

COMBUSTIBLE

PROYECTO EUROPEO PARA LA CARACTERIZACIÓN ISOTÓPICA DE COMBUSTIBLE IRRADIADO BWR (EURAD)

MARTA BERRIOS TORRES

ENUSA INDUSTRIAS AVANZADAS S.A. SME

MIRIAM VÁZQUEZ ANTOLÍN

ENUSA INDUSTRIAS AVANZADAS S.A. SME

CARLOS CASADO SÁNCHEZ

ENUSA INDUSTRIAS AVANZADAS S.A. SME

ANA MUÑOZ SICILIA

ENRESA

El proyecto EURAD (Comisión Europea, 2019) tiene como objeto ayudar a los estados miembros a obtener el *know-how* necesario para implementar sus programas de gestión de residuos radiactivos. ENRESA participa en el proyecto EURAD y, dentro del paquete de trabajo WP-8 SFC, ha encargado a ENUSA la realización de distintos trabajos analíticos para la caracterización isotópica del combustible irradiado BWR con quemados superiores a 40 MWd/kgU. Los resultados de los cálculos se utilizarán para verificar la calidad de los resultados experimentales obtenidos por Studsvik mediante diferentes técnicas experimentales, y para validar las técnicas de cálculo computacional del término fuente. En esta ponencia se presenta la primera fase del proyecto, que consiste en la modelización, con las herramientas más avanzadas de SCALE 6.2 (TRITON y Polaris), de las medidas isotópicas realizadas en 2008, para establecer la técnica de cálculo más adecuada para la simulación de las muestras que se están ensayando actualmente en Studsvik mediante ablación láser.

INTRODUCCIÓN

El proyecto EURAD (Comisión Europea, 2019) tiene como objeto ayudar a los estados miembros a obtener el *know-how* necesario para implementar sus programas de gestión de residuos radiactivos. En él se integran tanto organismos de investigación como las empresas encargadas de la gestión de residuos radiactivos. ENRESA participa en la ejecución de parte de los trabajos del EURAD y, dentro del paquete de trabajo WP-8 SFC, ha encargado a ENUSA la realización de distintos trabajos analíticos para la caracterización isotópica del combustible irradiado BWR.

La composición del combustible irradiado tiene impacto directo en los análisis de criticidad con crédito al quemado y en la determinación del término fuente del combustible (tanto radiológico como térmico). Sin embargo, existen pocas medidas experimentales para la validación de códigos y librerías para el cálculo del inventario isotópico de combustible tipo BWR, en particular para quemados superiores

a 40 MWd/kgU. El objetivo del WP-8 SFC, en colaboración con otros grupos de trabajo del proyecto EURAD, es poner a disposición de los miembros del proyecto el mayor número posible de medidas para la validación de las herramientas de cálculo y coordinar el desarrollo de los métodos de aplicación, especialmente para el cálculo del calor residual, que es un parámetro crítico para el diseño de los sistemas de almacenamientos a largo plazo.

La participación de ENUSA consiste en (1) la coordinación técnica de los ensayos que se están realizando en el laboratorio de Studsvik para medir, empleando la técnica de ablación láser, el inventario o composición isotópica de varias muestras de una barra de un elemento combustible tipo GE14 fabricado por ENUSA e irradiado en Forsmark 2 (entre 2005 y 2011) y (2) la simulación analítica de diferentes muestras con el doble propósito de analizar los resultados experimentales y validar las técnicas de cálculo computacional empleadas.

METODOLOGÍA

El objetivo de la fase 1 del proyecto es definir la metodología de cálculo para la simulación analítica de las muestras que están siendo ensayadas en Studsvik mediante la técnica de ablación láser. Para ello se utilizan como referencia las muestras de combustible BWR analizadas en el año 2008 en el marco de un proyecto de ENRESA en colaboración con el CSN y ENUSA.

Estas medidas experimentales se obtuvieron en el laboratorio de Studsvik mediante análisis radioquímico y corresponden a varias muestras de una barra de un elemento combustible tipo GE14 fabricado por ENUSA e irradiado en Forsmark 3 con quemados superiores a los 40 MWd/kgU. Estas muestras fueron modeladas y analizadas por ENUSA en el año 2012 con las técnicas de cálculo computacional disponibles en ese momento, siendo el inventario isotópico calculado razonablemente próximo al obtenido experimentalmente (C. Casado, 2013).

