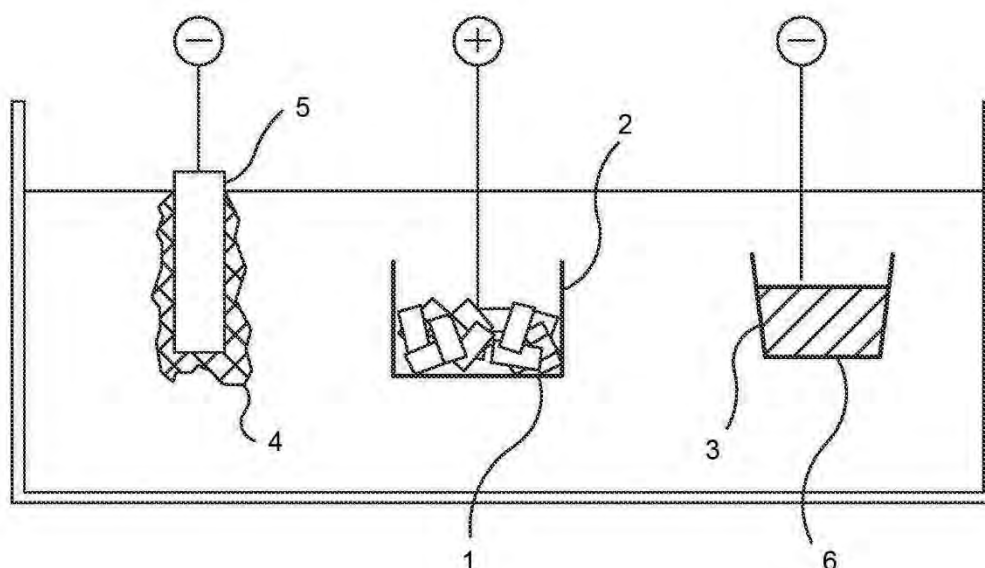
⁵ Förutom Sydafrika som enbart framställde uranbaserade kärnladdningar, vilket inte kräver upparbetning.

⁶ Med spridningssäker menas här en metod som har ett inbyggt skydd mot att metoden kan missbrukas för produktion av material eller andra produkter som kan användas för tillverkning av kärnvapen, vilket för upparbetningsmetoder till exempel kan betyda att det aldrig förekommer rent plutonium i processen. Ordet är till viss mån missvisande då ingen metod är fullständigt säker mot missbruk, men säkerheten ökar till exempel om metoden från grunden konstrueras så att det är fysikaliskt eller kemiskt omöjligt att ändra den eller om skyddet är passivt och inbyggt och inte beror på vissa aktiva val vid användningen.

3. Elektrokemiska metoder

Den av pyroprocesserna som uppfattats ha störst potential, och som studerats mest, är elektroraffinering. En av de viktigaste fördelarna med metoden är att uran med mycket hög renhet erhålls som produkt, men en uppberedningsanläggning av denna typ kan dessutom göras relativt liten och innehåller få komplicerade eller känsliga och ömtåliga delar.

Processkärlet är typiskt ungefär en meter i diameter och en meter högt. Det innehåller smält salt i inert atmosfär med ett kadmiumskikt i botten. Ett antal olika salter har studerats, men i de olika projekt och studier som gjorts tycks det finnas en samstämmighet om att ett eutektikum⁷ av kaliumklorid och litiumklorid, KCL/LiCl är mest gynnsamt. Kärlet har en anod i formen av en korg och ett antal, oftast en eller två, katoder över vilka en ström går. Bränslet som ska uppberedas hackas upp och placeras anodkorgen⁸.



Figur 3. Principskiss över den elektrokemiska cellen. 1. Det använda bränslet 2. Anodkorgen 3. Den flytande kadmiumkatoden 4. Deponerad metall 5. Fast katod 6. Katodkorg. Publicerat i enlighet med Förenta Staternas regler för bilder skapade inom statlig verksamhet.

Vid anoden bildar uranet från det använda bränslet joner i saltsmältan. Elektronerna från det oxiderade uranet leds genom en extern krets från anod till en av katoderna, där uranjonerna i saltet reduceras till uranmetall. Metalljonerna bär laddningen genom saltsmältan så att kretsen sluts, vilket resulterar i en överföring av uran från anod till katod.

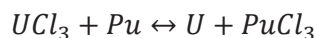
⁷ Ett eutektikum är en blandning av två eller flera komponenter i sådana proportioner att smältpunkten minimeras.

⁸ Metoden förutsätter bränsle i metallisk form, men bränsle i oxidform, som till exempel används i de flesta lättvattenreaktorer, kan uppberedas med denna metod om det först behandlas i en annan typ av elektrokemisk cell där oxiden reduceras och syreatomerna förs bort i form av syrgas. Kvar blir då bränslet i en metallisk form som kan uppberedas elektrokemiskt. I detta steg försvinner även alla gasformiga fissionsprodukter och huvuddelen av allt cesium som finns i det använda bränslet. Om bränslet redan är i metallisk form kan det hettas upp i en urgasningsugn för att erhålla samma effekt.

Övriga metaller i bränslet oxideras också vid anoden. De olika metalljonerna bildar salter som transporteras genom saltsmältan. Dessa joner kan transporteras genom saltet och deponeras på någon av katoderna eller i kadmiumet på botten. Vissa ämnen deponeras inte utan blir kvar i smältan och andra, de mest ädla och svåroxiderade, blir kvar vid anoden och bildar ett slamlager. Om detta lager blir för tjockt hämmas processen och reaktionshastigheten sjunker. Genom valet av elektrolytmaterial, katodmaterial och elektrisk spänning över de olika elektroderna kan olika ämnen fås att deponera på olika ställen.

Den ena katoden är en fastfaskatod där uranet ansamlas. Den andra katoden, i de fall fler än en katod används, utgörs av en degel med flytande katodmaterial i vilken övriga aktinider, en del uran samt ett mindre antal fissionsprodukter ansamlas. Huvuddelen av fissionsprodukterna deponeras i kadmiumet i kärlets botten eller blir kvar i själva saltsmältan.

Som katodmaterial för fastfaskatoden kan stål användas. Processen är mycket selektiv för uran. Plutoniumklorid, PuCl_3 , är mycket stabilare än uranklorid, UCl_3 , och kommer därför att förekomma i relativt högre koncentrationer. Regionen närmast fastfaskatoden kommer dessutom vara kraftigt utarmad på uran eftersom uranet deponeras där. Dessa två faktorer gör att koncentrationen av PuCl_3 närmast fastfaskatoden kommer vara flera storleksordningar högre än koncentrationen av UCl_3 . Trots detta deponeras i princip rent uran vid fastfaskatoden. Uran- och plutoniumkloriderna är i jämvikt:



Figur 4. Den deponerade uranmetallen vid fastfaskatoden. Publicerat i enlighet med Förenta Staternas regler för bilder skapade inom statlig verksamhet.

Jämvikten är kraftigt förskjuten åt höger och plutonium som deponeras på fastfaskatoden kommer omedelbart oxideras till klorid. Uranmetallen deponeras dendritiskt, i form av stalaktitliknande formationer, vid fastfaskatoden. Upptagningsförmågan hos katoden beror delvis på katodens utformning. Effektiviteten kan ökas något genom att använda metallfilm eller annan geometri med högt area-volymsförhållande. Vid stora uranansamlingar vid katoden kan dentriterna brytas och falla ned i kadmiumskiktet vid botten. Detta uran kan utvinna genom att ändra kretsen så att kadmiumskiktet används som anod. För att undvika att detta sker avbryts processen med regelbundenhet för att utvinna det uran som ansamlats vid fastfasanoden.

Den flytande katoden utgörs av en keramikdegel med en liten mängd flytande kadmium i botten. Degeln hänger fritt i saltfasen och genom att ansluta en elektrisk krets från anoden kan metaller från bränslet vid anoden fås att deponera vid katoden. De två katoderna kan drivas parallellt eller sekventiellt. Mängden uran som deponeras vid fastfaskatoden och mängden övriga metaller som deponeras vid den flytande katoden bestäms genom att reglera de strömmar som passerar vardera katoden, alternativt genom att välja spänning av respektive katod och låta massflödet av joner i saltet bestämma strömmen.

Saltsmältan utgörs av ett eutektikum av litiumklorid och kaliumklorid. Klorsalterna har egenskapen att då de reagerar med metallerna i det använda bränslet bildar de salter som kan delas in i tre distinkta grupper baserat på bildningsenergi⁹; instabila, stabila och en grupp däremellan. De i sammanhanget ädlare metallerna bildar instabila salter där jämvikten är förskjuten mot reaktanterna. Dessa ämnen föreligger alltså huvudsakligen som metaller och kan separeras mekaniskt exempelvis genom filtrering. I denna grupp ingår övergångsmetallernas fissionsprodukter samt kadmium och en del ämnen från bränsleinkapslingen. Den andra gruppen utgörs av metaller som oxideras permanent och bildar stabila klorider. Dessa återfinns enbart i saltsmältan och kan separeras med hjälp av jonbytare. Denna grupp innefattar alkalimetallernas och de alkaliska jordartsmetallernas fissionsprodukter samt en del övriga ämnen som samarium och europium. Vissa ämnen föreligger som joner i saltsmältan och utgör således en egen grupp men eftersom de uppehåller sig i saltsmältan räknas de av praktiska skäl till de stabila kloriderna. Dessa ämnen är brom, jod, selen, tellur, arsenik och antimon. Den tredje gruppen utgörs av de ämnen som befinner sig i jämvikt både som metall och metallklorid och kan således enkelt transporteras elektrolytiskt från anod till katod. Denna grupp utgörs av fissionsprodukterna från resterande sällsynta jordartsmetaller, inkapslingens zirkonium samt alla aktinider.

Som synes bildar nästan alla fissionsprodukter antingen mycket instabila eller stabila klorider medan samtliga aktinider tillhör mellangruppen. Denna egenskap gör klorsalter synnerligen lämpliga som elektrolyter. Bland klorsalterna är kombinationen LiCl och KCl skonsam som elektrolyt då dess eutektikum har en smältpunkt på 352°C (41,8 % LiCl, 58,2 % KCl).

För att upprätthålla den elektrolytiska transporten i smältan krävs en andel aktinidklorid i saltet. Då bränslet introduceras reduceras vissa av aktinidkloriderna av bland annat vissa av de radioaktiva metalliska fissionsprodukterna. För att kompensera för detta behöver en mängd oxidanter tillsättas vid olika tillfällen. Exempelvis kadmiumklorid kan användas

⁹ Standard free energy of formation, ΔG°_f , J/mol, är ett mått på entalpi- och entropiförändringen hos en kemiskreaktion och anger hur spontant reaktionen äger rum, och därmed jämviktsförhållandet mellan reaktanter och produkter.

för att oxidera aktiniderna så att aktinidhalten i saltsmältan återställs. På motsvarande sätt oxideras bränslet för att etablera en initial halt av aktinidklorid i saltet.

Förloppet sker satsvis och processen måste avbrytas dels för att utvinna uranet och aktiniderna, dels för att rena kadmiumet och saltsmältan från fissionsprodukter. Under drift ansamlas fissionsprodukter i saltsmältan och kadmiumet. Vid höga halter kan värmeutvecklingen från fissionsprodukterna orsaka problem för anläggningen. Vid en anläggning av den storlek som beskrivits ovan deponeras ungefär 5 kg metall i den flytande katoden, varav huvuddelen utgörs av plutonium. Resten av det som avsätts vid den flytande katoden utgörs huvudsakligen av uran med en liten del fissionsprodukter. Fastskatoden innehåller 10-20 kg uran och praktiskt taget inga andra metaller¹⁰.

Både saltet och det kadmium som ingår i systemet kan återanvändas efter rening, vilket i de storskaliga försök¹¹ som gjorts har skett efter cirka tio satsar använt bränsle¹². Saltet renas genom destillation och jonbyte och kadmiumet genom destillation. Antalet gånger som saltet och kadmiumet kan återanvändas beror på hur effektiv reningen är och det enda som begränsar återanvändningen är dosraten som byggs upp och den självuppvärmning som den leder till. Efter rening av saltet måste en lämplig jonhalt återställas innan den elektrokemiska processen kan påbörjas igen, vilket görs genom tillsats av framför allt uran och oxiderande ämnen, men efter en vanlig påfyllning av en ny sats använt bränsle behöver ingen sådan process ske eftersom saltet redan har en korrekt jonbalans sedan den förra satsen.

3.1. Elektrokemisk beräkningsmodell

För att kunna bedöma den elektrokemiska uppbertningsmodellen både kvalitativt och kvantitativt har det inom denna studie utvecklats en relativt detaljerad numerisk modell. Den storhet som vi har valt att följa är koncentrationen av joner och atomer, uttryckt i mol per m³, som funktion av rum och tid. Jonerna i saltet kan både diffundera och advektera, det vill säga transporteras, antingen relativt det bakomliggande mediet, saltet, eller som medföljande i det. Tidsutvecklingen av koncentrationen ges av advektions-diffusions-ekvationen, som i det endimensionella fallet med konstant diffusionskoefficient skrivs som

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = D_i \frac{\partial^2 c_i}{\partial x^2} - v_i(x) \frac{\partial c_i}{\partial x} + f_i,$$

där c_i är koncentrationen för ämne i , D_i är diffusionskoefficienten, $v_i(x)$ den potentiellt rumsberoende advektionshastigheten och f_i de tidsberoende källor och sänkor som elektroderna utgör. Notera att tidsberoendet hos alla ingående storheter har undertryckts i notationen för att öka läsbarheten. Detta gäller genom hela rapporten där inget annat anges.

¹⁰ J.J. Laidler *et al*, Progress in Nuclear Energy, Vol 31, Iss 1-2 (1997) 131-140.

¹¹ Se till exempel Y.I. Chang, Nuc Techn, 88 (1989) 129.

¹² Se till exempel H. Lee *et al*, Science and Technology of Nuclear Installations 2013 (2013) 11.

