

TRANSMUTACION NUCLEAR DE RESIDUOS RADIATIVOS

J. M. PERLADO

José Manuel PERLADO MARTÍN es Doctor Ingeniero Industrial por la Universidad Politécnica de Madrid. Ha sido Jefe de Grupo de Reactores Avanzados y Rápidos en la Junta de Energía Nuclear hasta su excedencia en 1982. En la actualidad es Profesor Titular de Física Nuclear en la Escuela Técnica Superior de Ingenieros Industriales de la UPM y miembro, desde su fundación, del Instituto de Fusión Nuclear y de grupos de expertos de la NEA/OCDE, IAEA e IEA en datos nucleares y tecnología de fusión. Sus publicaciones se centran en Fusión por Confinamiento Inercial, Materiales de Fusión, Fuentes Intensas de Radiación y Transmutación Nuclear.

La **transmutación nuclear** ha sido y sigue siendo protagonista fundamental y herramienta básica en el conocimiento del mundo subatómico y nuclear. El descubrimiento de nuevos isótopos y la extensión de la Tabla Periódica han tenido como sujeto activo a la transmutación nuclear, según la cual cuando un núcleo es bombardeado por diversas clases de partículas (α , protones, **neutrones...**) puede pasar a convertirse en otro que responde a un elemental balance de nucleones (i.e. captura neutrónica, ${}_Z X^A + {}_0 n^1 \rightarrow {}_Z X^{A+1}$). La utilidad de este principio en la gestión de residuos radiactivos, fundamentalmente de alta actividad y vida larga, está asociada a la posibilidad de que ese nuevo isótopo sea de *muy inferior riesgo radiológico* (menor vida, actividad, difusividad...), motivando un tratamiento más simple, una custodia más corta, de mucho menor riesgo y de coste aceptable. La aplicación de este principio a la transmutación de los productos de fisión de vida larga, así como al "**quemado**" (**fisión**) de los actínidos transuránicos es una idea identificada casi desde el comienzo de la tecnología nuclear, pero que por diversas razones no ha sido investigada tecnológicamente hasta hace relativamente poco tiempo.

Los **neutrones** son las partículas de mayor efectividad para llevar a cabo tecnológicamente la transmutación de estos residuos radiactivos, aunque también aparecen otros conceptos basados principalmente en protones. Se deberá, pues, identificar una **fente neutrónica** de suficiente **flujo** y con el **espectro energético** adecuado ($\Rightarrow$ dependencia de las secciones eficaces), componente central de un sistema en el que el **inventario de residuos radiactivos**

sea mínimo, así como el **volumen** de irradiación ($\Rightarrow$ seguridad, posibles escapes radiactivos, radioquímica), lo que conlleva a menores **tiempos de residencia**, con una suficiente **multiplicación neutrónica** en la envoltura, y amplio margen de seguridad en operación ($\Rightarrow$ criticidad de la planta y su control). Es evidente que no se justifica un dispositivo con buenas tasas de transmutación, pero que resulte estar en el límite de lo operable como reactor.

El correcto conocimiento de la composición del combustible irradiado en la descarga y en diversos periodos post-irradiación ($\Rightarrow$ reprocesado), el comportamiento de los isótopos críticos frente al tipo de espectro, nivel de flujo y fluencia neutrónicas condicionando la tasa de transmutación, el inventario de material radiactivo involucrado en el sistema de manera permanente y algunas soluciones tecnológicas desarrolladas en los últimos años, como resultado de un creciente interés en su investigación, son áreas críticas en el conocimiento de este tema que se desarrollan esquemáticamente a continuación.

COMBUSTIBLE IRRADIADO $\Rightarrow$ RESIDUOS RADIATIVOS

Los residuos nucleares para los que tiene sentido la transmutación nuclear son los denominados de **alta actividad y larga vida**, consistentes en los **productos de fisión altamente radiactivos y los actínidos transuránicos**, caracterizados por una alta actividad β y γ , actividad α significativa y gran producción de calor, y provenientes de los residuos líquidos de alta actividad, sólidos de reelaboración del combustible y el com-