Para el proyecto actual, los cálculos se realizan con SCALE, en su versión 6.2.4 (ORNL/TM-2005/39, 2020) que ofrece dos módulos dedicados al cálculo de inventarios isotópicos (TRITON y Polaris), así como una nueva librería de secciones eficaces de 252 grupos de energía a partir de la ENDF/B-VII.1.

Con el objeto de determinar qué técnica de cálculo resulta más adecuada de cara a determinar los inventarios isotópicos de este tipo de muestras, se han comparado los resultados obtenidos tanto con TRITON como con Polaris con los experimentales en dos muestras representativas de las heterogeneidades axiales del combustible BWR: ENUSA-3/7 (zona DOM) y ENUSA-5 (zona VAN), ver Figuras 2 y 3.

Modelo para los cálculos con TRITON

TRITON es un módulo de control que permite, al emplear la secuencia *t-depl*, la realización de cálculos de quemado coordinando de forma iterativa llamadas a diversos módulos de SCALE: al de procesamiento de secciones eficaces XSPROC, al código de ordenadas discretas en 2D NEWT, y al código de quemado ORIGEN para el cálculo de concentraciones isotópicas, término fuente radiológico y térmico.

Las mejoras incluidas en la versión de SCALE 6.2 respecto a la anterior se centran en el procesamiento de las secciones eficaces con el módulo XSPROC y las mejoras implementadas en el módulo de transporte NEWT.

El modelo TRITON para las muestras DOM y VAN seleccionadas, incluye una simulación muy detallada del historial de irradiación para lo cual se actualiza tanto la potencia como la fracción de huecos (VF) en cada paso de quemado de los 5 ciclos de irradiación (Figura 1). También se incluye en la simulación el tiempo de decaimiento correspondiente a la parada entre ciclos de irradiación.

El módulo XSPROC tiene en cuenta las heterogeneidades presentes en las celdas de combustible para el procesamiento de las secciones eficaces a través de los factores Dancoff. Para tener en cuenta el factor Dancoff de cada una de las barras de combustible sería necesario definir una mezcla diferente para cada una de ellas, lo que haría crecer el tiempo de computación de TRITON muy significativamente. Por ello, en la modelización se agrupan las barras

con factores Dancoff similares y se calcula un único factor Dancoff para cada grupo en función de la fracción de huecos del moderador. Para cada tipo de celda (DOM y VAN) se definen 5 regiones diferentes en función de la posición de la barra y, en consecuencia 5 correlaciones, que se emplean para calcular el factor Dancoff utilizando el valor medio de la VF de cada ciclo de irradiación.

Se definen mezclas de combustibles distintas para cada tipo de enriquecimiento y tipo de región. Adicionalmente, para tener en cuenta el gradiente radial en la concentración de los

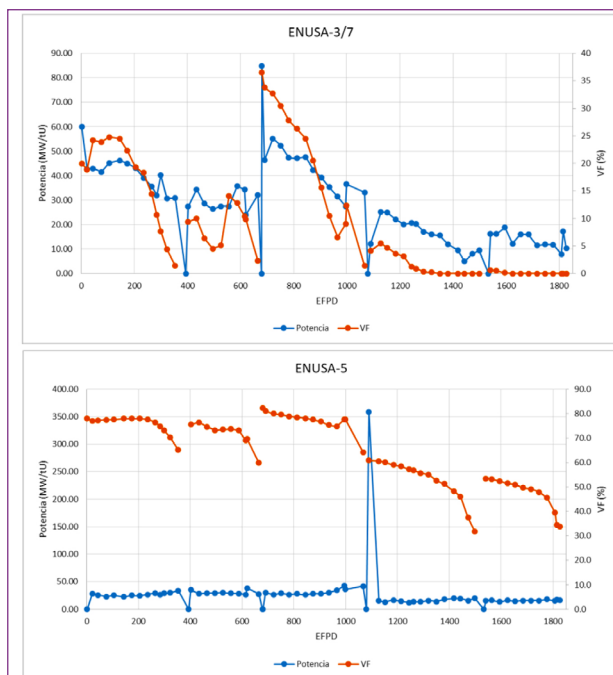


Figura 1. Potencia y fracción de huecos en los 5 ciclos de irradiación de la muestra ENUSA-3/7 y ENUSA-5.

