

ANÁLISIS DE LA PERMEACIÓN DE TRITIO EN UN SISTEMA DE TRATAMIENTO DE GASES RADIATIVOS



ALEXIA ONIEVA BASCÓN
Ingeniero
EMPRESARIOS AGRUPADOS

INTRODUCCIÓN

Tritio en los sistemas de fusión nuclear

La fusión nuclear es el proceso mediante el cual dos núcleos ligeros (como el hidrógeno y sus isótopos) se fusionan para formar un núcleo más pesado, liberando grandes cantidades de energía en el proceso. Existen varias combinaciones de isótopos de hidrógeno y helio que pueden usarse en reacciones de fusión, pero las combinaciones que involucran deuterio y tritio son las más estudiadas y preferidas actualmente. La fusión deuterio-tritio es particularmente atractiva porque requiere menos energía para iniciar la reacción que otras combinaciones de isótopos que producen la misma energía, lo que resulta en una generación de energía mayor que la necesaria para iniciar la reacción [1].

Dado que el tritio es radiactivo, su regulación se rige por la legislación de protección contra radiaciones ionizantes, que establece límites estrictos a la propagación de partículas radiactivas en el medio ambiente. En toda planta en la que se produzca tritio se debe implementar y operar de manera efectiva un sistema de tratamiento de residuos radiactivos y, en concreto, un sistema de retención y gestión del tritio.

La presencia de tritio en estos sistemas plantea desafíos especiales para la seguridad radiológica y la gestión ambiental. El protio gaseoso, el deuterio y el tritio son gases diatómicos que se disocian, especialmente en superficies metálicas, y se disuelven en la red metálica en su forma atómica. Los átomos de isótopos se recombinan fácilmente en las superficies libres, dando lugar a la permeación de los isótopos gaseosos de hidrógeno a través de los metales que soportan un gradiente de concentración de hidrógeno de un lado a otro [2].

Problemática de la permeación de tritio

El tritio presenta una elevada capacidad de permeación a través de materiales metálicos, lo que puede provocar que una fracción del inventario transportado por tuberías y equipos escape al entorno. Este fenómeno constituye un aspecto relevante desde el punto de vista de la seguridad radiológica y del control de emisiones en instalaciones que manejan tritio.

La permeación tiene lugar mediante un proceso que comprende la adsorción y disociación de las moléculas de tritio en la superficie del material, la difusión de los átomos a través de la red cristalina y su posterior recombinación en la superficie opuesta.

La magnitud de este fenómeno depende tanto de las propiedades del material como de las condiciones de operación. Factores como la composición química, la microestructura y la presencia de defectos pueden facilitar o dificultar la difusión de los isótopos de hidrógeno [2]. Asimismo, el aumento de la temperatura incrementa la movilidad atómica y favorece la permeación [2], los gradientes de presión impulsan el transporte de tritio a través del material [3]. Las condiciones superficiales, las interacciones químicas y los efectos de la irradiación neutrónica también pueden modificar significativamente el comportamiento de permeación [4] [5].

Con el fin de reducir las pérdidas de tritio, diversos materiales de baja permeabilidad, como óxidos, carburos o nitruros, han sido propuestos como barreras de permeación. Estos recubrimientos actúan limitando el transporte de los isótopos de hidrógeno a través de las superficies metálicas, contribuyendo a mejorar la seguridad y el rendimiento de los sistemas de tratamiento de gases radiactivos.

Objetivos del estudio

El objetivo de este trabajo es analizar la permeación de tritio en un sistema de tratamiento de gases radiactivos mediante modelos desarrollados en EcosimPro. Para ello, se estudia una configuración de referencia sin revestimiento y una configuración modificada mediante un recubrimiento de alúmina (Al_2O_3). Los resultados obtenidos se comparan mediante el factor de reducción de permeación (*Permeation Reduction Factor PRF*) con el fin de evaluar la eficacia del revestimiento como medida de mitigación.

MATERIALES Y METODOLOGÍA

Descripción del sistema de destritiación

El sistema de tratamiento de gases radiactivos es un componente crucial, responsable de la seguridad ambiental y de los trabajadores en la instalación frente al tritio. En este apartado se explica en detalle el funcionamiento del sistema, desde la entrada de gas contaminado hasta la salida de gas destritiado.

por utilizar como entrada el aire recolectado de las distintas salas de la planta. El circuito está ilustrado en la **Figura 3**.

Cuando el tamiz molecular alcanza la saturación, se inicia la etapa de regeneración. Para ello, se hace circular N_2 calentado a través de la columna de adsorción, promoviendo la desorción del vapor de agua tritiada retenido.

La corriente resultante pasa posteriormente por un condensador, donde el HTO se separa del nitrógeno mediante condensación. El agua tritiada recuperada se almacena en un tanque para su posterior tratamiento en el sistema de gestión de residuos líquidos radiactivos. La conversión del tritio gaseoso en HTO facilita su manejo y almacenamiento, reduciendo los riesgos asociados a la acumulación y posible fuga de tritio en fase gaseosa.

Los modelos de la simulación se van a dividir en tres circuitos, el radiactivo, el de regeneración y el de HTO. Estos tres circuitos a su vez estarán unidos en uno general llamado DS, *decontamination system*, como se muestra en la **Figura 1**.