T I

RESIDUOS TRANSURANIDOS EN UN PWR*

Isótopo	kg/año	Isótopos Plutonio Vida media (años)	Átomos/año ($\times 10^{25}$)
^{238}Pu	4,52	88	1,13
^{239}Pu	166	$2,4 \times 10^4$	41,6
^{240}Pu	76,7	$6,6 \times 10^3$	19,2
^{241}Pu	25,4	14,4	6,4
^{242}Pu	15,5	$3,8 \times 10^5$	3,9
Total			$72,2 \times 10^{25}$

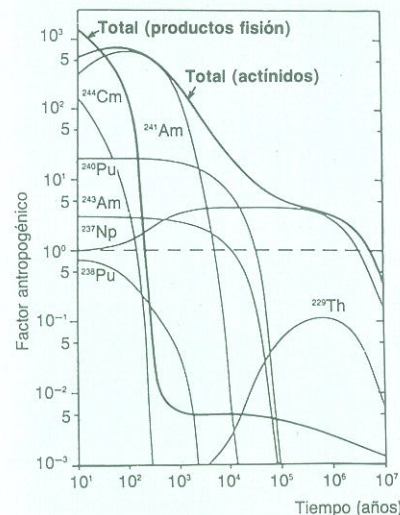
OTROS ACTINIDOS

^{237}Np	14,5	$2,1 \times 10^6$	3,66
^{241}Am	16,6	432	4,13
^{242m}Am	0,022	141	
^{243}Am	2,99	$7,4 \times 10^3$	0,73
^{243}Cm	0,011	28,5	
^{244}Cm	0,58	18,1	0,13
Total			$8,65 \times 10^{25}$

(*) Cantidades producidas anualmente por un PWR de 3,0 GWt después de un decaimiento de 10 años. Quemado de 33.000 MW d/t y descarga de 33 T. de uranio irradiado por año.

bustible irradiado. Serían los residuos del grupo I de la Organización Internacional de Energía Atómica, clasificación de referencia ante la dispersión existente de criterios y normas nacionales. La tabla I representa la cantidad de residuos transuránicos, y la tabla II los productos de fisión (para los que se asume extracción inmediatamente después de su generación y decaimiento de 0,1 años) más significativos en la descarga de un PWR de 3 GWt después de 10 años de decaimiento (tiempo considerado necesario antes de cualquier labor de reprocesado), de un combustible irradiado hasta 33 GW .d/t requiriendo una extracción de 33 T. de combustible irradiado por año (1). Algunas diferencias significativas que aparecen en los productos de fisión entre el caso del PWR y la fisión del ^{239}Pu y el ^{235}U son debidas al quemado intrínseco dentro del propio reactor de ciertas familias radiactivas. Es muy importante precisar el momento en que se están considerando estos datos y, naturalmente, el tipo de reactor y combustible. Así para un reactor PWR cargado con combustible de Pu (3,2% ^{239}Pu - ^{240}Pu) la descarga de ^{237}Np disminuye en el momento de la parada, pero aumenta un orden de magnitud la cantidad existente de ^{241}Am y ^{242}Cm , y aún más la de ^{243}Am y ^{244}Cm , justificándose esta observación en el comienzo de la cadena de transmuta-

ción durante la irradiación en isótopos más altos (i.e. ^{242}Pu ...). El enorme valor como combustible del Pu, y la ventaja radiológica de su separación del flujo de los otros residuos justificaría su reprocesamiento y posterior uso en plantas de potencia. La consideración de la trans-



F I Dependencia temporal del factor antropogénico de residuos procedentes de combustible almacenado sin reprocesado.

mutación sin la reelaboración del Pu supone un incremento de las dificultades de principio y una solución muy inferior en rentabilidad energética y viabilidad económica del conjunto del ciclo. Se describe básicamente la alternativa de la transmutación con reprocesado del Pu. La importancia radiológica de los residuos generados se puede expresar a través del denominado *factor antropogénico*, que mide cómo la radiotoxicidad natural del mineral de uranio (1, en la figura I) se ve incrementada por los residuos ra-