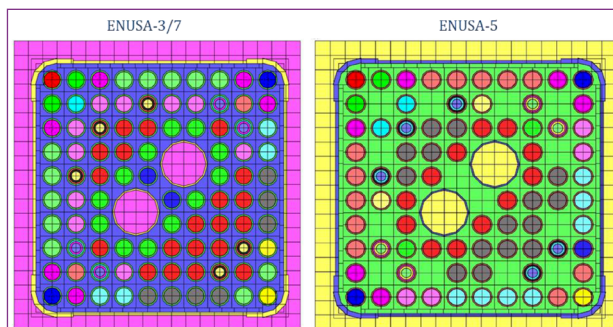


Figura 2. Modelo en TRITON para la zona DOM (ENUSA-3/7) y la zona VAN (ENUSA-5).

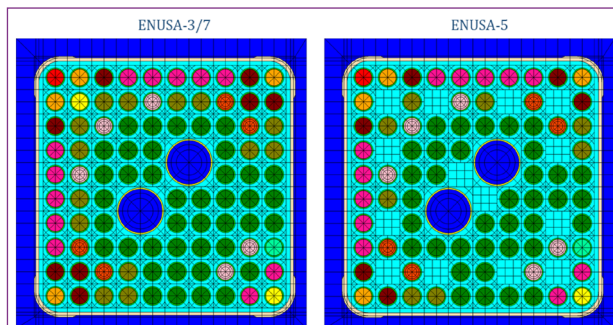


Figura 3. Modelo en Polaris para la zona DOM (ENUSA-3/7) y la zona VAN (ENUSA-5).

isótopos de gadolinio en las barras que lo contienen, dichas barras se han dividido en tres anillos concéntricos e iguales en área. De este modo, para la zona DOM se requieren 21 mezclas y 20 para la VAN sobre las que se realizará el cálculo de evolución isotópica (Figura 2).

El modelo descrito requiere de un volumen de datos de entrada muy elevado, en torno a 1250 líneas de fichero input.

Modelo para los cálculos con Polaris

Polaris es un nuevo módulo incluido en SCALE 6.2 para los cálculos de celda 2D en LWR. Permite la realización de cálculos de inventario isotópico, entre otros, usando el método ESSM (*Embedded Self Shielding Method*) para el procesamiento de secciones eficaces que emplea un nuevo código de transporte basado en el método MOC (*Method of Characteristics*) y está acoplado con ORIGEN para el cálculo de quemado.

El modelo de Polaris es equivalente al de TRITON en cuanto a las librerías de secciones eficaces, la reproducción en detalle del historial de irradiación de los 5 ciclos (Figura 1) y el uso de tres anillos en las barras de gadolinio.

El método empleado por Polaris para el procesamiento de las secciones eficaces no requiere de la definición de la celda unidad y por tanto no es necesario seguir ningún proceso equivalente al anteriormente descrito para la determinación de los factores Dancoff.

Para la definición del material de las barras solo es necesario tener en cuenta su composición y se mantiene la opción por defecto de calcular la evolución isotópica con ORIGEN *pin-by-pin*, es decir 110 regiones en el caso de la celda DOM y 96 en la VAN (Figura 3).

Como se observa en la Figura 3 el modelo geométrico empleado por Polaris representa las celdas de GE14 con toda exactitud pero, a diferencia de TRITON, para ello solo se necesitan unas 150 líneas de input gracias al uso de modelos geométricos predefinidos.

RESULTADOS

En la Figura 4 se muestra una comparación de los resultados de los cálculos respecto a los resultados experimentales tanto para TRITON como para Polaris para los prin-

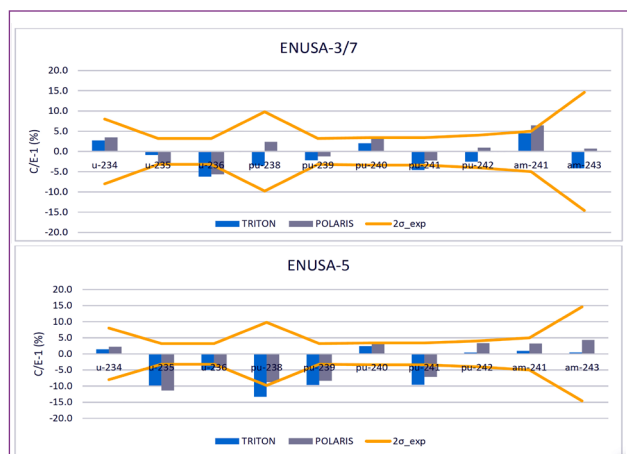


Figura 4. Comparación entre los valores calculados (TRITON y Polaris) y los experimentales para la zona DOM (ENUSA-3/7) y la zona VAN (ENUSA-5). Actínidos más relevantes.

cipales actínidos. En los dos casos, las diferencias frente a las medidas son del orden de la incertidumbre experimental para la muestra ENUSA-3/7 (DOM), sin embargo resultan ser mayores para la muestra ENUSA-5 (VAN), en particular para el U-235, Pu-239 y Pu-241.