Denna andra ordningens partiella differentialekvation är relativt svår att lösa av flera anledningar. Den ickelinjära naturen som framför allt källorna ger gör att ekvationen inte låter sig lösas analytiskt, utan en numerisk metod krävs. Källornas exakta beskaffenhet beror på lösningens tidigare historia, eller enklare uttryckt på hur mycket material som redan transporterats bort från anoden, hur mycket som finns i saltet och hur mycket som deponerats på katoderna. Sålunda krävs en tidsordnad metod vilket utesluter flera vanliga lösningsmetoder för denna typ av problem. Ekvationen är även mycket styv, det vill säga den är instabil för alla utom de kortaste tidsstegen, se nedan, för alla explicita lösningsmetoder. För diffusionsdelen av ekvationen så är en implicit Crank-Nicolson-metod¹³ (CN) användbar men de i princip punktformiga källorna gör att den metoden ger ohanterligt svåra oscillationer, Gibbsringningar, i advektionsdelen av ekvationen. Detta kan lösas genom en så kallad Strang-splitting¹⁴ där en del av ekvationen, i detta fall advektionsdelen samt källorna, löses för halva tidssteget varefter den erhållna lösningen används som startvärde för den andra halvan, diffusionsdelen, som integreras över hela tidssteget. Slutligen används den lösningen i sin tur för integreringen av den första delen av ekvationen igen för ytterligare ett halvt tidssteg.

Som nämnts ovan leder den mycket abrupta, i princip punktformiga, till- och bortförslingen av joner i källtermerna till att metoder med en oflexibel stencil¹⁵, som till exempel CN, inte kan användas för att beskriva advektionen. I det endimensionella fallet, som vi har valt att använda här, är finita-differens-metoder och finita-volym-metoder samma sak. Verktyg från den senare går således att kombinera med verktyg från den tidigare gruppen, som CN, utan större problem. Vi har därför valt att använda en så kallad WENO-stencil¹⁶ av ordning 5 för att hantera ringningsproblemet, kombinerat med en enkel Riemannlösare.

Den elektrokemiska processen sker i ett mycket tunt lager närmast elektrodytorna. Detta lager kan vara så tunt som 20 μm och det beräkningsnät som används måste kunna lösa upp så små avstånd och måste alltså vara finare än detta mått, samtidigt som det måste beskriva hela den makroskopiska elektrokemiska cellen. Detta kan göras med ett beräkningsnät av varierande finhet, men vi har istället i denna studie valt att behålla ett konstant nät för att möjliggöra den ovan nämnda operatorsplittringen och istället optimera den numeriska effektiviteten för att kunna använda ett mycket stort antal beräkningsceller. Eftersom det i de experiment som genomförts har använts omrörare som satt saltbadet i cirkulation så har beräkningsområdet och antalet beräkningsceller dubblats och källorna placerats en fjärdedel in från respektive rand för att simulera detta. Ändarna av beräkningsområdet har sedan förbundits¹⁷ genom periodiska randvillkor.

Transporten av joner från anoden till katoderna är bara en del av det numeriska problemet. Till detta kommer den kinetik som behövs för att beskriva hur joner avges från ano-

¹³ J. Crank och P. Nicolson, Proc. Camb. Phil. Soc 43 (1947) 50-67.

¹⁴ G. Strang, SIAM J of Num. Anal. 5.3 (1968) 506 - 517

¹⁵ Med stencil avses de celler i beräkningsnätet över tid och rum som används för att beräkna nästa tidssteg.

¹⁶ XD Liu et al, J of Comp Phys 115 (1994) 200-212.

¹⁷ I den tänkta elektrokemiska cell som beräkningarna försöker likna strömmar saltet, drivet av omrörare eller roterande anoder (båda metoderna har förekommit i praktiska försök), från anoden till katoden i centrum av kärlet och åter till anoden längs kanterna av kärlet som ofta har ett cirkulärt eller ovalt tvärsnitt. I den endimensionella beräkningsgeometri som har använts här går det inte att återskapa den exakta geometrin från de praktiska försök som genomförts internationellt, men effekten går att återskapa genom att låta den första cellen i beräkningsnätet motsvara en punkt mitt på en kant. Om eventuella skillnader i faktisk väg mellan elektroderna för transporten i olika riktningar försummas kan anoden placeras en fjärdedel in i beräkningsnätet och katoderna tre fjärdedelar in i beräkningsnätet. De absoluta värdena på koordinaterna i beräkningsnätet är helt godtyckliga, och det går även att variera elektrodernas position i beräkningsnätet. Dess placering påverkar dock resultatet i väldigt liten utsträckning så länge som de områden runt respektive elektrod som har ett överskott respektive underskott av joner från de elektrokemiska processerna inte överlappar. Slutligen kan den sista cellen i beräkningsnätet, motsvarande en punkt längs sidan i kärlet i direkt förbindelse med den första cellen i beräkningsnätet, förbindas numeriskt med den första så att flöde ut ur den sista cellen motsvaras av ett flöde in i den första, och vice versa.

den och tas upp lik väl som avges från katoderna och bidrar till de källor och sänkor som förekommer i systemet. Vi kan börja med att konstatera att alla ämnen i anoden börjar som metaller och de slutar i metallisk form i endera katoden, förutom den lilla andel som föreligger i jonform i saltet. Ingen permanent kemisk förändring sker alltså från initialtillståndet till sluttillståndet, vilket gör att vi kan sluta oss till att saltet är passivt i processen. Det fungerar som ledare för jonerna, men det är kemiskt inert och kan således lämnas utanför den kinetiska beskrivningen.

Elektrokemisk upparbetning kan, liksom all motsvarande elektrokemisk bearbetning, drivas i två olika lägen så länge som den tekniska utrustningen tillåter detta¹⁸. Dels kan potentialen över elektroderna lämnas oreglerad och få anpassa sig till den kemiska omgivningen. Den maximala strömmen bestäms då enbart av koncentrationen av joner vid katodytorna och storleken på dessa ytor. Det går att begränsa strömmen i kretsen, men det går aldrig att överstiga den elektrokemiskt tillåtna gränsen. Finns det inga joner vid ytan flyter det inte heller någon ström i kretsen och inga joner fälls ut från anoden, varför man måste initiera upparbetningen med en viss mängd metalljoner som tillsätts i saltet. Den maximala strömmen som kan fås i katod j från ämne i är

$$I_{ij} = \frac{z_i F A_j D_i c_{ij}}{\delta_{ij}},$$

där z_i är jonens laddning, F Faradays konstant, A_j katodens area, c_{ij} jonkoncentrationen vid katoden och δ_{ij} tjockleken på de elektrokemiskt aktiva så kallade Helmholtzlagren. Närmast katodens yta kommer jonerna att polariseras och det kommer att uppstå en potentialdifferens mellan ytan på elektroden och det yttre Helmholtzlagret. Ju tjockare lagren är, desto långsammare kommer den elektrokemiska processen att vara och strömmen blir lägre. De olika strömbidragen summeras till en total katodström och eftersom systemet bildar en sluten krets är det denna ström som kommer att driva processen i anoden och begränsa antalet joner som fälls ut per tidsenhet.

I anoden kommer joner att fällas ut i proportion till sin kemiska aktivitet. Den kemiska aktiviteten är produkten av koncentrationen av metallen i anoden och metallens kemiska aktivitetskoefficient¹⁹,

$$I_i \propto \gamma_i c_i,$$

$$I_{tot} = \sum_{i=1}^c I_i.$$

Flödet av joner, vilket i sin tur ger källtermerna vilken är positiv vid anoden och negativa vid katoderna, ges slutligen av

¹⁸ J. Newman och K.E. Thomas-Alyea, *Electrochemical Systems*, 3d ed. Wiley (2004).

¹⁹ Den kemiska aktivitetskoefficienten beskriver hur ett ämnes kemiska potential avviker från den ideala kemiska potentialen i en blandning. Ju högre värde koefficienten har, desto mer aktivt är ämnet i förhållande till hur det borde vara med utgång från bara dess koncentration i blandningen. Det är mycket svårt att beräkna koefficientens värde på teoretiska grunder, utan den bestäms oftast experimentellt för ett givet system. I denna rapport har vi utgått från uppmätta värden, se relevant not nedan.

$$J_i = \frac{I_i}{Fz_i}.$$

I det andra läget regleras potentialen över katoderna och strömmen bestäms av vilken rat som jonerna drivs med över Helmholtzlagrens potential vid katoderna vid en given överpotential. Denna rat kan vara både positiv och negativ beroende på om överpotentialen är positiv eller negativ. Joner kan således både tas upp och fällas ut vid katoderna. Varje kombination av elektroder, joner och salter kommer att ha en naturlig potentialskillnad mellan sig som beror på den elektrokemiska potentialen, given av Gibbs fria energi för reaktionen, för respektive material, temperaturen och den kemiska omgivningen, och överspänningen definieras som skillnaden mellan den elektriska potential som katoden hålls vid genom extern utrustning och den naturliga potentialen. Denna naturliga potential kallas för jämviktspotential och ges av Nernst ekvation,

$$E_{ij}^{eq} = E_{ij}^o + \frac{RT}{Fz_i} \ln \left(\frac{a_{ij,jon}}{a_{ij,metall}} \right),$$

där E_{ij}^o är standardpotentialen, R är den allmänna gaskonstanten, T temperaturen och a_{ij} aktiviteten för jonen respektive den reducerade metallen, det vill säga produkten mellan koncentrationen och aktivitetskoefficienten. Det går att separera dessa två faktorer från varandra och skriva om ekvationen som

$$E_{ij}^{eq} = E_{ij}^* + \frac{RT}{Fz_i} \ln \left(\frac{c_{ij,jon}}{c_{ij,metall}} \right),$$

där E_{ij}^* är den så kallade effektiva standardpotentialen och ges av

$$E_{ij}^* = E_{ij}^o + \frac{RT}{Fz_i} \ln \left(\frac{\gamma_{ij,jon}}{\gamma_{ij,metall}} \right).$$

Det går att visa²⁰ att den effektiva standardpotentialen kan skrivas som summan av en konstant term och en linjärt temperaturberoende term om koncentrationen inte är för hög. På ett liknande sätt kan logaritmen av aktivitetskoefficienten skrivas som summan av en konstant term och en term som beror på inversen av temperaturen. Även diffusionskoefficienten kan skrivas som en konstant term gånger en inverst temperaturberoende exponent. Dessa temperaturberoende parametrerade storheter har använts i den numeriska modellen.

Blir absolutbeloppet av överspänningen för högt kommer till slut strömmen att bli begränsad av tillgången på joner, precis som i fallet med den första driftsmoden. Så länge

²⁰ J Zhang, J of Nuc Mat 447 (2014) 271-284.

drivspänningen inte avviker för mycket, typiskt under 0,5 V, från jämviktpotentialen ges strömmen emellertid av Butler-Volmers ekvation²¹,

$$I_{ij} = A_j i_{ij}^0 \left(\frac{C_{ij,jon}^s}{C_{ij,jon}} e^{\frac{-\beta F z_i \eta_{ij}}{RT}} - \frac{C_{ij,metall}^s}{C_{ij,metall}} e^{\frac{(1-\beta) F z_i \eta_{ij}}{RT}} \right),$$

där η är överpotentialen och β en symmetrifaktor som beskriver huruvida processen är obalanserad, men som oftast kan sättas till 0,5. Utbytesströmmen i_{ij}^0 beror på den kemiska omgivningen, typ av salt och elektrod samt temperatur och jonkoncentration och beskriver den ström som flyter i kretsen vid kemisk jämvikt. Det är mycket svårt att exakt modellera denna ström så i den föreliggande studien har den valts som en konstant ström, där värdet för de olika ämnena har hämtats från litteraturen. Det bör noteras att denna parameter är notoriskt svår att bestämma experimentellt och de rapporterade värdena varierar avsevärt, så de använda värdena är viktade genomsnitt av data från ett stort antal källor. Superskript s avser koncentrationen direkt vid ytan av katoden och superskript b koncentrationen i bulken en bit från katoden. Koncentrationskvoten tar i beaktande den koncentrationsgradient som kan uppstå nära katodytan och som kan hämma eller accelerera den elektrokemiska processen. Om massflödet i saltet är så högt att det hela tiden genom advektion transporteras nya joner till katodytorna med en koncentration som motsvarar den i saltet i snitt kan denna kvot med fördel sättas till 1.

Precis som i det första fallet där systemet drivs av en given ström och den elektriska potentialen självregleras så att flödet av joner motsvarar strömmen, ges totalströmmen genom katoderna av summan av alla bidrag, och processen i anoden kan även här med god approximation beskrivas på samma sätt då den processen även nu begränsas av den tillgängliga strömmen och inte på tillgången på metall och joner så länge som anoden inte helt uttömts, men då avstannar uppbyggnadsprocessen ändå, och de sista, numeriskt svårbeskrivna ögonblicken, kan utan större förlust försummas. På samma sätt kan utfällningen av de första få monolagren av metall på den fasta katoden beskrivas på ett förenklat sätt då dess bidrag till den totala utfällningen även de är försumbara.

Jonerna kan transporteras genom den elektrokemiska cellen dels genom att föras med i den kollektiva rörelsen som saltet har, dels genom att röra sig i förhållande till den lokala saltomgivningen, drivet av den elektrostatiska potentialskillnaden mellan elektroderna. Dock så är den senare processen mycket långsam (typiskt 10^{-10} m/s) i förhållande både till den diffusion som sker (motsvarande 10^{-8} m/s) och till den makroskopiska advektionen (10^{-4} m/s) så den kan med fördel försummas. Dock så finns det möjlighet att ta hänsyn till även denna process i den numeriska modellen, men resultatet påverkas i princip inte på något mätbart sätt om den tas med.

Slutligen behöver dynamiken i tillväxten av ytan på katoden beskrivas. Som det har nämnts ovan växer metallen på den fasta katoden i form av dendriter vilket ger en väldigt snabb tillväxt av ytan i förhållande till volymen som beror på mängden deponerat material. Fasfältssimuleringar av yttillväxten²² visar att ytan per tidssteg i beräkningen ökar, för varje ämne som deponeras på den fasta elektroden, proportionellt med strömmen,

²¹ Butler-Volmers ekvation presenteras här utan härledning, den intresserade läsaren hänvisas till en grundläggande textbok i elektrokemi, till exempel Newman.

²² Y. Shibuta *et al*, J of Nuc Mat 414 (2011) 114-119

$$\Delta A_i = \frac{L \Delta t i_i V_i^m}{F z_i},$$

där L är katodens längd, Δt tidssteget, i_i strömtätheten (det vill säga strömmen per ytenhet) och V_i^m volymen per mol av ämne i . De dynamiska effekter som eventuellt skulle kunna påverka den flytande katoden har inte tagits i beaktande, som till exempel en eventuell mättning av metall i kadmiumbadet och komplexbildning som påverkar koncentrationen av metall i katoden, utan katoden har antagits ha tillräckligt stor volym för att detta ska kunna försummas.