T II

PRODUCCION PRODUCTOS DE FISION Y PROPIEDADES**

Isótopo	Rendimiento de Fisión	σ_c térmica (barns)	$T_{1/2}$ (años)	^{235}U (átomos/año $\times 10^{25}$)	^{239}Pu (átomos/año $\times 10^{25}$)	PWR (átomos/año $\times 10^{25}$)
^{79}Se	—	—	$6,5 \times 10^4$	0,32	0,10	0,13
^{85}Kr	0,3	1,66	10,7	1,0	0,22	0,28
^{90}Sr	5,9	0,014-0,9	28,8	15	4,4	9,0
^{93}Zr	6,4	1,3-4	$1,5 \times 10^6$	17	9,3	15
^{95}Tc	6,1	20	$2,1 \times 10^5$	12	15	15
$^{107}\text{Pd}^+$	0,2	1,8	$6,5 \times 10^6$	0,27	17,8	4,1
^{126}Sn	—	—	1×10^7	0,64	0,64	0,46
^{129}I	0,9	27	$1,6 \times 10^7$	3,5	3,0	2,7
$^{135}\text{Cs}^+$	6,7	8,7	3×10^6	15	18	4,2
^{137}Cs	6,2	0,11-0,3	30	17	17	14
$^{151}\text{Sm}^+$	—	$1,5 \times 10^4$	90	0,79	1,9	0,16

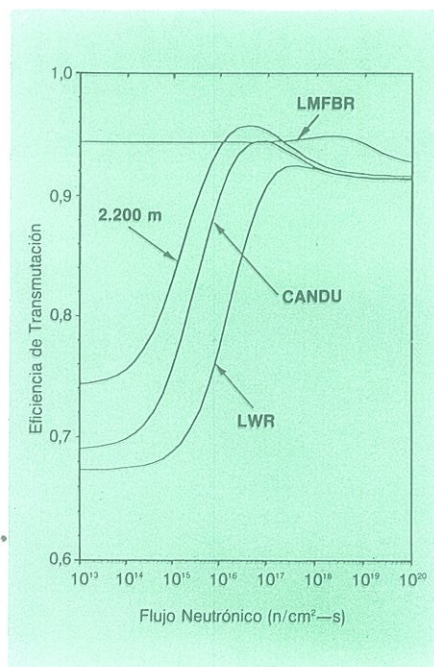
(*) Transmutación puede no ser necesaria.

(**) Cantidades producidas anualmente por un PWR de 3,0 GWt después de un decaimiento de 10 años. Quemado de 33.000 MW d/t y descarga de 33 T. de uranio irradiado por año.

diactivos, y que se representa como función del tiempo post-irradiación en la figura 1. La importancia temporal de los residuos se puede dividir en distintas fases, i) no manipulación ni transporte en unos 6 meses, ii) no reprocesamiento hasta ≈ 10 años (conviene mantener la integridad de las vainas, iii) dominio de los productos de fisión, esencialmente ^{137}Cs y ^{90}Sr hasta ≈ 100 años, aunque siguen presentes hasta ≈ 400 años, iv) fase en la que importa fundamentalmente el ^{241}Am , procedente del ^{241}Pu , y que dura hasta poco más de 1.000 años, v) etapa crítica dominada por los isótopos del Pu (^{239}Pu , ^{240}Pu) que decae lentamente hacia los 100.000 años, y vi) una última etapa de muy larga vida en la que influyen en el entorno de 10^6 años el ^{99}Tc (menos tiempo), ^{129}I , ^{93}Zr , y los actínidos ^{237}Np , ^{229}Th , ^{226}Ra . Los resultados cambian drásticamente cuando se reprocesa el combustible con una recuperación del 99,5% del U, Pu, y otros actínidos (Koch, p. 65 en 2). Esta descripción sirve de base para acotar la **importancia y duración de los isótopos que interesa transmutar**. Sin embargo, éste puede no ser el único criterio (Pigford, p. 80 en 3) (4) al establecer una jerarquía de significación de los isótopos radiactivos, si se consideran otros factores de comparación que involucren la disposición de los residuos y la naturaleza de su desintegración, tales como el inventario depositado, la tasa de disolución y los factores de conversión a dosis, que situarían al ^{99}Tc a la cabeza de los isótopos con prioridad para transmutar, seguido por ^{129}I , ^{135}Cs , ^{234}U , ^{238}U , ^{237}Np , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{241}Am , ^{243}Am . La consideración de estos criterios, *aún sin establecer con rigor*, podría llevar a conclusiones controvertidas que merecerían ser consideradas en otro contexto.