En la Figura 5 se muestra una comparación de los resultados de los cálculos con TRITON y Polaris respecto a los resultados experimentales para los isótopos relevantes para los cálculos de término fuente.

También aquí se observa que los resultados de los dos códigos son similares y que para alguno de los isótopos de interés las diferencias con los valores medidos son mayores que la incertidumbre de medida. El impacto de las diferencias observadas en los cálculos de término fuente se estudia en los apartados siguientes comparando el término fuente neutrónico y gamma y el calor residual, utilizando el inventario isotópico calculado con TRITON y Polaris frente al obtenido con los datos experimentales.

Término fuente neutrónico

El principal emisor neutrónico en el combustible gastado con un tiempo de enfriamiento de entre un año y varias decenas de años es el Cm-244, cuya vida media es de 18,1 años. En el momento de la descarga, el Cm-242 también es un importante emisor neutrónico ya que tiene una vida media de 162 días. Tras varias decenas de años de enfriamiento, otros actínidos con vidas medias de cientos y miles de años, como Cm-146, Am-241 y algunos isótopos de Pu, cobran relevancia, convirtiéndose en los principales aportes más allá de los cien años.

En consecuencia, el impacto en la fuente neutrónica de las diferencias será similar al observado en el inventario del Cm-244. La concentración de Cm-244 calculada es, aproximadamente, un 65 % más alta en el caso del modelo TRITON y alrededor de un 85 % más alto con la simulación de Polaris (Figura 5).

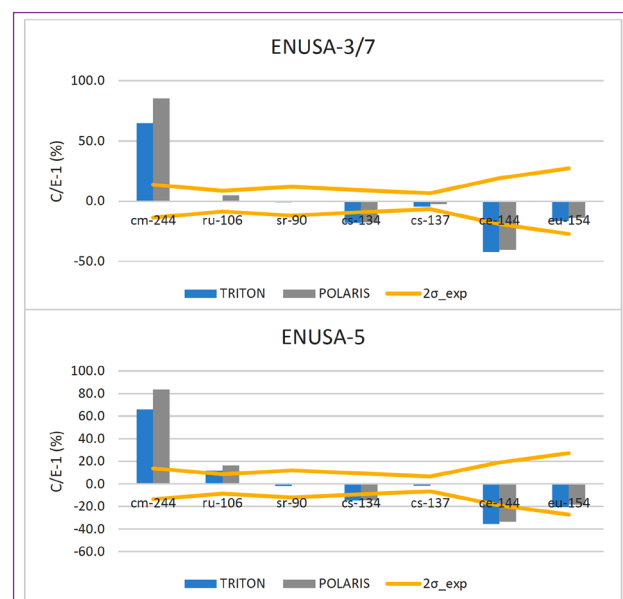


Figura 5. Comparación entre los valores calculados (TRITON y Polaris) y los experimentales para la zona DOM (ENUSA-3/7) y la zona VAN (ENUSA-5). Isótopos relevantes en el término fuente neutrónico, gamma y calor residual.

	ENUSA-3/7			ENUSA-5		
	Experimental	TRITON	Polaris	Experimental	TRITON	Polaris
Calor residual (W)	2.204E+03	2.167E+03	2.140E+03	2.005E+03	2.013E+03	1.986E+03
Fuente gamma (g/s)	1.408E+16	1.322E+16	1.292E+16	1.276E+16	1.243E+16	1.216E+16
Calor residual (C/E-1)		-2%	-3%		0%	-1%
Fuente gamma (C/E-1)		-6%	-8%		-3%	-5%

Tabla 1. Calor residual y término fuente gamma.

Término fuente gamma y calor residual

Los principales emisores de rayos gamma también son los principales contribuyentes al calor residual:

- Cm-244 es un emisor gamma de alta energía (4-20 MeV) pero su intensidad y contribución a la fuente gamma total es baja, por lo que no se tiene en cuenta en el análisis.
- Rh-106, Pr-144, Y-90 / Sr-90, Eu-154, Cs-134 y Cs-137 / Ba-137m son emisores de radiaciones gamma de baja y media energía.

De entre estos isótopos se disponen de medidas experimentales directas del Cs-134, Cs-137, Eu-154 y del Sr-90, e indirectamente del Rh-106 (el Ru-106 es el padre del Rh-106) y del Pr-144 (el Ce-144 es padre del Pr-144).