Utöver de elektrokemiska processerna där koncentrationen av de olika ingående jonerna och atomerna styrs via en elektrisk potential pågår det även hela tiden termodynamiskt drivna kemiska processer där skillnader i kemiska potentialer och koncentrationer så som det framgår av inledningen till kapitel 3. I dessa processer kan till exempel urantriklorid oxidera plutonium som tidigare elektrodeponerats på den fasta katoden så att det bildas metalliskt uran som deponeras och plutoniumtriklorid som övergår i lösning i saltbadet. På detta sätt kan i princip alla ämnen²³, eller komplex, i saltfasen reagera med alla ämnen som deponerats i metallform, vilket skapar en sammanlänkad hierarki av jämviktstillstånd där en atom som först reducerats i en reaktion i sin tur kan oxideras igen av en atom av ett annat ämne. Man säger att de tillsammans bildar ett reaktionsnätverk, som i denna form även kallas *multi specie chemical equilibrium network*.

För en enstaka reaktion uppnås kemisk jämvikt, det vill säga reaktionen åt höger sker lika snabbt som den åt vänster²⁴, och jämviktskoncentrationerna kan beräknas utgående från förändringen i Gibbs fria energi, ΔG_f , för reaktionen, via jämviktskoefficienten

$$K_{eq}(T) = e^{\frac{-\Delta G_f}{RT}}.$$

Denna koefficient kan i sin tur kopplas ihop med koncentrationerna av de olika komplexen i jämviktstillståndet, som i sin tur beror på hur snabbt reaktionen sker åt höger och åt vänster. Hur snabbt de sker beror på sannolikheten för att de ingående komplexen ska mötas, vilket beror på koncentrationen, och en faktor som beskriver sannolikheten för att en reaktion ska ske om komplexen väl möts, de så kallade ratkoefficienterna. Om det krävs fler än ett av ett komplex minskar sannolikheten motsvarande koncentrationen för varje antal av komplexet som behövs. I uttrycket för raten ska alltså koncentrationen upphöjas med den stökiometriska koefficienten som är negativ för det komplex som förbrukas och positiv för det komplex som produceras. Från definitionen av jämvikt uppnås den när raterna åt höger och vänster är lika stora och vi kan ställa upp ett uttryck för kvoten mellan ratkoefficienterna för processen gåendes framåt (f) och bakåt (b),

²³ För att inte språkligt behöva skilja på atomer, joner och molekyler som kan ingå i reaktioner kallar man oftast de ingående entiteterna för komplex. I reaktionen som beskrivs i inledningen av kapitel 3 så är U, UCl₃, Pu och PuCl₃ alla komplex som ingår i reaktionen.

²⁴ I en reversibel reaktion går det att godtyckligt välja vilken sida av reaktionen som ska räknas som reaktantsida och vilken som är produktsida, så länge som tecknet på Gibbs fria energi för reaktionen väljs på motsvarande sätt. För att undvika den diskussionen kallas reaktionsriktningarna ofta för "åt höger" och "åt vänster" i relation till hur reaktionen skrivs.

$$\frac{k_f}{k_b} = \prod_{j=1}^n \left(\frac{N x_j}{V} \right)^{\nu_j},$$

där n är antalet komplex som ingår i reaktionen, N är det totala antalet mol i systemet, V systemets volym, x_j molfraktionen, $c = \frac{N x_j}{V}$

och ν_j den stökiometriska koefficienten för komplex j . Jämviktskoefficienten är proportionell mot denna kvot, men kvoten måste först normeras så att hänsyn tas till eventuella ändringar i volymen (alternativt trycket beroende på vilken ensemble som valts) som kan uppstå på grund av den kemiska reaktionen. Om varken volymen eller trycket ändras, vilket är fallet för det system som vi studerar, blir den normerande faktor 1 vilket gör att uttrycket ovan för kvoten, och därmed jämviktskoefficienten, blir det slutliga.

I princip skulle molfraktionerna kunna beräknas genom att de två uttrycken ovan för jämviktskoefficienten förs samman. Problem uppstår dock eftersom vi har n obekanta molfraktioner och bara en ekvation, men detta problem undanröjs genom att vi kan notera att molfraktionerna inte är oberoende. Om en viss mängd av ett komplex på den ena sidan av reaktionen reagerar så kommer även motsvarande mängd av de övriga komplexen på den andra sidan att reagera, med hänsyn tagen till stökiometrin, och det kommer även att produceras komplex på den andra sidan av reaktionen i enlighet med stökiometrin. Förändringen i molfraktionerna i en reaktion kan alltså beskrivas med bara en parameter χ som på engelska kallas *extent of reaction*, vilket närmast kan översättas till reaktionens omfattning. Ekvationen som kopplar ihop de två uttrycken för jämviktskoefficienten är sålunda lösbar och χ kan beräknas, och från denna parameter erhålls de olika molfraktionerna. χ kan anges både som antal mol och som en dimensionslös parameter, och i denna rapport har vi valt den tidigare varianten.

I en reaktion har vi skapat eller förbrukat $\nu_j \chi$ mol av komplex j , beroende på tecknet och värdet på stökiometrikoefficienten. χ definieras som integralen av skillnaden i reaktionsraterna framåt och bakåt över tiden multiplicerat med volymen,

$$\chi(t) = V \int_{t_0}^t (\text{rate}_f - \text{rate}_b) dt.$$

Samtidigt ges förändringen av antalet mol per tidsenhet av

$$\frac{dN_j}{dt} = V \nu_j (\text{rate}_f - \text{rate}_b).$$

Detta uttryck kan integreras och kombineras med uttrycket ovan för χ vilket ger det nya antalet mol av komplex j som funktion av det ursprungliga antalet och χ ,

$$N_j = N_{j,0} + \nu_j \chi .$$

När antalet mol för varje komplex är känt är det lätt att beskriva respektive molfraktion,

$$\chi_j = \frac{N_{j,0} + \nu_j \chi}{\sum_{k=1}^n N_{k,0} + \nu_k \chi} .$$

Jämviktskoefficienten kan sålunda slutligen skrivas som

$$K_{eq} = \prod_{j=1}^n \left(\frac{N_{j,0} + \nu_j \chi}{\sum_{k=1}^n N_{k,0} + \nu_k \chi} \right)^{\nu_j} ,$$

förutsatt att volymen och trycket förblir konstant genom reaktionen, och temperaturen hålls konstant genom kontakt med ett yttre värmebad. Nu kan de två uttrycken för jämviktskoefficienten jämföras och ekvationen kan lösas med avseende på χ och från detta kan alla N_j beräknas. Lösningssområdet begränsas av de mängder av de olika komplexen som finns initialt. Reaktionen kan inte gå så långt åt något håll att det finns ett negativt antal kvar av något komplex.

Metoden kan lätt modifieras för att även kunna beräkna jämvikten i reaktionsnätverk. Det som behöver göras är att för varje ekvation, en per reaktion, väga in att förändringen i antalet komplex j i reaktion i beror på vad som sker i samtliga reaktioner,

$$K_i = \prod_{j=1}^n \left(\frac{N_{j,0} + \sum_{m=1}^r \nu_{m,j} \chi_i}{\sum_{k=1}^n \left(N_{k,0} + \sum_{m=1}^r \nu_{m,k} \chi_i \right)} \right)^{\nu_{i,j}} ,$$

där r är antalet reaktioner i nätverket. Ekvationssystemet kan nu lösas på valfritt sätt, men det bör noteras att det är ett högst olinjärt system som beror kraftigt på kvaliteten på startgissningen för χ_i . Vi har i denna studie valt en metod baserad på en så kallad *trust region*²⁵ som är både i sammanhanget relativt okänslig för startgissningen och relativt numeriskt effektiv.

²⁵ A. R. Conn *et al*, Trust-region Methods. SIAM Society for Industrial & Applied Mathematics, Englewood Cliffs, New Jersey, MPS-SIAM Series on Optimization edition, 2000.

Beräkningen som beskrivits ovan tillsammans med den elektrokemiska delen ger tillsammans förändringen i antalet joner i cellen (cellerna) närmast katoderna samt antalet atomer som deponeras på eller i respektive katod, det vill säga de källor som ingår i differentialekvationen som beskrivs i inledningen av sektion 3.1 och som beskriver koncentrationsfördelningen som funktion av tid och rum.

Med en beskrivning av den elektrokemiska cellens geometri, inklusive elektrodernas form och placering, saltets sammansättning och alla i det använda bränslets ingående ämnen som önskas studeras elektrokemiska egenskaper och ursprungliga koncentrationer kan den utvecklade numeriska modellen beräkna deponeringen av metaller på de olika katoderna som funktion av tid. Även om CN-metoden för att lösa diffusionsdelen av differentialekvationen och WENO-metoden för advektionsdelen i princip var för sig är numeriskt stabila och tillåter mycket stora tidssteg, så är kombinationen av dem via operatorsplittingen något känslig²⁶ och tidssteget har valts som det kortaste av pechelvillkoret och det vanliga courantvillkoret gånger en lämplig courantfaktor²⁷.

3.2. Resultat

Den ovan beskrivna beräkningsmodellen har använts för att studera hur det använda bränslet fördelas mellan de två katoderna som funktion av katodpotential. Initiala beräkningar ger vid handen att de ädlare fissionsprodukterna inte oxideras vid anoden utan förblir där. I den något förenklade modell som använts har ingen hänsyn tagits till den uppbyggnad av anodslam huvudsakligen bestående av olösliga ämnen som sker. Anodslammet påverkar i huvudsak upplösningsraten för de oxiderbara ämnena och inte de kvalitativa resultaten, även om sekundära effekter på anodpotentialen kan förväntas, men då anoden i denna modell drivits med en ganska kraftig överpotential så kan denna effekt försummas utan större förlust av förutsäggelseförmåga i modellen.

På samma sätt har de ämnen som enligt initiala beräkningar förblir i lösning i saltet eller löses i den större, passiva kadmiumpoolen som i antas finnas i botten av processkärlet utslutits i de mer detaljerade beräkningarna som genomförts med den ovan beskrivna modellen. Kvar av de ämnen som både kan oxideras vid anoden och sedan reduceras vid någon av katoderna vid de katodspänningar som är aktuella och som förekommer i mer än spårmängder i det använda bränslet finns uran, neptunium, plutonium och americium. I denna rapport har ett typiskt lättvattenbränsle med en utbränningsgrad på 50 GWd/ton använts²⁸. Tabell 1 visar andelen av de aktuella ämnena.

Då syftet med beräkningarna inte i huvudsak har varit att ge en detaljerad kvantitativ bild av den elektrokemiska upparbetningsprocessen²⁹, utan snarare att kunna bedöma rimligheten i att använda den grundläggande processen i militär eller civil upparbetning, har beräkningarna avbrutits då koncentrationerna i saltet och de effektiva katodpotentialerna för de olika ämnena stabiliserats, och där med också reaktionshastigheterna. Fram tills det

²⁶ Ju längre tidssteg som används, desto mer avviker startvärdena för de senare delstegen från de korrekta startvärdena.

²⁷ Pechelvillkoret säger att tidssteget måste vara så kort att en typisk jon inte hinner diffundera över en hel beräkningscell under ett tidssteg. På motsvarande sätt innebär courantvillkoret att en jon inte får hinna advektera över en hel beräkningscell. Courantfaktorn är en multiplikativ säkerhetsfaktor mindre än 1 som garanterar att tidssteget aldrig blir för långt. Notera att pechelvillkoret är ickelinjärt och av samma storleksordning som courantvillkoret.

²⁸ Bränslets sammansättning har beräknats med utbränningskoden SCALE/Origen 6.2.

²⁹ Även om den numeriska modellen ger mycket precisa resultat, både kvalitativt och kvantitativt, beror de senare på ett stort antal parametrar, till exempel elektrodform och area, advektionshastighet, sammansättningen på saltet, temperatur m.fl., som inte har varit möjligt att undersöka inom ramarna för denna studie, men som givetvis måste optimeras i en produktionsanläggning.

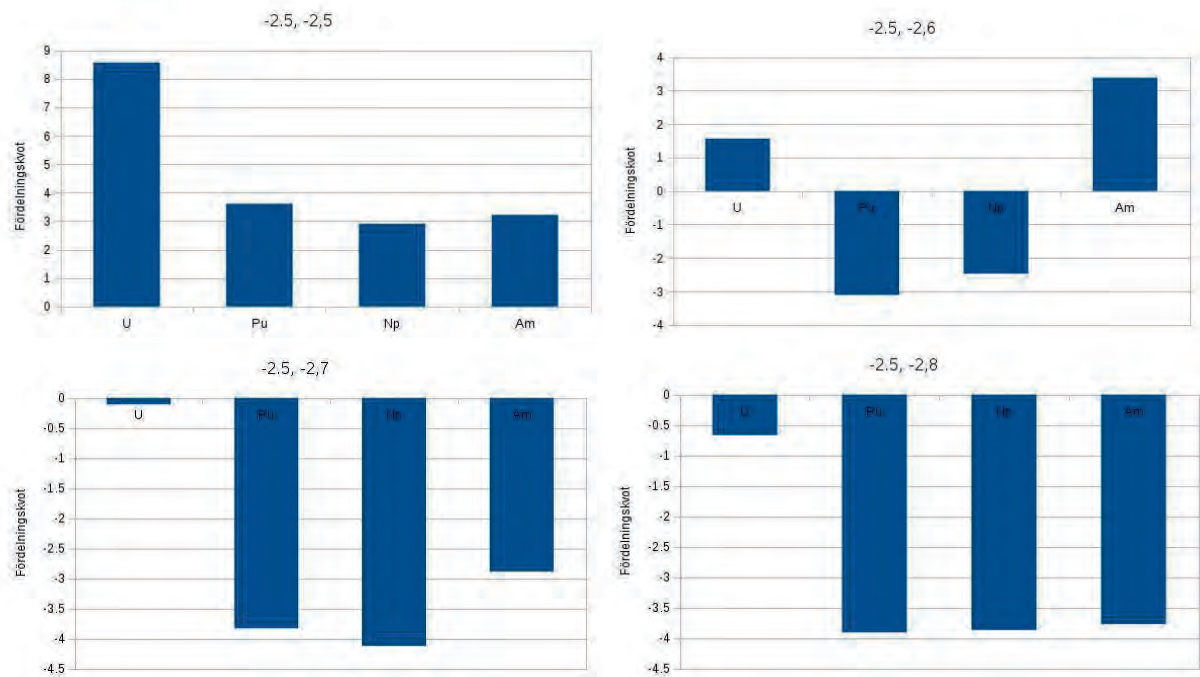
att anoden uttömts på de olika ämnena, vilket sker med olika takt för de olika ingående ämnena

Tabell 1. Andelen av olika ämnen i ett typiskt lättvattenbränsle med en utbränningsgrad 50 GWd/ton. Andelarna summerar inte till 1 eftersom de ämnen som inte deltar i den elektrokemiska processen inte har tagits med.