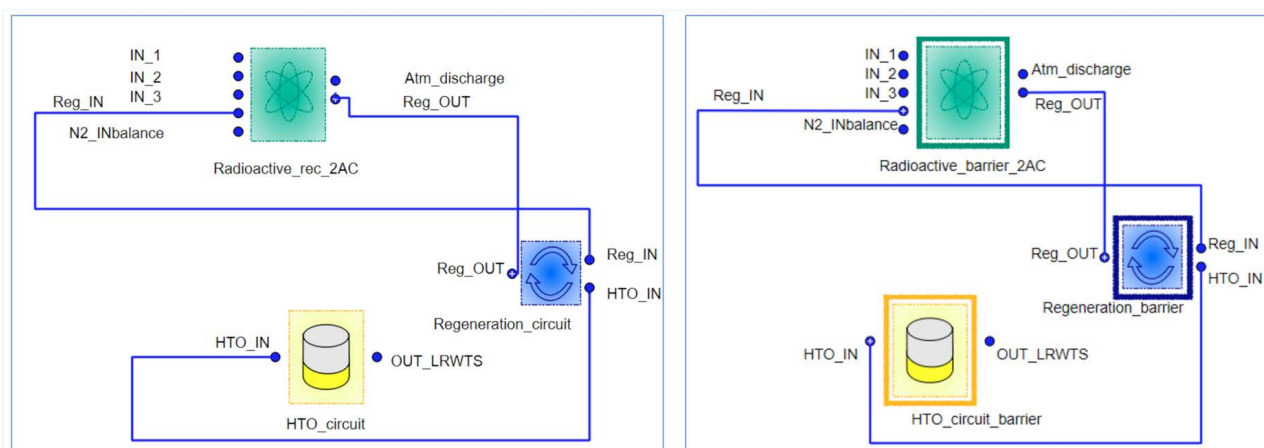


Figura 1. Modelo de referencia (izquierda) y modelo con revestimiento (derecha) en EcosimPro.

El gas tritiado entra en el sistema y se calienta antes de pasar al reactor catalítico, donde el tritio gaseoso se oxida y se transforma en vapor de agua tritiada (HTO). Para ello, se emplea un catalizador compuesto por platino y paladio soportados sobre un sustrato inerte de alúmina, el cual presenta una eficiencia de 99.98% a la temperatura de oxidación utilizada (200°C). Posteriormente, la corriente se enfría y se dirige a una columna de adsorción equipada con un tamiz molecular de zeolita 4A, capaz de retener eficazmente el HTO con eficiencias superiores al 99 %, esta columna de adsorción es capaz de adsorber durante 131 días [6]. Finalmente, si el gas tratado cumple los límites establecidos para su descarga, es liberado a la atmósfera; en caso contrario, se recircula a través del sistema para someterse nuevamente al proceso de destritiación. Este proceso lo controla una válvula (*Valve_C*) diseñada para dirigir el flujo dependiendo de la concentración de la corriente de entrada. Al inicio del sistema se encuentra otra válvula de control (*Valve_BT*). La función principal de esta válvula de control consiste en determinar la entrada de flujo del sistema, lo cual se basa en el flujo de recirculación proporcionado por la válvula *Valve_C*. Si *Valve_C* está recirculando el gas, entonces la válvula en cuestión seleccionará la entrada de recirculación. Por otro lado, si el flujo de recirculación es igual a cero, se optará

Selección del revestimiento

Las barreras funcionan limitando el área de contacto disponible entre el gas y la superficie metálica subyacente, reduciendo la permeabilidad de la superficie. Actualmente, la mayor parte del desarrollo de barreras se centra en óxidos [2], nitruros [7] o carburos de los propios metales [8] como barreras de permeación del tritio, pero las cerámicas presentan mejores propiedades como barreras. En la mayoría de los casos, la baja permeabilidad de las cerámicas se debe a la solubilidad extremadamente baja de los isótopos de hidrógeno en estos materiales.

La **Figura 2** permite comparar el comportamiento de los distintos materiales cerámicos bajo condiciones térmicas variables, evidenciando sus diferencias en cuanto a transporte de especies permeantes. Además, se observa cómo la temperatura influye de manera significativa en la permeabilidad, lo que resulta fundamental para la evaluación de su desempeño como materiales de barrera.

Entre los materiales cerámicos que se estudian para su uso como barreras, destacan dos opciones por su efectividad; el carburo de silicio (SiC) y el óxido de aluminio (Al_2O_3), también conocido como alúmina.

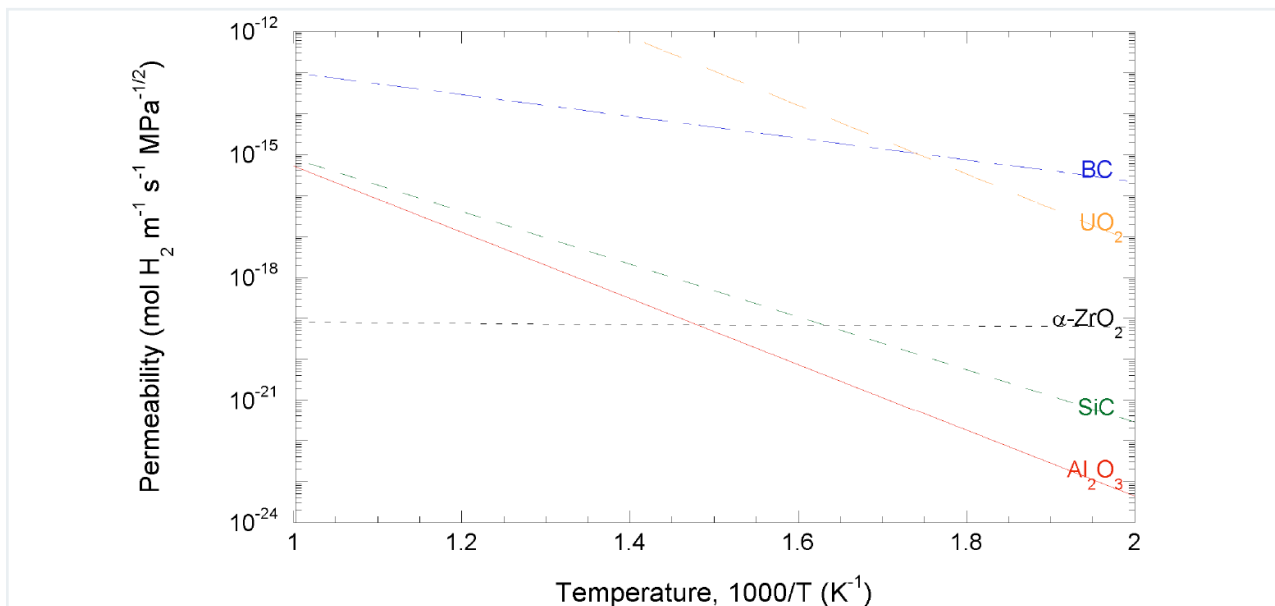


Figura 2. Permeabilidad de diversas cerámicas [2].