FUNDAMENTOS DE LA TRANSMUTACION DE RESIDUOS RADIOACTIVOS

De entre las opciones de transmutación nuclear, aquella inducida por neutrones se demuestra como la más efectiva. La deseada conversión del isótopo radiactivo problema en otro de menor vida y actividad se produce mediante las diversas reacciones neutrón-núcleo. En el caso de los **productos de fisión**, la **captura radiativa** es la reacción fundamental de transmutación (mayores secciones eficaces en todo el rango energético), sin olvidar algunas reacciones umbral para energías ≥ 1 MeV. En la mayoría de los casos la captura de un neutrón por un producto de fisión inestable conduce finalmente a un nuevo elemento mediante una desintegración β y, normalmente, los isótopos de este nuevo elemento tienen secciones efica-



F II Eficiencia de Transmutación (fisión/absorción) función del nivel de flujo para cuatro espectros distintos.

ces mucho más altas que las de aquel que precisa de transmutación, empeorando el balance neutrónico del sistema, por lo que precisarán de **separación isotópica** inmediata después de su formación. Por otra parte, una eficiente **transmutación de actínidos** no pasa, evidentemente, por la captura puesto que de esta manera lo que aparecen son nuevos isótopos escalando en la Tabla Periódica, todos ellos inestables y radiactivos de muy diversos periodos con lo que el resultado sería despreciable. En este caso, la reacción fundamental es la **fisión nuclear**. Que la razón de captura a fisión sea lo menor posible, de manera que se incentive esta última reacción, parece deseable; esa relación es función de la energía del neutrón. El valor del **flujo neutrónico** es obviamente responsable de la tasa de transmutación y, por ende, de la viabilidad del concepto; y lo es, tanto porque dicha tasa es directamente proporcional a él ($\sigma\phi N$), como por la crítica variación que puede imponer en la cadena radiactiva origen, lo que se deduce de la comparación entre la constante de desintegración λ y la constante de reacción $\sigma\phi$, recordando que la vida media efectiva viene dada por $T_{1/2} = (\lambda + \sigma\phi)^{-1}$. La figura II representa la eficiencia de transmutación para el crítico ^{237}Np (definida como la relación entre las fisiones y las absorciones por neutrón) como función del flujo y para distintos espectros neutrónicos. La eficiencia de transmutación aumenta drásticamente con el nivel

de flujo debido a la fisión del isótopo de vida corta ^{238}Np entre flujos de 10^{14} y 10^{17} $\text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. Cuando el flujo se hace mucho más elevado y el decaimiento del ^{238}Np se hace totalmente despreciable, la eficiencia baja debido a que la transmutación se produce a través del ^{239}Np que tiene una sección eficaz de fisión menor que la asociada al camino de los plutonios. El otro aspecto destacable es la **mayor eficiencia del espectro del reactor rápido para la mayor parte del rango del flujo y dentro de los valores más convencionales del mismo**. Se ha identificado "clásicamente" la mayor conveniencia del reactor rápido de potencia frente a un reactor de agua ligera para los parámetros operacionales de flujo y espectro de ambos. La razón es, como ya se ha comentado, el menor valor de la **relación captura/fisión** para el espectro típico rápido, con lo que una mayor fracción de los neutrones existentes producen el efecto deseado de la fisión de los actínidos. Sin embargo, no se debe olvidar que, en general, las secciones eficaces de fisión térmicas de los isótopos *final* de las cadenas de transmutación (i.e. ^{238}Np , ^{243}Am ...) son de mucho mayor valor que las de fisión rápida de los isótopos problema (i.e. ^{237}Np , ^{244}Am ...). Estas observaciones justificarían el espectro más energético, pero a costa de rebajar sustancialmente la tasa de transmutación y aumentar el inventario de residuos residentes en el reactor. No obstante, **existe un rango de flujos, $\approx 10^{16}$ - 10^{17} $\text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, en el que el uso de un espectro exclusivamente térmico ($2.200 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) resulta especialmente ventajoso**, produciendo una mayor eficiencia y, lo que es más importante, con una reducción drástica de los niveles de inventario (100 veces) pudiendo pasar de los 10.000 kg en soluciones de espectros rápidos a ≤ 100 kg. Este rango ha sido propuesto (5) (Arthur et al., p. 641 en 6) con la tecnología actual de aceleradores de protones tal y como se verá más adelante. Una representación más exhaustiva se da en la tabla III donde las vidas medias por desintegración son comparadas con las de las reacciones neutrónicas para los actínidos (no-Pu) más significativos. Se aprecia el mayor valor del reactor rápido frente al convencional LWR; el mayor potencial del espectro puro térmico para el mismo flujo alcanzable en un LWR, pero inferior al LMFBR, y su ventaja para un flujo de 10^{16} $\text{n}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$. En este caso la comparación parece que deba hacerse sobre la reacción de fisión, en cuyo caso la transmutación del ^{237}Np y ^{243}Am resultarían ventajosas sólo en el caso del espectro rápido (LMFBR), conclusión que puede ser equivocada al considerar que lo determinante puede no ser su propia fisión sino la de su siguiente isótopo (^{238}Np y ^{244}Am) de gran sección eficaz de fisión térmica.