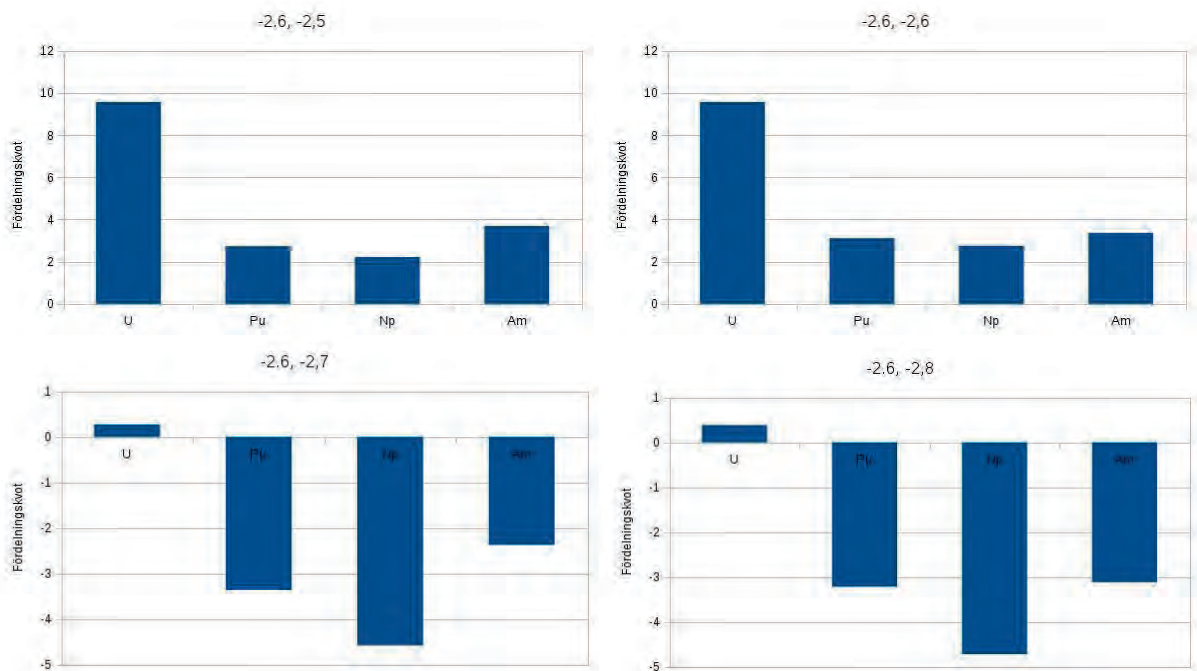
Ämne	Andel
uran	0,9345
neptunium	0,00057
plutonium	0,0114
americium	0,00038

beroende på dess kemiska aktivitet, så fortlöper processen tämligen linjärt och de relativa koncentrationerna påverkas relativt lite. Figurerna 5 till 8 visar hur de fyra studerade ämnena fördelar sig mellan de två katoderna som funktion av katodspänning för respektive katod. Figurerna visar 10-logaritmen av kvoten mellan massan som reduceras vid den fasta katoden och massan som reduceras vid den flytande katoden. Ett positivt värde betyder att en större andel reduceras vid den fasta katoden och ett negativt värde att en större andel deponeras vid den flytande katoden för respektive ämne. Ett resultat på till exempel 4 betyder att 10^4 gånger så mycket av det ämnet deponeras på den fasta katoden.

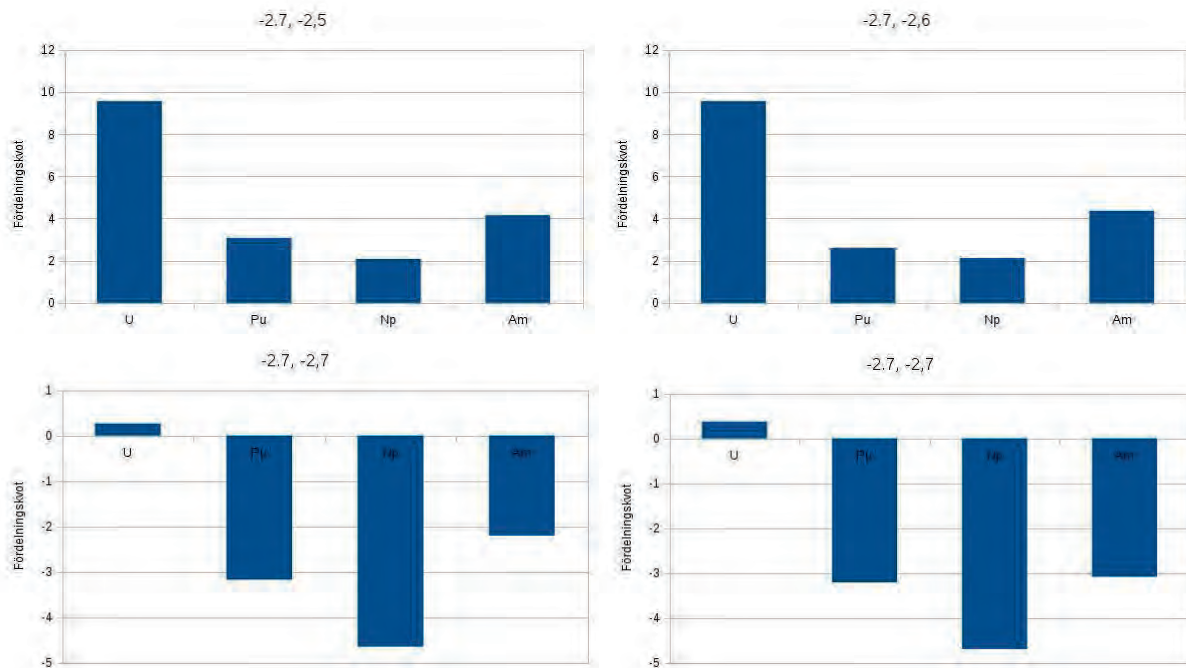
Det bör noteras att figur 5 till 8 inte säger något om koncentrationerna av respektive ämne i förhållande till varandra. I vissa fall förblir en stor del av oxiderade ämnena i lösning i saltet och den faktiska mängden av ett ämne i katoderna kan vara mycket låg, samtidigt som ett annat ämne nästan helt reduceras och endast en mycket liten andel förblir i saltet.



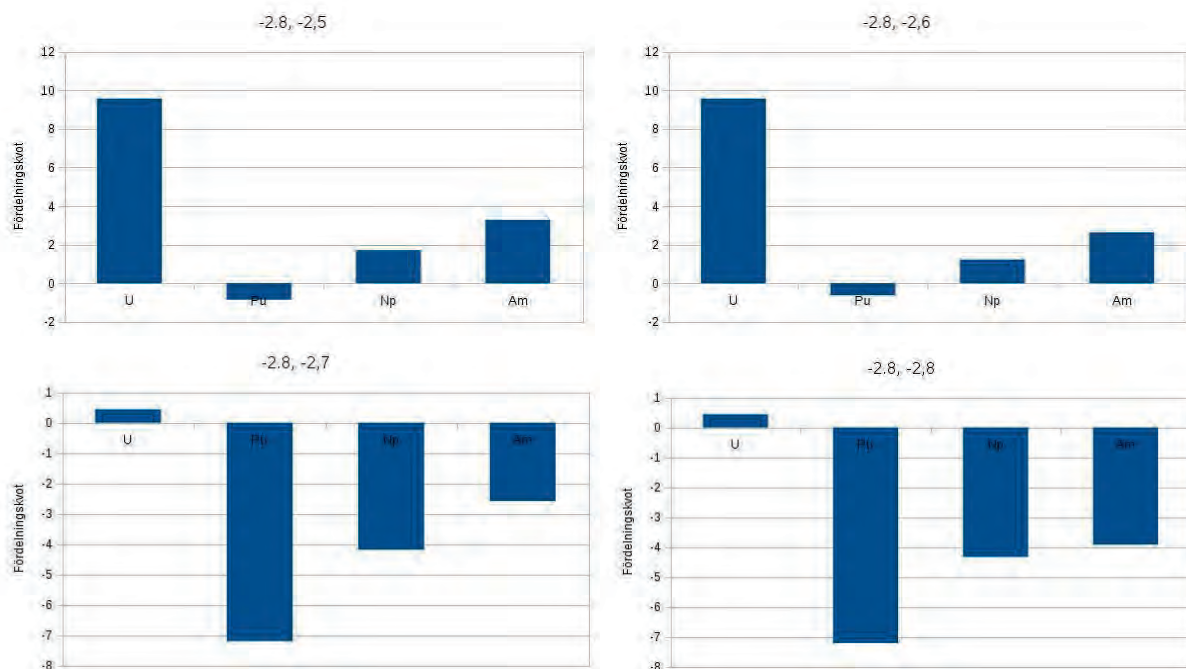
Figur 5. Fördelningskvoten för katodspänningen -2,5 V över den fasta katoden och -2,5 V till -2,8 V över den flytande katoden. Ett positivt värde motsvarar en huvudsaklig deponering vid den fasta katoden.



Figur 6. Fördelningskvoten för katodspänningen -2,6 V över den fasta katoden och -2,5 V till -2,8 V över den flytande katoden. Ett positivt värde motsvarar en huvudsaklig deponering vid den fasta katoden.



Figur 7. Fördelningskvoten för katodspänningen -2,7 V över den fasta katoden och -2,5 V till -2,8 V över den flytande katoden. Ett positivt värde motsvarar en huvudsaklig deponering vid den fasta katoden.



Figur 8. Fördelningskvoten för katodspänningen -2,8 V över den fasta katoden och -2,5 V till -2,8 V över den flytande katoden. Ett positivt värde motsvarar en huvudsaklig deponering vid den fasta katoden.

Fördelningen kan tillsammans med den termodynamiska jämvikten, driven av skillnader i Gibbs fria energi, förklaras av den jämviktspotential som uppstår vid en viss koncentration och temperatur enligt ovan. Det bör noteras att temperatureffekter inte i detalj har undersökts i denna studie, men då de olika ämnena har olika temperaturberoende så bör en viss effekt på fördelningen kunna märkas. Beräkningar med den numeriska modellen ger vid handen att både fördelningskvoterna och den relativa fördelningen mellan ämnena påverkas, men studiens omfattning tillät ingen närmare undersökning av detta fenomen. För de resultat som presenteras här har en temperatur på 773 K använts, vilket är den vanligaste temperaturen i de experiment som beskrivits i litteraturen även om temperaturer så lågt som 725 K har rapporterats.

Eftersom jämviktspotentialerna beror på koncentrationerna vilka i sin tur beror på jämviktspotentialerna och dess förhållande till katodpotentialerna erhålls ett olinjärt system där små ändringar kan ge stora effekter och jämviktspotentialerna kan driva över tiden när koncentrationerna ändras. Därför krävs det troligen en återkoppling i en eventuell produktionsanläggning där katodpotentialerna kan anpassas för att ge en maximal renhet alternativt produktionsrat beroende på vad som efterfrågas.

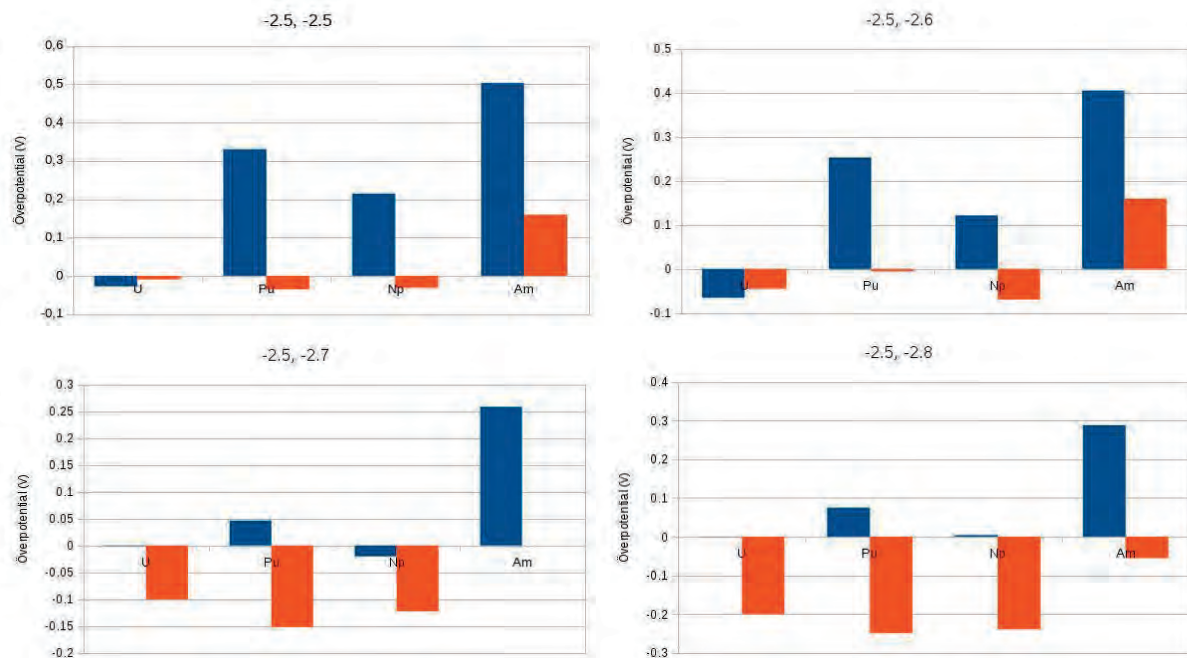
De överpotentialer, det vill säga skillnaden mellan katodpotentialen och jämviktspotentialen, som observerades i beräkningarna när systemet uppnått ett (meta)stabilt tillstånd visas i figurerna 9 till 12. Ett negativt värde innebär att det aktuella ämnet reduceras vid katoden och ett positivt att det oxideras. De blå staplarna representerar den fasta katoden och de orangea staplarna den flytande katoden.

Som det framgår av kombinationen av figurerna 5 till 8 och 9 till 12 så spårar fördelningskvoterna jämviktspotentialerna väl om hänsyn även tas till de termodynamiskt drivna reduktion-oxidationsprocesserna, där de senare kraftigt tenderar att reducera uran vid den fasta katoden på bekostnad av de övriga ingående ämnena då uran har det högsta (minst negativa) värdet på Gibbs fria energi för bildandet av klorider³⁰, vilket framgår av tabell 2.