La alúmina presenta una permeabilidad menor que el SiC. Sin embargo, es importante estudiar el comportamiento frente a la radiación, donde el SiC exhibe un desempeño superior, según se ha señalado en estudios previos [2]. La radiación promueve el agrietamiento del revestimiento, lo que resulta en un aumento del área de contacto, lo que promueve la permeación. En el contexto de este estudio, donde se esperan bajos niveles de radiación en la sala en la que se encuentra el sistema, se ha decidido utilizar la alúmina como revestimiento, en la **Tabla 1** se recogen los coeficientes necesarios para este material.

El Factor de Reducción de Permeabilidad (PRF) es un indicador clave para evaluar la eficacia de un revestimiento. Este coeficiente se calcula como la relación entre la permeabilidad del sustrato no recubierto y la permeabilidad del sustrato recubierto. Cuanto mayor sea este coeficiente, más eficaz será el revestimiento utilizado [9].

Ecuación 1: Ecuación PRF

$$PRF = \frac{P_{\text{sin revestimiento}}}{P_{\text{revestimiento}}}$$

Desarrollo de los modelos

El modelo de la simulación se va a dividir en tres circuitos, cada circuito tiene una función específica:

Circuito radiactivo: el proceso de destritiación convierte las especies químicas tritiadas gaseosas (HT) en agua tritiada.

Circuito de regeneración: cuando en el circuito radiactivo el tamiz molecular de la columna de adsorción se satura, comienza el proceso de regeneración. Este proceso consiste en extraer el HTO que ha adsorbido el tamiz molecular.

Circuito de HTO: el agua tritiada condensada se recoge en un tanque y se transfiere al sistema de tratamiento de líquidos radiactivos.

	Coeficiente de difusión (D)		Coeficiente solubilidad (Ks)		Coeficiente disociación (Kd)		Ref.
	$D = \alpha * \exp[(-b/RT)] \text{ m}^2/\text{s}$		$Ks = \alpha * \exp[(-b/RT)] \text{ mol}/ (\text{m}^3 \text{Pa}^{0.5})$		$Ks = \alpha * \exp[(-b/RT)] \text{ mol}/ (\text{m}^2 \text{sPa})$		
	a	b	a	b	a	b	
T	6.36E-09	132000	5.50E-03	22500	-	-	(Rion A. Causey)
H	1.10E-08	132000	5.50E-03	22500	-	-	(Rion A. Causey)
HT	-	-	-	-	1.57E-08	49268	-
HTO	-	-	-	-	0	0	-
T2	-	-	-	-	1.28E-08	40239	-
H2	-	-	-	-	2.22E-08	69611	-

Tabla 1. Coeficientes para el material alúmina.

Para todos los elementos y corrientes del sistema es necesario elegir una especie atómica que se dispersa en el material. También, elegir la especie molecular que reside en dicha corriente. Estas especies se muestran en la **Tabla 2**.

Las tuberías del sistema están fabricadas de acero inoxidable austenítico TP304L, al igual que los distintos equipos utilizados. Además, se utilizará un recubrimiento de Al_2O_3 99,999% (alúmina) para reducir la permeación de tritio.

	Especie atómica	Especie molecular
	Circuito de gas radiactivo	
Inicio - Final	TH_Atómico	Gas_refrigerante
	Circuito de refrigeración	
Inicio - Final	TH_Atómico	Gas_refrigerante
	Circuito HTO	
Inicio - Final	TH_Atómico	Solo_HTO

TH_atómico: H y T atómicos.
Gas refrigerante: T2, H2, HT, T2O, H2O y HTO.
Solo_HTO: HTO.

Tabla 2. Especies atómicas y moleculares de las corrientes del modelo.

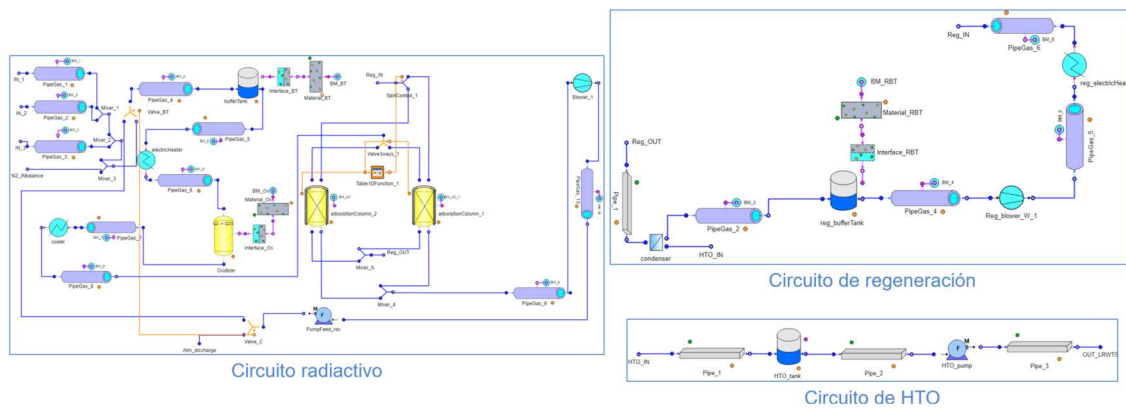


Figura 3. Modelos de referencia en EcosimPro. Circuito radiactivo, de regeneración y de HTO.