El efecto de las diferencias isotópicas en la emisión gamma y el calor de desintegración se analizan con un cálculo con ORIGEN, utilizando el inventario experimental y los calculados de ambas muestras. Los isótopos considerados representan más del 90 % del calor residual del combustible gastado obtenido. La Tabla 1 muestra los resultados obtenidos para el calor residual y el término fuente gamma obtenidos con el inventario calculado con TRITON, Polaris y el experimental para ambas muestras. El calor residual obtenido con los datos calculados (TRITON y Polaris) es entre un 0 y un 3 % menor que el valor calculado con el inventario isotópico experimental. En el caso del término fuente, las diferencias entre los valores procedentes de los inventarios calculados son entre 3 y 8 % menores que los calculados a partir de los experimentales.

CONCLUSIONES

Para determinar el comportamiento en la predicción del inventario isotópico de muestras de combustible BWR con quemados superiores a 40 MWd/kgU con los códigos TRITON y Polaris (ambos incluidos en el paquete SCALE 6.2) se comparan los resultados obtenidos con modelos detallados frente a los resultados experimentales.

Los resultados experimentales empleados como referencia para la evaluación se obtuvieron por Studsvik mediante ensayos radioquímicos de muestras de una barra de un elemento combustible tipo GE14 fabricado por ENUSA e irradiado en Forsmark 3, de las cuales ya se realizó un análisis en un proyecto anterior. Las muestras simuladas se encuentran ubicadas en dos zonas que representan las heterogeneidades axiales de los combustibles BWR, la muestra ENUSA-3/7 ubicada en la zona DOM y la muestra ENUSA-5 en la zona VAN.

Los modelos desarrollados para TRITON y Polaris representan detalladamente el historial de irradiación de ambas muestras (potencia y fracción de huecos) y se emplean las

librerías de secciones eficaces más actuales, de 252 grupos basada en la ENDF-B/VII.1. Pese a que el nivel de detalle en los modelos y el tiempo de computación es similar en ambos casos, la generación de entradas para TRITON es mucho más compleja y la probabilidad de cometer un error es mayor (1250 líneas frente a las 150 necesarias en Polaris).

Las concentraciones isotópicas obtenidas con TRITON y Polaris son equivalentes y no existen diferencias significativas entre los resultados de los dos códigos. Con respecto a las medidas experimentales, las predicciones presentan diferencias del orden de la incertidumbre experimental salvo en algunos isótopos de interés para el proyecto en los que se observan diferencias aparentemente significativas. Cabe destacar que las predicciones realizadas para la muestra situada en la zona DOM son ligeramente mejores, lo que puede achacarse a la dificultad a la hora de determinar los parámetros de operación exactos de la muestra ubicada en la zona VAN, en particular la fracción de huecos y la potencia local.

Dada la importancia del término fuente neutrónico, gamma y de calor residual en los objetivos del proyecto, se ha analizado el impacto de las diferencias encontradas en los isótopos relevantes comparando los resultados obtenidos con los inventarios calculados con los dos códigos y los que se obtienen con los inventarios medidos. De estas comparaciones se concluye que (1) ambos códigos sobrevaloran la fuente neutrónica (principalmente producida por el Cm-244), aunque esto puede ser debido a un error en la medida y, en cualquier caso, se estaría analizando la fuente neutrónica conservadoramente y (2) que la fuente gamma y el calor residual calculados no presentan diferencias significativas con respecto a los valores que se obtendrían empleando los resultados experimentales.

No se observan diferencias significativas entre los valores calculados con TRITON y Polaris, ni tampoco entre los correspondientes tiempos de cálculo. Por ello, teniendo en cuenta la mayor facilidad de uso de Polaris y por tratarse de un código más reciente con métodos numéricos avanzados (MOC) muy apropiados para la simulación de geometrías heterogéneas como la del combustible BWR, se ha seleccionado Polaris para los cálculos de la siguiente fase del proyecto.

REFERENCIAS

- ORNL/TM-2005/39, 2020. SCALE code system. Abril 2020.
- C. Casado, 2013. ENUSA Calculated Results for GN592 J8 fuel rod irradiated in F3. Workshop on Calculation of BWR Fuel Isotopic Composition, Salamanca, Spain, 19-20 February 2013.
- Comisión Europea, 2019. European Joint Programme on Radioactive Waste Management, <https://cordis.europa.eu/project/id/847593/es>.