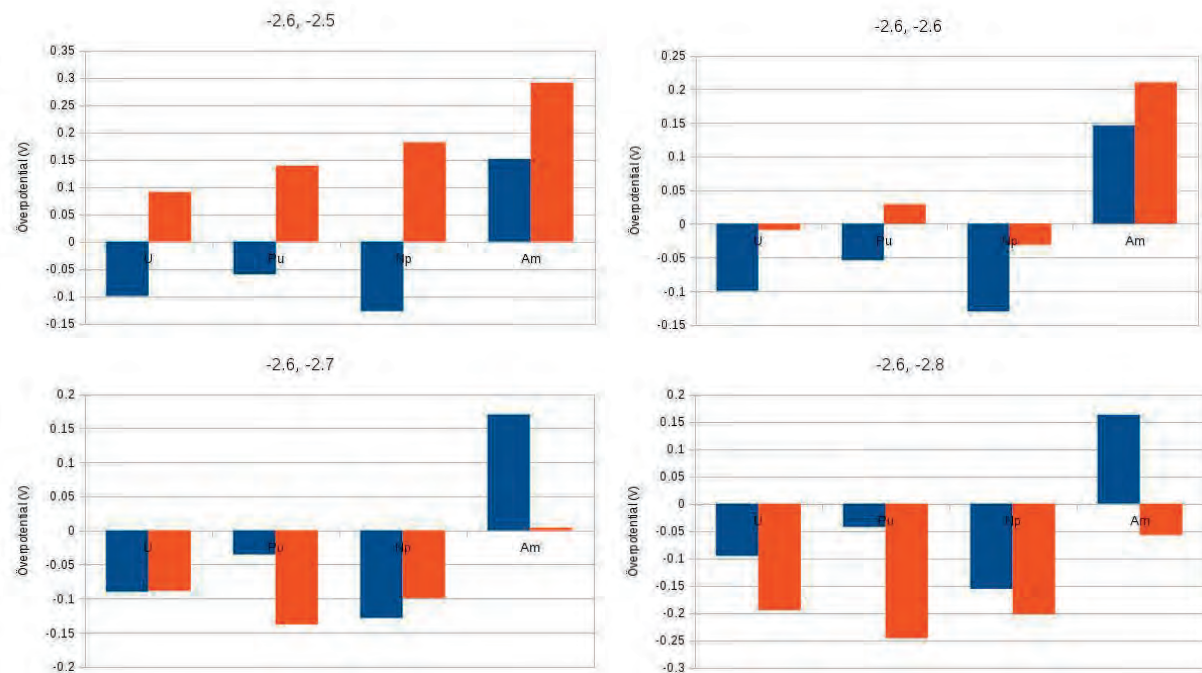
Tabell 2. Gibbs fria energi för bildandet av klorider för de aktuella ämnena.

Ämne (klorid)	Gibbs fria energi [kJ/mol]
uran (UCl ₃)	-231,84
neptunium (NpCl ₃)	-243,60
plutonium (PuCl ₃)	-262,08
americium (AmCl ₃)	-268,80

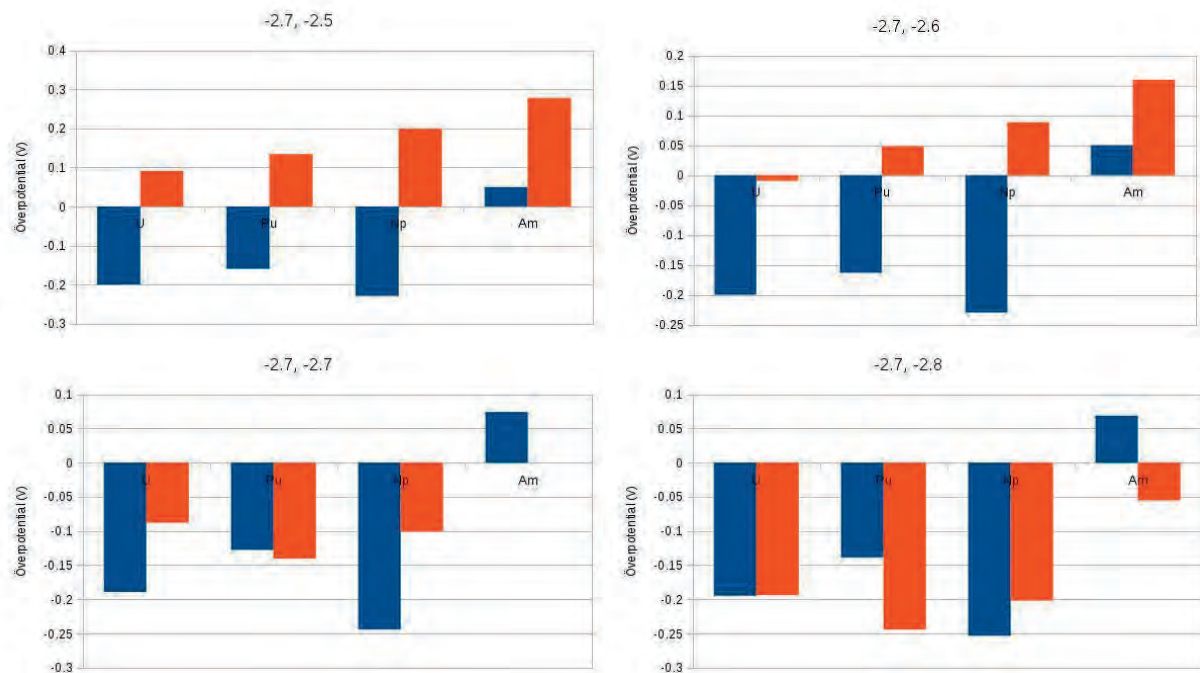
³⁰ J.P. Ackerman, Ind. Eng. Chem. Res. 30 (1991) 141-145.



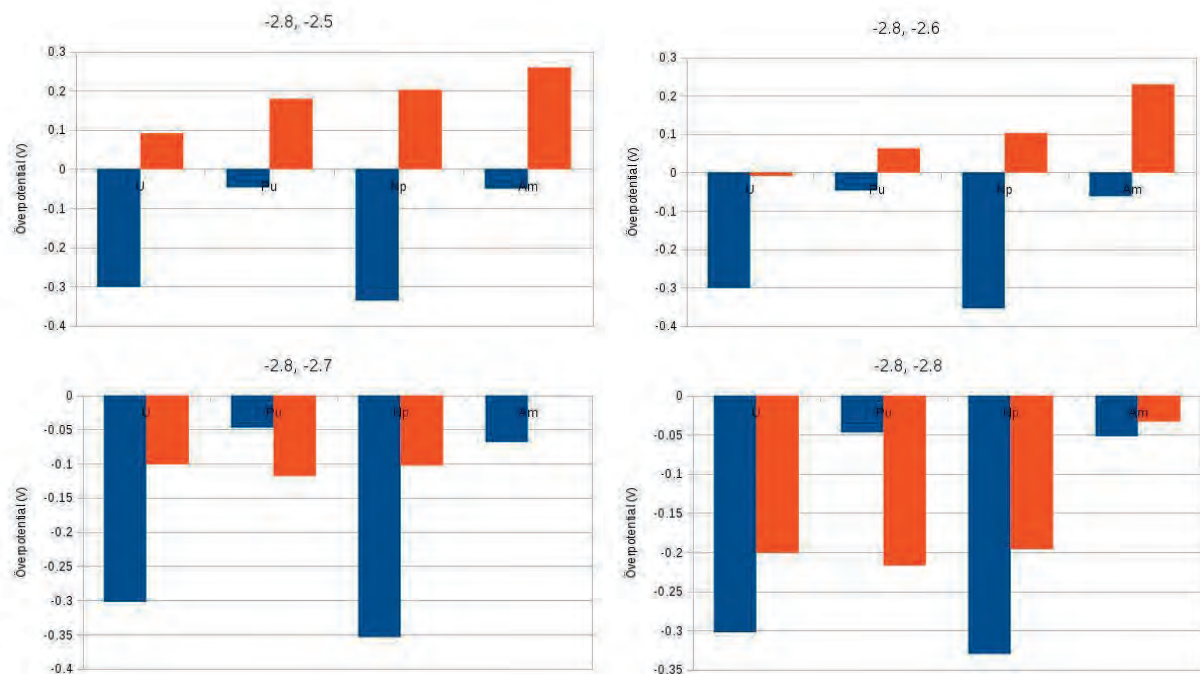
Figur 9. Överpotentialen i volt för den fasta katoden (blå) och den flytande (orange) för en katodpotential på -2,5 V över den fasta katoden och mellan -2,5 V och -2,8 V över den flytande katoden.



Figur 10. Överpotentialen i volt för den fasta katoden (blå) och den flytande (orange) för en katodpotential på -2,6 V över den fasta katoden och mellan -2,5 V och -2,8 V över den flytande katoden.



Figur 11. Överpotentialen i volt för den fasta katoden (blå) och den flytande (orange) för en katodpotential på -2,7 V över den fasta katoden och mellan -2,5 V och -2,8 V över den flytande katoden.



Figur 12. Överpotentialen i volt för den fasta katoden (blå) och den flytande (orange) för en katodpotential på -2,8 V över den fasta katoden och mellan -2,5 V och -2,8 V över den flytande katoden.

En effekt som inte är inkluderad i den implementerade elektrokemiska modellen är den komplexbildning som sker mellan neptunium, plutonium och americium och det kadmium som finns i den flytande katoden, och som inte sker mellan uran och kadmium. Därför är reduktionen av uran vid den flytande katoden något överdriven vid större (mer negativa) överpotentialer över den flytande katoden. Experiment och detaljerade beräkningar av just denna process³¹ ger vid handen att i princip inget uran över huvud taget reduceras i den flytande katoden. Om hänsyn till detta tas kan en renhetsknot för plutonium i den flytande katoden beräknas. Här har renhetsknoten definierats som

$$RK = \frac{N_{Pu}}{\sum_i N_i}, \quad i \neq Pu.$$

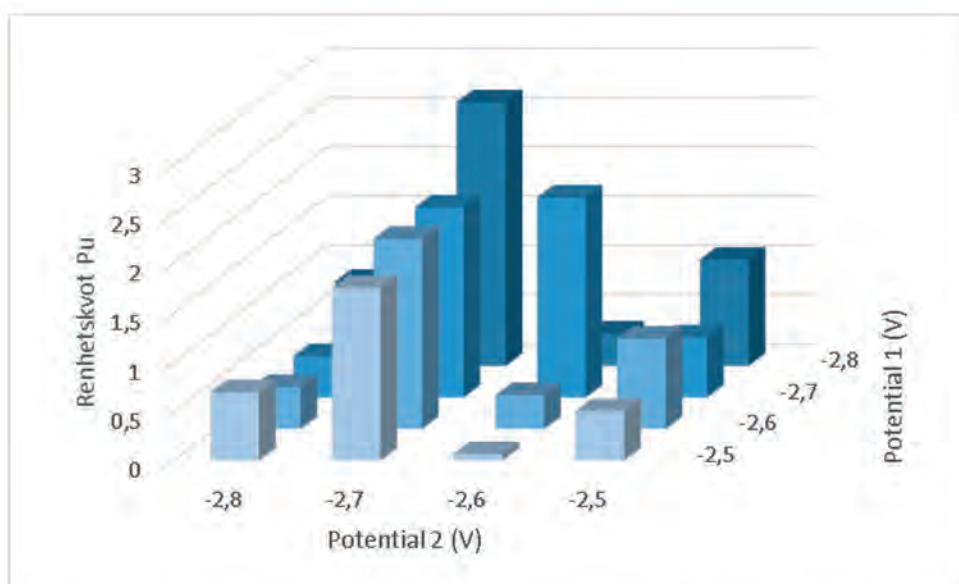
Ett högre värde innebär sålunda renare plutonium. Renhetsknoten för de studerade ämnen och katodpotentialerna visas i figur 13.

Exakt vilka värden på renhetsknot som olika applikationer ställer är okänt, men det är ganska troligt att kärnvapenapplikationer kräver högre värden än de som observerats här då även de bästa kvoterna innebär att nästan 30 % av produktströmmen består av andra ämnen än plutonium. Det bör dock noteras att denna studie inte har innehållit några som helst element av optimering, och det är högst troligt att det går att finna kombinationer av katodpotentialer som ger en betydligt renare produktström. Det bör också noteras att den produktström som dessa helt optimerade konfigurationer ger redan är i princip helt fria från alla fissionsprodukter och uran, vilket är, i detta hänseende, bättre än Purex där uran och alla aktinider i det första steget faller ut tillsammans. Man kan även tänka sig möjligheten att kombinera flera elektrokemiska steg där det efter det första steget tillkommer ett eller flera steg där produktströmmen från det/de tidigare stegen selektivt reduceras eller oxideras för att öka renheten på den önskade produkten. I ett andra steg följande på det ovan beskrivna skulle neptunium överta urans roll och reduceras på den fasta elektroden och genom ett lämpligt val av katodpotential över den flytande katoden (något under plutoniums jämviktpotential och ovanför americiums jämviktpotential) så skulle americium förbli i det oxiderade tillståndet.

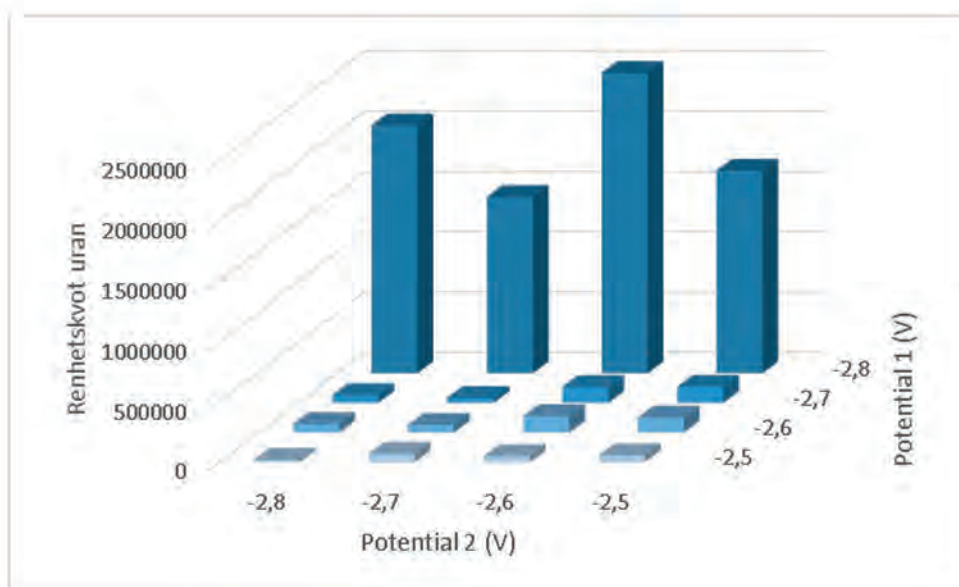
Den ovan beskrivna elektrokemiska uppberedningsmetoden skulle i princip också kunna användas för att bereda använt bränsle för återanvändning i snabba reaktorer eller acceleratordrivna subkritiska system som kan hantera en större mängd tyngre aktinider, alternativt termiska reaktorer förutsatt att utbränningen är så pass låg att det uppberedade bränslet fortfarande kan användas³². Då eftersträvas en process som separerar de fissila komponenterna från fissionsprodukterna, samt uran från de övriga aktiniderna. Det senare görs för att man ska kunna reglera reaktiviteten i bränslet. Som det framgår av resultaten ovan kan redan den helt optimerade processen göra detta. Renhetsknoten för uran reducerat vid den fasta katoden visas i figur 14. Redan de lägsta värdena, ca 16000, innebär att det för varje 16000 uranatomer som reduceras vid den fasta katoden förekommer en atom av någon av de övriga aktiniderna, vilket är betydligt bättre än vad de flesta separationsmetoder som baseras på rent kemiska processer.