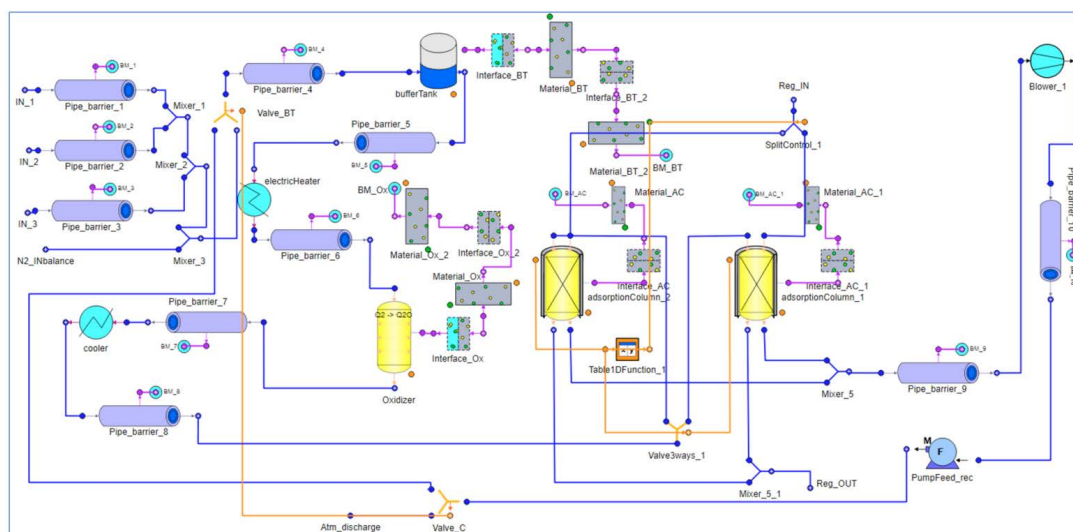


Figura 4. Modelo con revestimiento en EcosimPro. Circuito radiactivo.

Modelo con revestimiento Al_2O_3

El modelo con revestimiento replicará los equipos utilizados en el modelo original y conservará las mismas propiedades y entradas. Las modificaciones se han llevado a cabo sólo en el circuito radiactivo, como se muestra en la **Figura 4**, ya que los otros dos circuitos no tienen especies atómicas que vayan a permear, por lo que no será necesario utilizar un revestimiento.

Se ha añadido un recubrimiento de alúmina de $1\mu\text{m}$ a todos los equipos que era posible. Se ha optado por este grosor ya que es el utilizado en el estudio “Informe sobre la evaluación de las fuentes de tritio y sobre los diferentes tipos de barreras contra la permeación de tritio relevantes para reactores de fusión y fisión” realizado por TRANSAT (TRANSversal Actions for Tritium) [10].

RESULTADOS

Modelo de referencia

Con el objetivo de caracterizar la permeación de tritio en el sistema de tratamiento de residuos radiactivos, se analizaron la evolución de las concentraciones de HT y HTO en la entrada

del sistema, así como los caudales asociados a su funcionamiento.

Los resultados que se muestran en las **Figura 5** y **Figura 6**, destacan que al inicio de operación, la corriente de entrada contiene principalmente HT procedente de las salas. A medida que el gas circula por el sistema, este se oxida y se transforma en HTO. Debido a que inicialmente no se cumplen las condiciones necesarias para su descarga, la corriente entra en recirculación, lo que provoca una disminución progresiva de la concentración de HTO hasta alcanzar los niveles requeridos para su expulsión. Una vez completado este proceso, el sistema vuelve a recibir una corriente rica en HT procedente de las salas y se repite el proceso.

El comportamiento observado en la **Figura 7** muestra que el oxidador es el equipo que presenta la mayor permeación, lo que se atribuye a su elevada temperatura de operación ($200\text{ }^\circ\text{C}$), uno de los factores con mayor influencia en este fenómeno. Asimismo, se observa un incremento significativo de la permeación en la columna de adsorción durante la fase de regeneración, debido al aumento de temperatura hasta $350\text{ }^\circ\text{C}$, que favorece la liberación del hidrógeno y

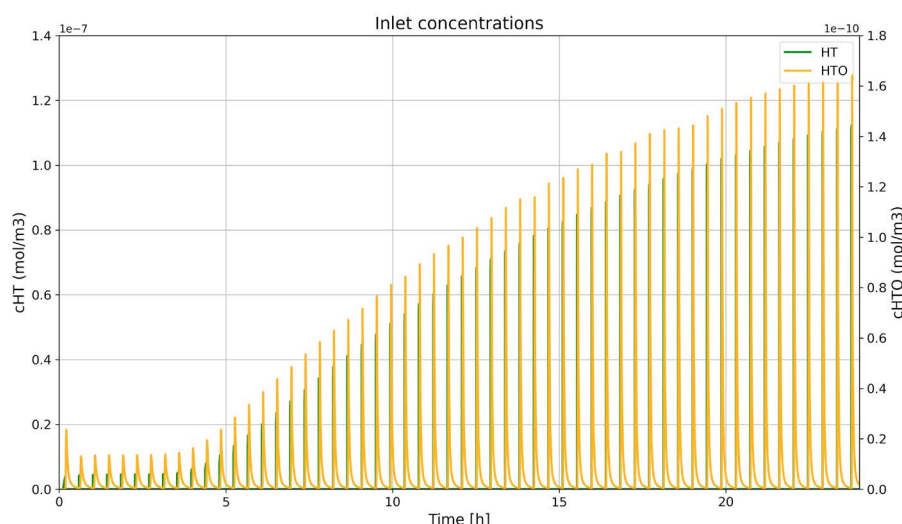


Figura 5. Concentraciones a la entrada del circuito radiactivo. Modelo de referencia.