³¹ Se till exempel J.P. Ackerman, *Ind. Eng. Chem. Res.* 30 (1991) 141-145 eller J Zhang, *J of Nuc Mat* 447 (2014) 271-284 och referenser däri.

³² I termiska reaktorer är man beroende av en relativt stor andel fördröjda neutroner, ca 10 %, för att det ska gå att kontrollera reaktiviteten i kärnan med de relativt långsamma kontrollstavarna. Om andelen blir för låg riskerar kärnan att via naturliga fluktuationer bli överkritisk snabbare än vad styrsystemen kan kompensera för. Ju större andel tyngre aktinider, det vill säga tyngre än plutonium, som bränslet innehåller, desto lägre blir andelen fördröjda neutroner. Andelen tyngre aktinider ökar i sin tur med ökad utbränning. Härda med ett snabbt neutronspektrum är mindre känsliga för denna typ av effekter. Underkritiska så kallade ADS-system kan göras i princip helt okänsliga för andelen fördröjda neutroner.



Figur 13. Renhetskvot för plutonium som funktion av katodpotential. Potentialen över den fasta katoden kallas i figuren "Potential 1" och potentialen över den flytande katoden "Potential 2".



Figur 14. Renhetskvoten för uran som funktion av katodpotential. Potentialen över den fasta katoden kallas i figuren "Potential 1" och potentialen över den flytande katoden "Potential 2".

4. Destillationsbaserade metoder

De destillationsbaserade metoderna bygger på att olika ämnen i det använda kärnbränslet har olika kokpunkt, precis på samma sätt som sker i till exempel petrokemiska raffinaderier. Det finns idag inga kända uppberedningsanläggningar som utnyttjar någon destillationsbaserad metod, och inte heller några större försöksanläggningar eller projekt, utan metoden får ses som mer hypotetisk och en eventuellt möjlig framtida lösning. Dock kan det noteras att en variant av destillation redan förekommer i existerande vätskebaserade uppberedningsmetoder, och destillation är en viktig komponent i den elektrokemiska processcykeln beskriven ovan. Redan idag drivs de flyktigaste ämnena, framför allt xenon och krypton, men även cesium, bort ur bränslet genom upphettning, och i den elektrokemiska cykeln förbereds bränslet via upphettning. Dessutom renas både saltet och den flytande kadmiumkatoden via destillation innan de kan återanvändas.



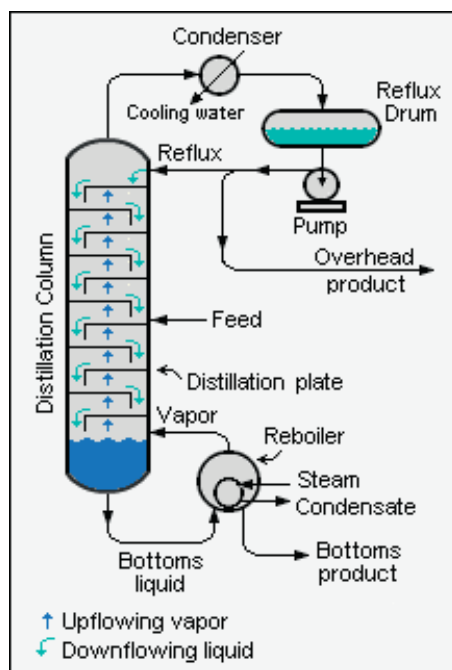
Figur 15. En destillationsanläggning, i detta fall för destillation av petrokemiska produkter. Publicerad med fotografens godkännande i enlighet med CC A3.

Direkt destillation av det använda bränslet kan göras på flera sätt. Flera av de ingående ämnena har en hög kokpunkt vilket i sin tur kräver en hög temperatur i destillationskolonnen. Vid högre temperaturer blir en del av ämnena, framför allt uran och plutonium, mycket korrosiva vilket ställer väldigt höga krav på de ingående materialen. För att und-

vika de högsta temperaturerna kan det använda bränslet placeras i ett överskott av fluor-gas. Då bildar de flesta av de ingående ämnena fluorider, till exempel uranhexafluorid, som i regel har betydligt lägre kokpunkter. Man kan även genom att variera mängden fluor selektivt styra hur olika ämnen faller ut som aska i olika led i processen. Den kombinerade kemiska och termiska beskrivningen av denna process är dock relativt komplicerad varför vi i denna rapport har fokuserat på destillation av de ursprungliga metallerna som ingår i bränslet.

4.1. Destillation – teori

När ett ämne upphettas kommer det i de allra flesta fallen först övergå från en fast form till vätskeform och sedan vidare till gasform när temperaturen ökas, men redan vid låga temperaturer kommer en del atomer att ha tillräckligt hög kinetisk energi för att lämna den fasta kroppen eller vätskan och bilda en ånga ovanför ytan³³. Vid kokning är den genomsnittliga energin högre än bindingsenergin och det finns till slut ingen vätska kvar. Det går i princip att destillera även fasta material, men hastigheten i denna process är försvinnande låg så nedan kommer vi att referera till lågtemperaturfasen som en vätskefas.



Figur 16. Principskiss över destillationsprocessen. Publicerad i enlighet med CC A3:public domain.

Andelen av atomerna som befinner sig i gasfasen i förhållande till andelen som befinner sig i vätskefasen, angivet som molfraktioner ges av

³³ Destillation beskrivs på många olika ställen i litteraturen, men en mycket bra och heltäckande källa är Charles D Holland, *Fundamentals of Multicomponent Distillation*, McGraw-Hill, New York 1981.

$$y_i = K_i x_i ,$$

där y_i och x_i är molfraktionen som befinner sig i gasfasen respektive vätskefasen för ämne i , och K_i är jämviktsförändringskonstanten. Vid låga tryck³⁴ kan denna konstant med fördel approximeras som

$$K_i = \frac{P_i}{P} ,$$

där P_i är partialtrycket för ämne i och P är det totala trycket. Partialtrycket som funktion av temperaturen T kan beräknas eller parametreras på många olika sätt, och här har vi valt den så kallade Antoine-ekvationen

$$P_i = e^{\left(A_i - \frac{B_i}{T - C_i} \right)} ,$$

där de tre parametrarna kan bestämmas genom antingen experiment eller beräkningar. I detta fall har de erhållits från tabeller³⁵, men det följande resonemanget är oberoende av hur jämviktsförändringskonstanten erhållits.

I ett enstaka destillationssteg, i litteraturen, även den svenskspråkiga, ofta kallat *stage* eller *tray*, beskrivs processen av ett antal bevarandelagar som beskriver hur materialet som flödar in i systemet, kallat *feed* och som består av c olika ämnen med olika kokpunkt och ångtryck, fördelas i ett gasformigt destillat, och en vätskefraktion kallad *bottom*. Den exakta fördelningen beror på jämviktsförändringskonstanten för respektive ämne. Även om den kallas för en konstant så beror den på tryck och temperatur, vilket framgår av ekvationerna ovan. Först kommer två bevarandelagar, eller ekvationer, som dels säger att atomerna från ämne i antingen befinner sig i gasfasen eller vätskefasen och hur relationen mellan dessa ser ut,

$$y_i = K_i x_i ,$$

samt att alla atomer som kommer in i systemet också lämnar det, antingen som destillat eller *bottom*,

$$FX_i = V_F y_{Fi} + L_F x_{Fi} ,$$

där F , V_F och L_F är molflöden av respektive *feed*, destillat och *bottom*, och X_i är molfraktionen av ämne i oavsett fas, och y_{Fi} samt x_{Fi} är molfraktionen av ämne i i destillatet respektive *bottom*-fraktionen. Till detta kommer två ekvationer som beskriver

³⁴ Exakt vad som menas med låga tryck varierar för olika ämnen, men den angivna formen är tillämplig för alla tryck som kan vara aktuella vid destillation av använt bränsle, det vill säga atmosfärstryck och lägre.

³⁵ <http://webbook.nist.gov/chemistry/>

att summan av alla molfraktioner tillsammans blir ett i respektive avtappningsström, det vill säga det finns inga andra ämnen i processen och alla atomer finns kvar,

$$\sum_{i=1}^c y_{Fi} = 1, \sum_{i=1}^c x_{Fi} = 1.$$

Tillsammans bildar dessa $2c+2$ ekvationer ett ekvationssystem med $2c+2$ obekanta variabler, förutsatt att flödet in i systemet är känt och processen sker vid en fix temperatur och tryck. Om temperaturen³⁶ ligger under den så kallade bubblpunkten är lösningen trivial då alla ämnen förblir i vätskefasen³⁷. På motsvarande sätt övergår alla ämnen till gasfasen om temperaturen övergår den så kallade daggpunkten. Dessa två punkter kan enkelt beräknas som nollpunkterna³⁸ till de två funktionerna nedan,

$$f(T) = \sum_{i=1}^c K_i(T) X_i - 1$$

för bubblpunkten, och

$$F(T) = \sum_{i=1}^c \frac{X_i}{K_i(T)} - 1$$

för daggpunkten.

Ligger temperaturen mellan de två punkterna kan ekvationssystemet lösas antingen med hjälp av valfri numerisk metod eller genom eliminering och återsubstitution om antalet variabler är hanterligt få. Lösningen ger både flöde och molfraktioner för respektive ämne både i destillatet och *bottom*. Det kan noteras att både det fysikaliska problemet och de ekvationer det leder till har direkta paralleller i anrikning där en inkommande ström av nuklider genom någon process delas upp i en lättare och en tyngre ström.

Ett enstaka steg ger i de flesta fall en för låg separation mellan ämnena, så till vida det inte rör sig om väldigt stora skillnader i kokpunkt och ångtryck. Precis som i fallet anrikning brukar därför flera steg kopplas samman till en kaskad, eller kolonn som systemet oftast kallas i destillationssammanhang. I varje steg kommer en viss andel av respektive ämne att förångas och stiga upp till nästa steg, och en viss andel kommer att kondenseras (eller förbli i vätskefas) och falla ner till steget under. Varje steg, med undantag för det första respektive sista samt *feed*-steget, kommer sålunda att ha en ström in, som utgörs av summan av strömmen av vätskan från steget ovan och strömmen av gas från steget under, och två strömmar ut, strömmen av gas till steget ovanför och strömmen av vätska till steget under.

³⁶ För ett givet tryck, alternativt trycket för en given temperatur.

³⁷ Systemet är i termodynamisk jämvikt och ämnena väl blandade. Då kommer fasövergångar, så som kokning, att ske kollektivt för hela blandningen samtidigt och det finns en bubblpunkt och en daggpunkt oavsett antalet ingående ämnen. Energin i systemet fördelas enligt ekvipartitionsprincipen (varje frihetsgrad får lika stor andel av den tillgängliga energin), men vissa atomer eller molekyler får slumpmässigt, Gaussianskt fördelat, högre kinetisk energi än genomsnittet och vissa en lägre, och då atomer (eller molekyler) från olika ämnen har olika utträdesarbeten, är olika hårt bundna till vätskan, så kommer det partiella gasstrycket att variera för olika ämnen vid en given temperatur mellan bubblpunkten och daggpunkten.

³⁸ För olika värden på temperaturen T kan de två monotona funktionerna anta både positiva och negativa värden. Bubblpunkten respektive daggpunkten ges av de temperaturer där respektive funktion byter tecken.

Eftersom man i steget längst ner, där *bottom* tas ut, bara vill ha de allra minst volatila (lägst ångtryck och högst kokpunkt) i vätskefasen så måste antingen temperaturen vara som högst där om trycket hålls konstant i kolonnen, alternativt måste trycket vara som lägst om temperaturen hålls konstant, vilket är ovanligare. Av tradition brukar man därför kalla detta för det sista steget och numreringen utgår därför kanske något ointuitivt från det översta, svalaste, steget där destillatet tas ut. Om kolonnen arbetar med varierande temperatur erhålls temperaturgradienten ofta genom att det sista steget värms och steget kallas därför ibland för återkokare eller *reboiler*. Genom att variera temperaturen kan man bestämma hur mycket produkt som ska tas ut som *bottom* och hur mycket som ska återcirkulera i kolonnen. På samma sätt kan man i det första steget, kondensatorn eller *condenser*, bestämma hur stor andel destillat som ska tas ut och hur mycket som ska återcirkulera.

Om man generaliserar ekvationssystemet för fallet ett enstaka steg till en kolonn för ämne i och steg j så kan bevarandelagarna skrivas som

$$y_{ji} = K_{ji} x_{ji} \quad (j = 1, 2, \dots, K, N),$$

$$\sum_{i=1}^c y_{ji} = 1 \quad (j = 1, 2, \dots, K, N),$$

$$\sum_{i=1}^c x_{ji} = 1 \quad (j = 1, 2, \dots, K, N),$$

$$V_{j+1} y_{j+1,i} = L_j x_{ji} + DX_{Di} \quad (j = 1, 2, \dots, K, f-2),$$

$$V_f y_{f,i} + V_F y_{F,i} = L_{f-1} x_{f-1,i} + DX_{Di},$$

$$V_{j+1} y_{j+1,i} = L_j x_{ji} - Bx_{Bi} \quad (j = f, f+1, \dots, K, N-1),$$

$$FX_i = DX_{Di} + Bx_{Bi},$$

$$V_{j+1} H_{j+1} = L_j h_j + DH_D + Q_C \quad (j = 1, 2, \dots, K, f-2),$$

$$V_f H_f + V_F H_F = L_{f-1} h_{f-1,i} + DH_D + Q_C,$$

$$V_{j+1} H_{j+1} = L_j h_j - Bh_B + Q_R \quad (j = f, f+1, \dots, K, N-1),$$

$$FH = DH_D + Bh_B + Q_C - Q_R,$$

där f är matningssteget, *feed*, där de fyra sista ekvationerna beskriver hur entalpin i systemet bevaras. Q_C och Q_R är det arbete som kondensorn och återkokaren utför och

mäts i energi per tidsenhet. Variabler angivna med stor bokstav anger storheter oavsett fas och de angivna med liten bokstav per fas där fasen framgår av sammanhanget.