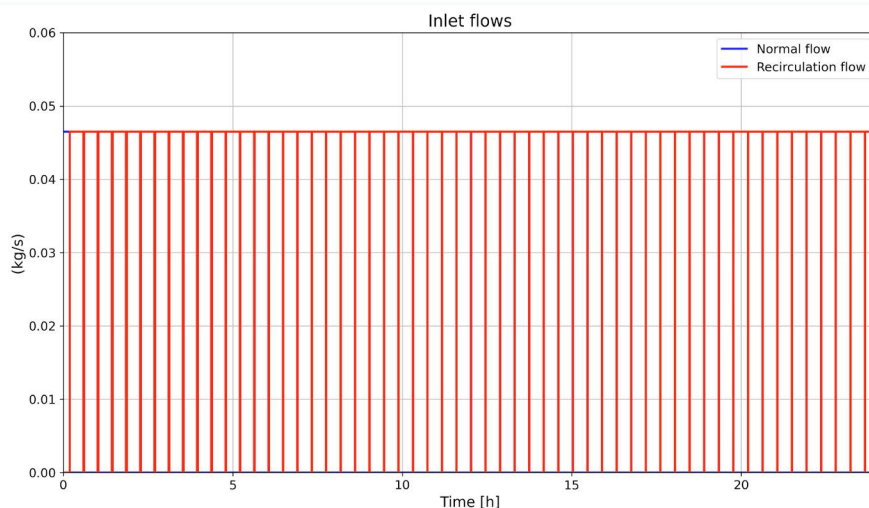


Figura 6. Flujo de corriente a la entrada del sistema radiactivo (Valve_BT). Modelo de referencia.

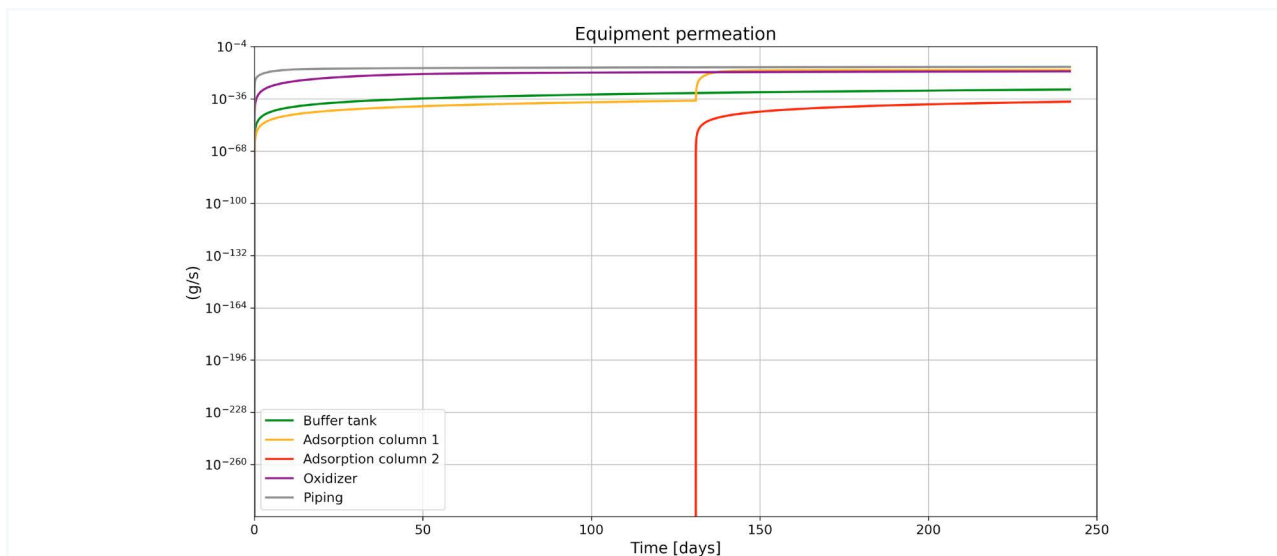


Figura 7. Permeaciones del circuito radiactivo. Modelo de referencia.

tritio previamente retenidos en el material. En cuanto a las tuberías, la mayor contribución corresponde a aquella que transporta la corriente con la concentración más elevada de tritio, evidenciando la importancia de este parámetro en la permeación. La permeación total del sistema alcanza un valor de 3.495×10^{-17} g/s tras un año de operación, sin haber alcanzado todavía el estado estacionario.

Modelo con revestimiento

En primer lugar, como en el caso del modelo referencia, se presentan las gráficas de las concentraciones a la entrada del sistema, así como las correspondientes a los flujos, con el fin de analizar su evolución y comportamiento bajo las condiciones establecidas.

Se observa en las **Figura 8** y **Figura 9** que la concentración de HT es menor en la configuración con revestimiento. Esto se debe a que la barrera reduce la permeación de tritio hacia el exterior, aumentando la cantidad de tritio retenida en la corriente y prolongando el tiempo de recirculación del sistema.

Como consecuencia, una fracción mayor del tritio se transforma en HTO antes de que la corriente pueda ser descargada, reduciendo la frecuencia de entrada de nuevas corrientes ricas en HT procedentes de las salas y dando lugar a menores concentraciones de HT a lo largo del tiempo.

Al igual que en la configuración sin revestimiento, se observa en la **Figura 10** que el oxidador es el equipo que presenta la mayor permeación durante el funcionamiento normal debido a su elevada temperatura de operación. Sin embargo, durante la fase de regeneración, la columna de adsorción pasa a ser el componente con mayor permeación como consecuencia del incremento de temperatura asociado a este proceso.

En cuanto a las tuberías, la mayor contribución a la permeación corresponde a la tubería 6. A diferencia del modelo referencia, la mayor duración de los periodos de recirculación reduce el paso de corrientes ricas en HT por las tuberías de entrada, haciendo que la influencia de la temperatura cobre mayor relevancia y convierta a la tubería 6 en la más permeable.

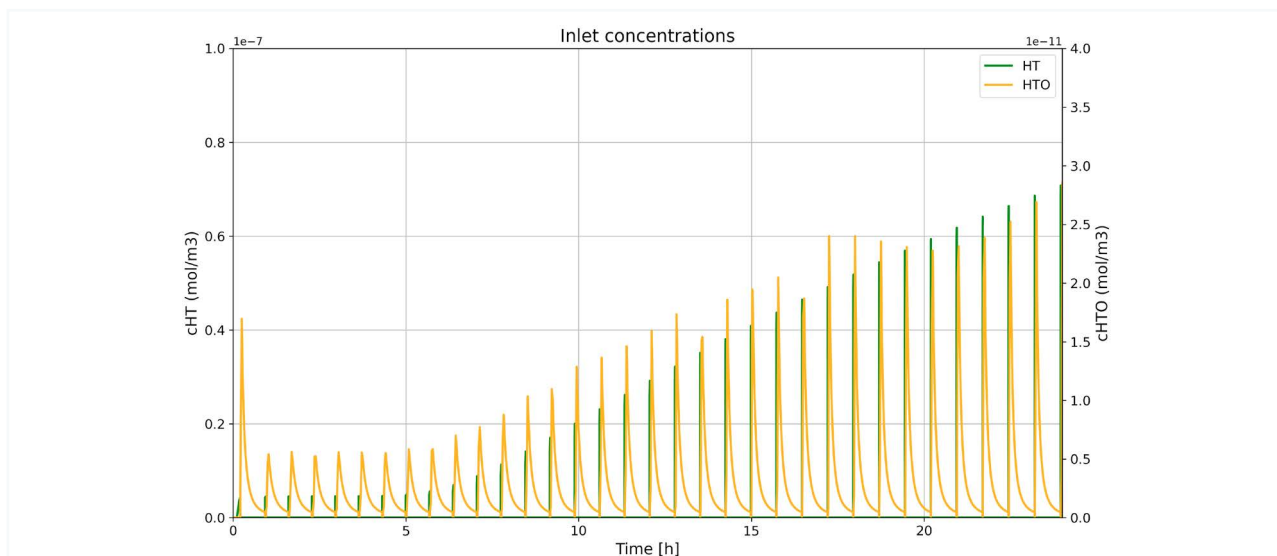


Figura 8. Concentraciones a la entrada del circuito radiactivo. Modelo con revestimiento.

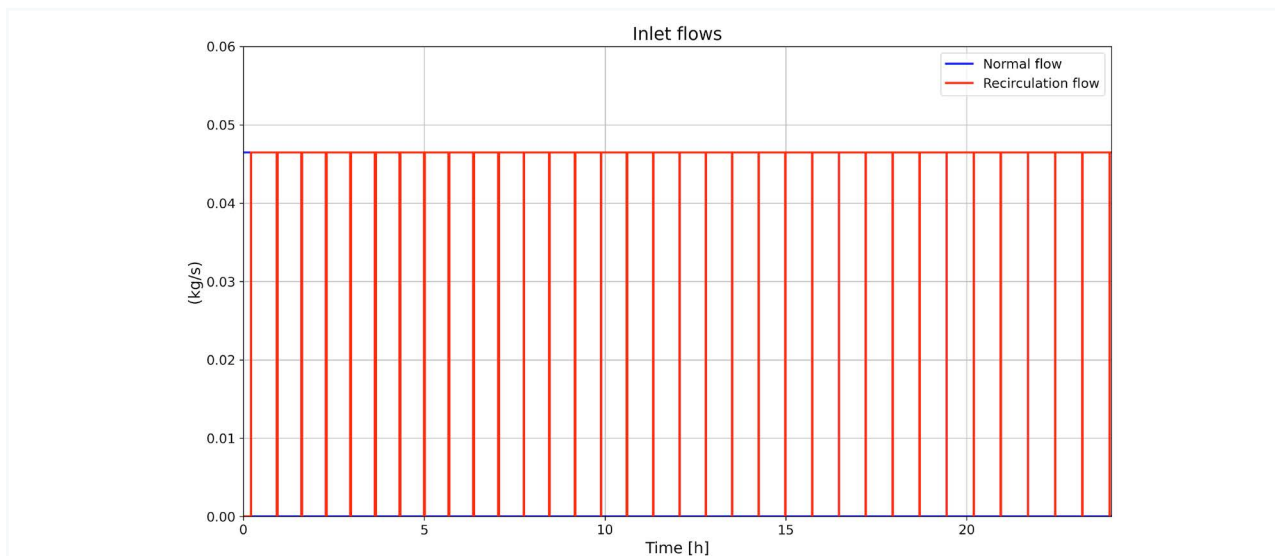


Figura 9. Flujo de corriente a la entrada del sistema radiactivo (Valve_BT). Modelo con revestimiento.