Totalt är det $N(2c+3)$ ekvationer och $n(2c+3)+3$ obekanta³⁹ så tre variabler måste fixeras för att systemet ska gå att lösa. Det är vanligt att destillatraten D , refluxraten L_1 (och därmed även kondensatorns så kallade refluxkvot som styr kolonnens effektivitet och verkningsgrad och som kan varieras för att erhålla stort flöde och liten separation eller tvärt om) samt trycket i kolonnen.

Ekvationssystemet är olinjärt och i princip omöjligt att lösa analytiskt även för små problem, men det är lösbart med flera olika numeriska metoder så länge det finns en bra startgissning för de olika variablerna. Det är ofta svårt att gissa bra startvärden på mer än temperaturen och de totala flödena ut ur respektive steg, men då går det att tillämpa den så kallade θ -metoden⁴⁰ vilket är den metod som har använts i detta arbete. I denna metod löses ekvationssystemet blockvis (jämnvikter för sig, flöden för sig o.s.v.) iterativt där lösningen för ett block används som startgissning för nästa block tills konvergens har uppnåtts. Den nyfikne läsaren hänvisas till litteraturen för en närmare beskrivning av metoden.

4.2. Resultat

I den här studien har två olika destillationsmetoder undersökts. Dels har beräkningar gjorts för destillation av obehandlat använt kärnbränsle, dels destillation av använt kärnbränsle som fluoridiserats. En parameterstudie har genomförts för att ta reda på vid vilka betingelser separationen är mest effektiv, och om den under dessa betingelser är tillräckligt effektiv för att vara användbar. För att bedöma hur användbara metoderna är har flera fall studerats, där upparbetningen har olika ändamål i varje fall. Först och främst har undersökts huruvida det rimligen går att använda destillation för framställning av plutonium för användning som vapenmaterial. Därtill har även undersökts om metoden är lämplig dels för tillverkning av MOX-bränsle, dels för separation av fissionsprodukter för att minska avfallsvolymen vid deponering av använt kärnbränsle. Beroende på vad slutprodukten har för ändamål behöver olika nuklider separeras från varandra och det kan ställas olika krav på hur ren slutprodukten måste vara⁴¹, och detta påverkar hur destillationskolonnen konfigureras.

De parametrar som varierats är temperatur, antal steg i kolonnen, matarströmmens position i kolonnen, återflödesförhållandet i destillationsstegen samt i viss mån även nuklid-sammansättningen i materialet. Parameterstudien har genomförts för att undersöka effektiviteten hos:

1. Separation av plutonium från övriga nuklider, inklusive uran, det vill säga hur användbar metoden är för att framställa vapenplutonium.
2. Separation av uran och plutonium dels från varandra, dels från fissionsprodukterna, det vill säga hur användbar metoden är för att framställa MOX-bränsle.

³⁹ Förutom molfraktionerna för gasen och vätskan för varje ämne i varje steg och flödena i varje steg tillkommer temperaturen i varje steg, arbetet i kondensorn och återkokaren samt trycket i systemet. Alternativt kan temperaturen hållas konstant och trycket varieras genom kolonnen.

⁴⁰ W.N. Lyster *et al.*, *Pet. Refiner* **38:6 (1959) 221 samt 38:7 (1959) 151.**

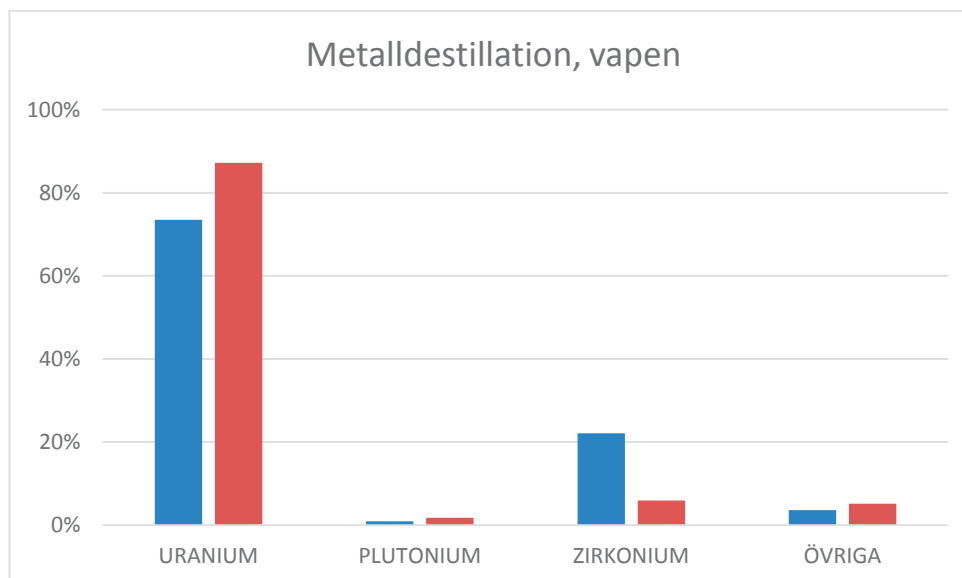
⁴¹ Exakt hur mycket föroreningar av olika typer som t.ex. får finnas i vapenplutonium för att det ska kunna användas i olika typer av kärnladdningar beror på detaljer i designen vilket inte är publikt känt. På samma sätt varierar kraven på olika former av bränsle. Resonemanget i den följande texten bygger på mer allmänna antaganden och är mer kvalitativt än kvantitativt.

3. Separation av fissionsprodukter från övriga nuklider, det vill säga hur användbar metoden är för att minska volymen vid deponering av använt kärnbränsle.

För beräkningarna har en bränslesammansättning som är representativ för lättvattenreaktorer som använts för elproduktion använts; tryckvattenreaktorbränsle med en utbränning på 50 GWd/ton fem år efter att bränslet tagits ur härden. Använt kärnbränsle består av tusentals olika nuklider, varav de allra flesta förekommer i halter lägre än ett milligram per ton. Endast ett fåtal förekommer i högre halter än ett gram per ton. För beräkningarna har de tio viktigaste nukliderna använts.

Matarströmmens position i kolonnen påverkar separationen av dels plutonium och uran, dels aktinider och övriga nuklider och skiljer sig från övriga parametrar såtillvida att den bör befinna sig långt ut mot vardera extrempunkten för respektive fall. För övriga parametrar ligger de optimala värdena nära varandra för de olika konfigurationerna.

Vid tillverkning av vapenplutonium eftersträvas separation av plutonium från uran, och matarströmmen placeras nära avfallsströmmen så att kolonnen har ett stort antal så kallade anrikningssteg. Vid en sådan konfiguration blir emellertid separationen från övriga nuklider sämre. En stor andel av de ursprungliga fissions- och aktiveringsprodukterna följer med i produktströmmen. Mycket lite, under en procent, av plutoniumet följer däremot med avfallsströmmen. Ökningen av förhållandet plutonium till uran är emellertid mycket lågt, varför processen skulle behöva upprepas ett mycket stort antal gånger innan acceptabel renhet uppnås. Även bortsett från detta är separationen av övriga nuklider, främst zirkonium från bränsleinkapslingen, så låg att en annan metod skulle behövas för att komplettera destillationen. Fördelningen av olika typer av nuklider före och efter destillation åskådliggörs i Figur 17. Att mängden övriga nuklider till synes ökar beror på att flödet i produktströmmen är lägre än i matarströmmen eftersom en del av materialet leds ut via avfallsströmmen. Det totala massflödet av övriga nuklider är betydligt lägre än i matarflödet medan andelen är något högre. Inkluderat zirkonium är däremot andelen övriga nuklider betydligt lägre efter destillation.



Figur 17: Fördelning av olika typer av nuklider före (blå) och efter (röd) destillation.

En parameter som studerats är hur förhållandet mellan plutonium och uran skiljer sig mellan produkt- och matarström:

$$\frac{Pu_{ut}}{U_{ut}} / \frac{Pu_{in}}{U_{in}}.$$

Kvoten kan öka med uppemot 70 %. I praktiken innebär detta dock att andelen av dessa aktinider som utgörs plutonium ökar från 1,0-1,5 % till cirka 2 %, medan det krävs plutoniumhalter över 90 % vid framställning av kärnvapenmaterial.

Vid civil upparbetning placeras matarströmmen istället högt upp i kolonnen, nära produktströmmen, för att innehålla så många så kallade utarmningssteg som möjligt. Vid upparbetning för tillverkning av MOX-bränsle är inte förhållandet mellan plutonium och uran lika intressant. Det som är intressant är andelen fissila, och i viss mån fertila, nuklider i produktströmmen. För bränsle med hög utbränningsgrad efter användning för elproduktion med en andel fissila nuklider på 1,0-1,5 viktprocent kan andelen närapå dubblas vid en destillation.

Även om detta är en avsevärd ökning är det inte tillräckligt för användning som MOX-bränsle. Ytterligare en eller ett par destillationer skulle vara nödvändiga. Detsamma gäller destillation för att separera fissionsprodukterna från övriga nuklider t ex för att reducera avfallsvolymen för deponering.

För att underlätta destillationen kan kärnbränslet fluorineras. Ytterligare en process tillförs, men metoden ger flera fördelar. För fluorineringen av bränslet finns flera olika processer, exempelvis fluorinering i saltsmälta eller med fluorgas. Reaktiviteten hos de olika ämnena i kärnbränslet varierar och har dessutom olika reaktivitet beroende på vilken fluorineringsprocess som används. Därigenom kan en viss separation genomföras innan själva destillationssteget. Fluorinering med vätefluoridgas förefaller vara den mest gynnsamma metoden eftersom både uran och plutonium har hög reaktivitet, och i synnerhet ädelmetaller har låg reaktivitet.

Den huvudsakliga fördelen med fluordestillation jämfört med metalldestillation är emellertid att där metallerna har kokpunkter på tusentals grader, så kokar fluoriderna vid temperaturer strax under 100 °C. Detta medför helt andra krav på destillationsanläggningen när det gäller utformning och materialval. Vad gäller själva separationsprocessen finns ytterligare en fördel. Väldigt få av de metallfluorider som bildas har kokpunkter nära uran- och plutoniumhexafluorid vilket gör att fler ämnen separeras från aktinidströmmen. Att beräkna destillationen för samtliga metallfluorider kräver orimligt omfattande beräkningar, därför har i denna studie ett antal ämnen vars kokpunkter ligger nära uran- och plutoniumfluoriderna valts ut.

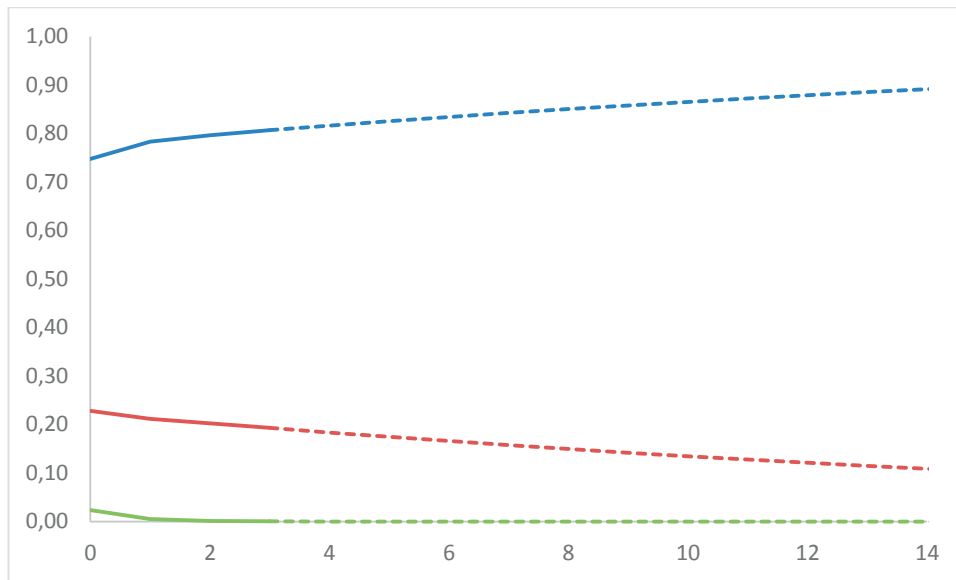
Även vid fluoriddestillation ger destillation genom en enstaka kolonn alldeles för liten separation för att produkten skall vara användbar. Separationen är emellertid betydligt större än vid metallseparation. Till skillnad från metallseparation krävs uppskattningsvis några tiotal destillationer, istället för några hundra.