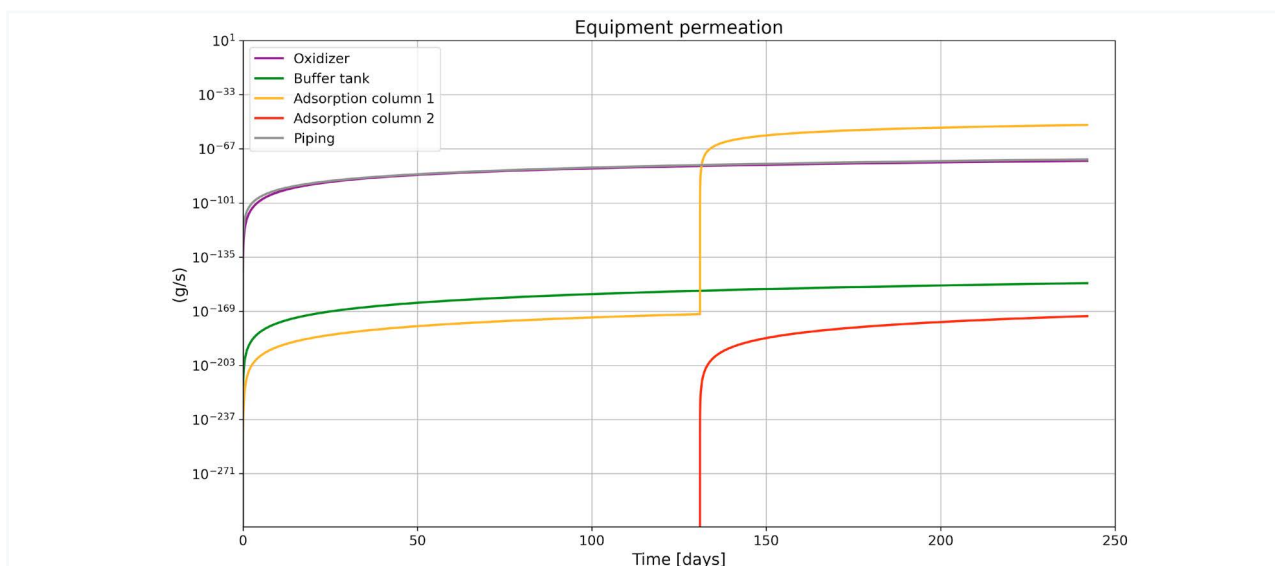


Figura 10. Permeaciones del sistema radiactivo. Modelo con revestimiento.

Asimismo, se observa un aumento significativo de la permeación durante la regeneración de las columnas de adsorción. Este efecto resulta más acusado en la configuración con revestimiento debido a la elevada sensibilidad del coeficiente de difusión de la alúmina a la temperatura, aunque el material continúa mostrando una alta eficacia como barrera frente a la permeación de tritio.

En general, tanto en las tuberías como en los equipos, se observa una reducción significativa de la permeación gracias a la presencia del revestimiento de alúmina, lo que evidencia su efectividad como barrera frente al transporte de especies permeantes.

Permeation Reduction Factor (PRF)

La determinación de este factor requiere que la permeación se encuentre en estado estacionario. Con este fin, se llevó a cabo una simulación adicional considerando la tubería 6, la cual presenta la temperatura de operación más elevada y la mayor permeación en el modelo revestido.

El estado estacionario se alcanza cuando el material, o los materiales, en el caso de la configuración con revestimiento, han absorbido la máxima cantidad de hidrógeno y tritio que puede retener, momento a partir del cual la tasa de permeación permanece prácticamente constante.

Se observa en la **Figura 11** y **Figura 12** que, en la configuración con revestimiento, el material metálico alcanza esta condición en un tiempo menor debido a que la barrera cerámica limita la permeación hacia el exterior y favorece la acumulación de átomos en el interior del metal, acelerando su saturación. Por el contrario, la capa cerámica requiere un tiempo mayor para alcanzar la saturación, ya que actúa como barrera al transporte de los isótopos de hidrógeno y retrasa su difusión a través del sistema.

Comparando en la **Figura 13** los dos casos en estado estacionario, se calcula el PRF a partir de la relación entre la permeación del sistema sin recubrimiento y la del sistema con recubrimiento, lo que permite cuantificar de manera directa la reducción de la permeación debida al revestimiento de alúmina.

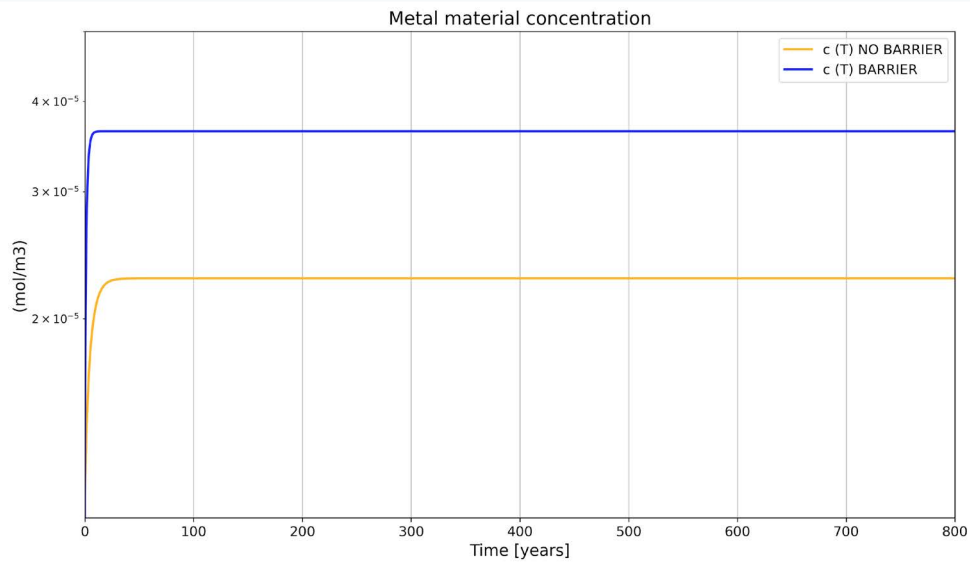


Figura 11. Concentraciones de tritio dentro del metal de la tubería de prueba.

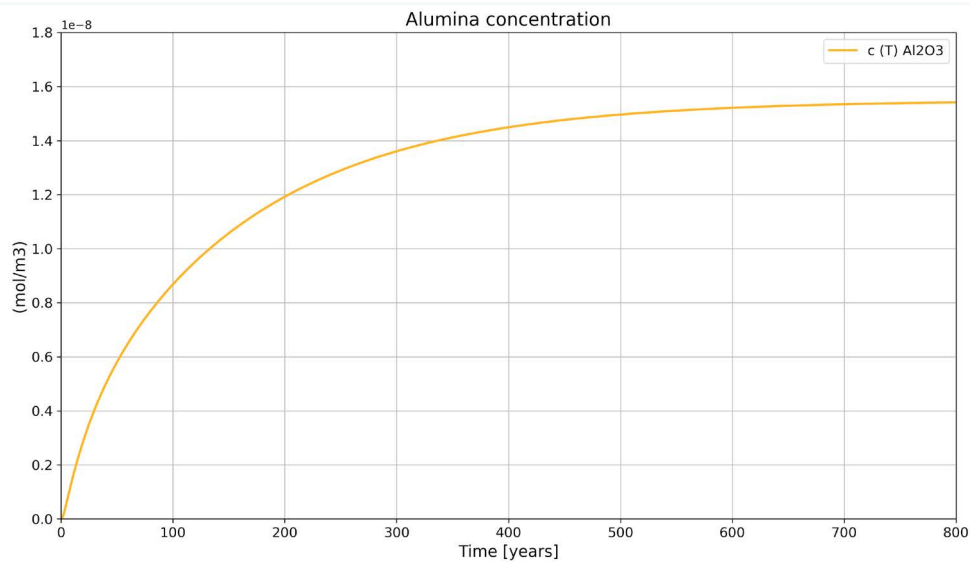


Figura 12. Concentraciones de tritio dentro de la cerámica de la tubería de prueba.