Det är beräkningstekniskt svårt att avgöra det exakta innehållet i materialströmmarna i de sista destillationerna, och huruvida de nuklider som fortfarande finns kvar förhindrar an-

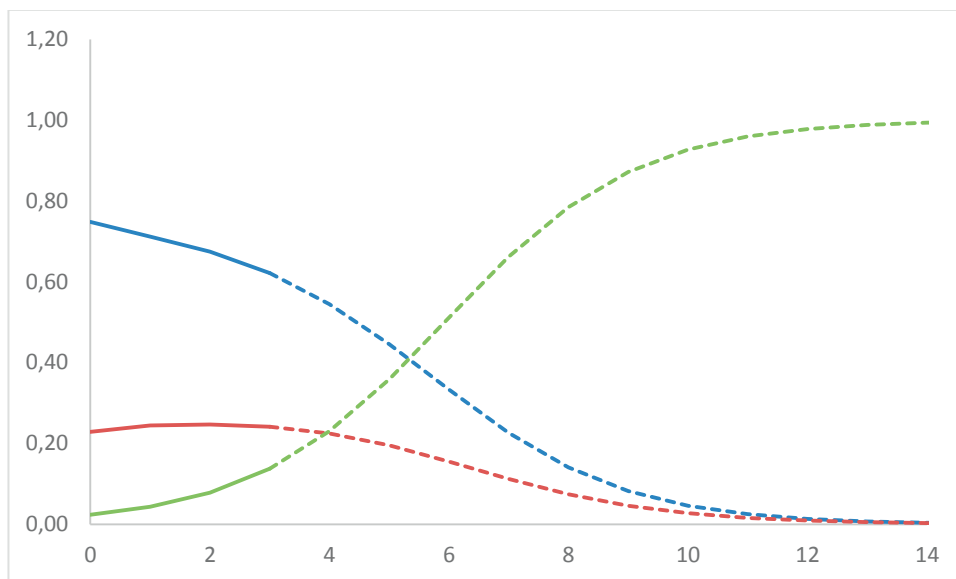
vändning av materialet vid tillverkning av kärnvapen. Ett inneboende problem med fluoriddestillation är att det är mycket svårt att separera plutonium från både uran och fissionsprodukter. Destillationsprocessen kan konfigureras för att optimera utvinningen av plutonium. Vid sådana konfigurationer separeras plutonium från uran, men andelen fissionsprodukter ökar i produktströmmen. Processen kan å andra sidan konfigureras för att separera fissionsprodukterna från plutonium. Då kommer istället uranhalten i produktströmmen öka snabbare än plutoniumhalten. Ingen av dessa metoder förefaller lämplig för framställning av vapenplutonium. Oavsett om kaskaden konfigureras för att maximera separation från uran eller fissionsprodukter kommer andra ämnen än plutonium anrikas snabbare än plutonium i produktströmmen. Detta innebär att bränslet alternerande måste destilleras i olika kolonner, eller att destillation måste kombineras med andra separationsmetoder. Upprepad destillation kan troligtvis användas för att uppnå höga plutoniumhalter. Huruvida detta är en användbar metod för framställning av vapenplutonium beror på hur många steg som är rimliga och hur de kvarvarande fissionsprodukterna påverkar materialet.

I figur 18 visas produktströmmens sammansättning vid destillation konfigurerad för att avskilja fissionsprodukterna från aktiniderna. Då fissionsprodukterna avskiljs ökar uranhalten med plutoniumhalten minskar. I figur 19 visas motsvarande vid konfiguration för avskiljning av uran. Som synes ökar andelen fissionsprodukter snabbare än andelen plutonium i produktströmmen. Olika beräkningsmodeller har använts för de heldragna respektive streckade linjerna, där de heldragna bygger på en mer detaljerad beräkningsmodell. Detta eftersom den mer detaljerade modellen endast kan tillämpas inom ett visst koncentrationsintervall.

Hur många destillationer som krävs beror helt och hållet på vad som anses vara acceptabelt vapenmaterial avseende plutoniumhalt och föroreningar i form av fissionsprodukter. Metoden förefaller inte vara lämplig för att separera plutonium både från fissionsprodukter och övriga aktinider. Däremot kan destillation användas för att någorlunda effektivt avskilja fissionsprodukter från aktinider, vilket kan ha tillämpning för exempelvis förvar av använt kärnbränsle, men även andra områden där en aktinidblandning med hög uranhalt är användbar. I kombination med andra metoder för att antingen separera uran eller fissionsprodukter från plutonium skulle destillation kunna användas för att utvinna rent plutonium. Även om metoden är opraktisk och mycket omständlig kan det utifrån denna studies resultat därmed inte helt uteslutas att metoden kan användas för att producera vapenmaterial. Fluorinering och destillation som upparbetningsmetod har många nackdelar jämfört med etablerade metoder, såsom exempelvis PUREX, och har praktiskt taget inga fördelar. Eftersom destillation är jämförelsevis ineffektivt och rimligen bör användas i kombination med andra upparbetningsmetoder förefaller metoden olämplig även om den skulle vara teoretiskt möjlig att använda.



Figur 18: Massfraktion uran (blå), plutonium (röd) och fissionsprodukter (grön) som funktion av antal destillationer vid avskiljning av fissionsprodukter.



Figur 19: Massfraktion uran (blå), plutonium (röd) och fissionsprodukter (grön) som funktion av antal destillationer vid avskiljning av uran.

5. Icke-spridning och exportkontroll

Upparbetning är som nämnts i inledningen en nyckelprocess för alla kärnvapenprogram som använder plutonium i någon form. Så som kärnbränslecyklerna och reaktorflottorna ser ut i de flesta länder så saknas det behov för upparbetning, även om det så klart kan finnas legitima anledningar till att upparbeta använt kärnbränsle även i civila sammanhang. Ett argument för upparbetning är att det ger en möjlighet att skilja de kortlivade men högaktiva fissionsprodukterna från de oftast betydligt mer långlivade men mer lågaktiva transuranerna så att ett slutförvar av de två fraktionerna kan optimeras var för sig. En typisk lagringstid för fissionsprodukter kan vara 1000 år och huvuddelen av aktiviteten, och därmed också värmeproduktionen, klingar av de första hundra åren, en tid som är rimligt överblickbar i ett mänskligt perspektiv. Transuraner har halveringstider som förutsätter lagringstider som är 100 till 1000 gånger så långa vilket kombinerat med transuranernas kemiska och radiologiska toxicitet ställer helt andra krav på stabilitet och inbyggd säkerhet.

För att en separation av de olika fraktionerna inte ska öka spridningsrisken är det i det närmaste ett krav att det inte någonstans i processen förekommer plutonium i ren form, skilt från de övriga ämnena. Detsamma gäller för upparbetning för återanvändning av de fissila nuklider som förekommer i det använda bränslet, men beroende på vilken reaktortyp som det återvunna bränslet ska användas i ställs det betydligt högre krav på den exakta sammansättningen efter upparbetning än vid separering innan slutdeponering. För att kunna reglera reaktiviteten i bränslet måste andelen uran och plutonium anpassas, och hur den fördelningen ska se ut beror i sin tur på fördelningen mellan de olika isotoperna både för uran och plutonium var för sig. Denna beror i sin tur på både det ursprungliga bränslets konfiguration och utbränningen. I en mer generisk upparbetningsanläggning som ska kunna hantera använt bränsle från flera olika reaktorer är det med största sannolikhet oundvikligt att uran och plutonium måste separeras var för sig, utan inblandning från andra transuraner som americium och neptunium.

Upparbetningsmetodens spridningssäkerhet bygger sålunda till stor del på om den kan användas för att renframställa plutonium, vilket är en annan frågeställning jämfört med om den faktiskt gör det i varje enskilt fall eller inte. I fallet elektrokemisk upparbetning så är litteraturen tämligen överens om att metoden går att använda för att framställa plutonium i ren form, men att den kan konfigureras så att plutonium inte separeras, till exempel genom att den andra, flytande katoden helt undviks, eller genom att potentialerna över de olika katoderna anpassas så att plutonium fälls ut tillsammans med andra ämnen som omöjliggör dess användning i kärnvapen. Dock är det åtminstone i teorin relativt enkelt att ändra en på pappret spridningssäker elektrokemisk anläggning på ett sådant sätt att den kan användas för produktion av kärnvapenmaterial, framför allt om det bara rör sig om en ändring av de potentialer som används. Metoden i sig kan inte anses vara spridningssäker per konstruktion.

De beräkningar som genomförts pekar på att elektrokemisk upparbetning av använt kärnbränsle skulle kunna användas för framställning av plutonium för användning i kärnvapen, i alla fall i kombination med ett eller flera stegs efterarbetning. Den springande punkten är om de två katodpotentialerna kan väljas med en sådan precision att de genom hela processen ger en tillräckligt ren plutoniumprodukt i den flytande kadmiumkatoden och vilken renhet som faktiskt behövs. Figur 13 pekar på en tydlig trend där renheten för plutoniumet ökar med ökad (mer negativ) katodspänning över den flytande katoden så länge som potentialen över den fasta katoden hålls vid ett lämpligt värde, men i denna

studie har inte lägre potentialer än de som visas i figuren studerats, så det framgår inte om det finns en potential där trenden vänder, var det i så fall sker och vilken renhet den potentialen ger. Det bör också noteras att det bränsle som använts i denna studie har en relativt hög utbränningsgrad, 50 GWd/ton, betydligt högre än de utbränningsgrader som är möjliga för att behålla andelen ^{240}Pu tillräckligt låg⁴², ca 1-5 GWd/ton. En betydligt lägre utbränningsgrad innebär också en betydligt lägre relativ andel americium och övriga tyngre aktinider i förhållande till mängden plutonium, vilket ger en renare plutoniumprodukt. Tillväxttakten för neptunium är lite mer komplicerad, med tillväxt- och sönderfallsrater av ungefär samma storlek, men i princip ger en lägre utbränningsgrad även en mindre relativ andel neptunium, även om effekten inte är lika uttalad som för de tyngre aktiniderna.

De destillationsbaserade metoderna, så som de skulle kunna användas för den huvudsakliga upparbetningen och inte som ett försteg till andra upparbeitungsmetoder, verkar vara mindre lämpliga för produktion av plutonium i ren form då selektiviteten är för låg, baserat på de beräkningar som genomförts. Man skulle kunna tänka sig en serie av kolonner anpassade för att separera olika fraktioner där det så att säga går att skala bort både mer och mindre volatila ämnen från respektive håll så att enbart plutonium till slut återstår, men överslagsräkningar tyder på att det totala antalet kolonner och antalet steg i dessa skulle bli ohanterligt stort om plutonium av vapenrenhet ska kunna framställas på detta sätt.

I exportkontrollfrågan befinner sig den elektrokemiska upparbeitungsmetoden i limbo. De har i ett antal olika forskningsprojekt runt om i världen visats sig vara användbara för uppabetning av använt kärnbränsle och kapabla att renframställa plutonium, men de texter som ligger till grund för exportkontrollen av kärnteknisk utrustning i de flesta länder i världen, INFCIRC/254 Part 1 rev. 13, är starkt fokuserad på PUREX och de komponenter och undersystem som nämns explicit hör till vätskebaserade upparbeitungsmetoder. Rådande exportkontrollistor är emellertid ursprungligen framtagna som exempel på vad som kan räknas som kontrollerade produkter och teknologier, och det finns möjlighet att även kontrollera utrustning för elektrokemisk uppabetning om texterna används på detta sätt. Om de däremot tolkas bokstavligen är det svårare att finna täckning för att kunna kontrollera elektrokemisk uppabetning.

Den svenska exportlagstiftningen baseras på den europeiska förordningen⁴³ där de noter som mer tydligt pekar ut PUREX som den kontrollerade upparbeitungsmetoden i INFCIRC/254 saknas, men stycket som behandlar uppabetning, 0B006, beskriver ändå i huvudsak utrustning som är kopplad till vätskebaserad uppabetning. Det saknas en direkt kontroll av den centrala enheten, den elektrokemiska cellen, och av den reningsutrustningen som behövs för att dels renframställa plutoniumfraktionen från den flytande katten, dels för att regenerera saltet i cellen. Det skulle sålunda troligen gå att kräva licens vid exporten av en komplett elektrokemisk upparbeitungsanläggning, men inte de enskilda komponenterna, men detta måste givetvis prövas från fall till fall.

För den mer praktiska exportkontrollen ställer den nya teknologin också till med vissa svårigheter då liknande utrustning används inom många olika grenar av metallurgin. Med få men centrala undantag liknar dessutom utrustningen för uppabetning av använt bränsle till exempel den för rening av koppar. Dock måste all utrustning som ska hantera använt bränsle kunna fjärrmanövreras och alla former av sensorer och elektronisk utrust-

⁴² Om andelen av de tyngre plutoniumisotoperna, ^{240}Pu och tyngre, blir för hög riskerar kärnladdningarna att ge ett lågt och/eller oförutsägbart utbyte på grund av den ökande antalet spontana fissioner som de tyngre isotoperna orsakar.

⁴³ EU-förordningen 428/2009 med uppdateringar.

ning måste antingen göras okänsliga för joniserande strålning eller flyttas bort från den elektrokemiska cellen och alla andra områden där det extremt aktiva bränslet riskerar att skada utrustningen. Till exempel kan de rack eller skåp som innehåller den elektronik som styr och övervakar processen inte stå i samma hall som uppberedningsutrustningen, som måste hållas isolerad i en så kallad *hot-cell*. Detsamma gäller för motorer till omrörare och kranar för hantering av elektroderna. I en civil, icke-nukleär anläggning finns inte dessa krav, utan en köpare letar troligen efter billigare lösningar som kan repareras eller servas av personal på plats om det skulle behövas vilket gör utrustning som klarar de ovan nämnda specifikationerna överflödigt för sådan verksamhet. Det kan givetvis inte uteslutas att en civil användare av andra skäl väljer den dyrare utrustningen, till exempel om den ska användas i en synnerligen korrosiv eller toxisk miljö. Förekomsten av *hot-cells* är dock en tydlig indikator på att någon form av kärnteknisk verksamhet förekommer där använt kärnbränsle (eller någon annan kraftigt aktiverad produkt) hanteras.



2018:12

Strålsäkerhetsmyndigheten har ett samlat ansvar för att samhället är strålsäkert. Vi arbetar för att uppnå strålsäkerhet inom en rad områden: kärnkraft, sjukvård samt kommersiella produkter och tjänster. Dessutom arbetar vi med skydd mot naturlig strålning och för att höja strålsäkerheten internationellt.

Myndigheten verkar pådrivande och förebyggande för att skydda människor och miljö från oönskade effekter av strålning, nu och i framtiden. Vi ger ut föreskrifter och kontrollerar genom tillsyn att de efterlevs, vi stödjer forskning, utbildar, informerar och ger råd. Verksamheter med strålning kräver i många fall tillstånd från myndigheten. Vi har krisberedskap dygnet runt för att kunna begränsa effekterna av olyckor med strålning och av avsiktlig spridning av radioaktiva ämnen. Vi deltar i internationella samarbeten för att öka strålsäkerheten och finansierar projekt som syftar till att höja strålsäkerheten i vissa östeuropeiska länder.

Strålsäkerhetsmyndigheten sorterar under Miljödepartementet. Hos oss arbetar drygt 300 personer med kompetens inom teknik, naturvetenskap, beteendevetenskap, juridik, ekonomi och kommunikation. Myndigheten är certifierad inom kvalitet, miljö och arbetsmiljö.

Strålsäkerhetsmyndigheten
Swedish Radiation Safety Authority

SE-17116 Stockholm
Solna strandväg 96

Tel: +46 8 799 40 00
Fax: +46 8 799 40 10

E-mail: registrator@ssm.se
Web: stralsakerhetsmyndigheten.se