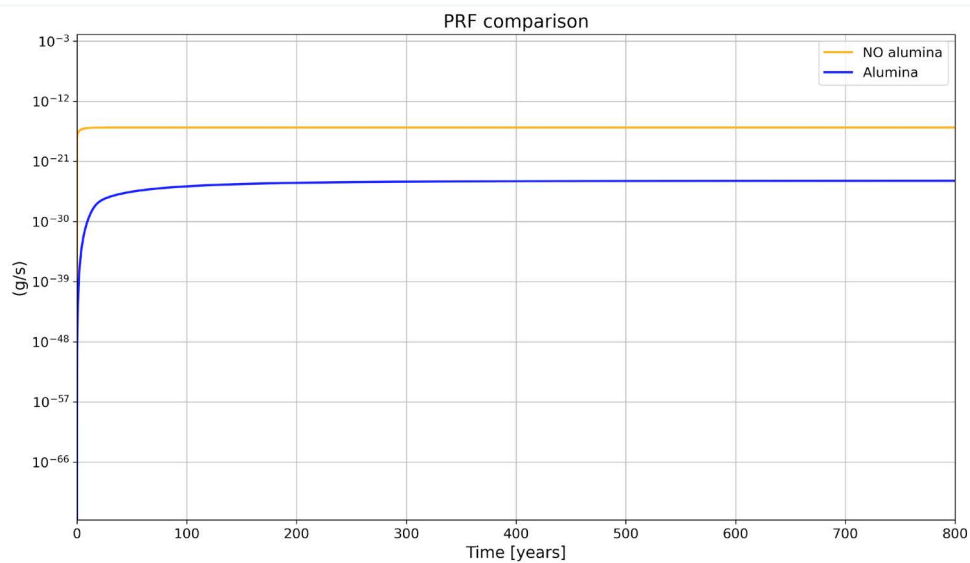


Figura 13. Comparación de permeaciones.

Ecuación 2: Ecuación PRF

$$PRF = \frac{P_{uncoated}}{P_{coated}} = \frac{1.2032e^{-16}}{1.2712e^{-24}} = 9.46e^7$$

Un PRF de ese valor muestra que el revestimiento de alúmina aplicado es extremadamente eficaz para la reducción de la permeabilidad. Concretando, la permeabilidad de tritio a través del material con el revestimiento es $9,46 \times 10^7$ veces menor que a través del material sin revestimiento. Esto significa que el recubrimiento reduce enormemente la velocidad a la que el tritio es capaz de atravesar el material.

CONCLUSIONES

El presente trabajo ha permitido analizar el fenómeno de la permeación de tritio en un sistema de tratamiento de gases radiactivos mediante simulación numérica y evaluar la eficacia de un revestimiento de alúmina (Al_2O_3) como barrera de permeación. Los resultados muestran que la temperatura es uno de los factores con mayor influencia en las pérdidas de tritio, siendo los equipos que operan a temperaturas más elevadas los que presentan mayores tasas de permeación. Asimismo, se observó que la incorporación del revestimiento altera el comportamiento del sistema, favoreciendo la acumulación de hidrógeno y tritio en el material y provocando una saturación más temprana, lo que incrementa el tiempo necesario de recirculación. La alúmina demostró una elevada eficacia como barrera de permeación, alcanzándose un factor de reducción de permeación (PRF) de 9.46×10^7 . Estos resultados evidencian el potencial de los revestimientos cerámicos para minimizar las pérdidas de tritio en sistemas de tratamiento de gases radiactivos y proporcionan información de interés para el diseño y optimización de futuras instalaciones de fusión nuclear.

REFERENCIAS

- [1] J. Nucleares, «Jovenes Nucleares,» [En línea]. Available: <https://www.jovenesnucleares.org/blog/te-interesa/12-meses-12-razones/septiembre/>.
- [2] R. A. K. C. S. M. Rion A. Causey, Tritium barriers and tritium diffusion in fusion reactors, Livermore.
- [3] M. S. a. B. Pawelko, «Tritium permeation activity at safety and tritium applied reasearch (STAR) facility,» de Fusion safety program, Idaho Falls, 2014.
- [4] I. U. J. C. J.A. Carreño, «Modelling of roughness effect on hydrogen permeation in a low carbon steel,» Consejo superior de investigaciones científicas, Madrid, 2003.
- [5] P. Humrickhouse, «Tritium and its safety issues,» de 7th IAEA DEMO Programme Workshop, Idaho, 2021.
- [6] E. H. L. Chang Woo Shik, «Design of a tritium adsorption bed in the coolant purification system,» Jeju, 2019.
- [7] J. C. J. P. A.M. Brass, «Influence of nitrogen ion implantation on hydrogen permeation in an extra mild steel,» Journal of materials science, France, 1989.
- [8] W. R. W. Rion A. Causey, «The use of silicon carbide as a tritium permeation barrier,» Journal of nuclear materials, USA, 1995.
- [9] F. B. P. L. Yufan Li, «Mechanism and evaluation of hydrogen permeation barriers: A critical review,» 2023.
- [10] TRANSAT, «Informe sobre la evaluación de las fuentes de términos de tritio y sobre los diferentes tipos de barreras contra la permeación de tritio relevantes para reactores de fusión y fisión.,» 2019. ■