T III

VIDAS MEDIAS EFECTIVAS (EN AÑOS) DE ACTINIDOS (NO-PU) EN REACTOR TERMICO Y RAPIDO

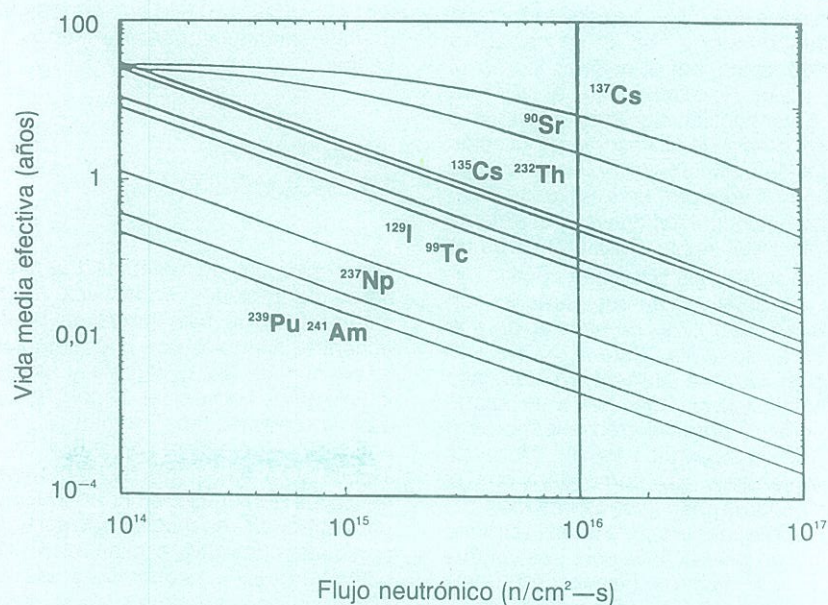
Actínidos	$T_{1/2}$ desintegración natural (1)	Espectro neutrónico PWR $\phi 3 \times 10^{13} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$			LMFBR $\phi 3,2 \times 10^{15} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$			Térmico (2.200 m s^{-1}) $\phi 3 \times 10^{13} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$			Térmico (2.000 m s^{-1}) $\phi 1 \times 10^{16} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$		
		$T_{1/2}$ Fisión (2)	$T_{1/2}$ Captura (3)	$T_{1/2}$ Total (1+2+3)	$T_{1/2}$ Fisión (2)	$T_{1/2}$ Captura (3)	$T_{1/2}$ Total (1+2+3)	$T_{1/2}$ Fisión (2)	$T_{1/2}$ Captura (3)	$T_{1/2}$ Total (1+2+3)	$T_{1/2}$ Fisión (2)	$T_{1/2}$ Captura (3)	$T_{1/2}$ Total (1+2+3)
^{237}Np	$2,10^6$	$3,8 \times 10^4$	4,3	4,3	21	4,3	3,6	$5,5 \times 10^4$	6,25	6,25	167	0,02	0,02
^{241}Am	433	230	0,87	0,88	26	3,5	3,0	335	1,27	0,80	1	0,03	0,03
^{243}Am	$7,10^5$	$>10^4$	9,2	9,2	33	4,0	3,6	$>10^4$	13,3	13,3	45	0,04	0,04
^{242}Cm	0,45	$>10^2$	46	0,44	12	7,7	0,4	200	66	0,44	0,63	0,2	0,11
^{244}Cm	18	610	53	13,1	15	10	4,6	880	76	14,3	2,64	0,22	0,2

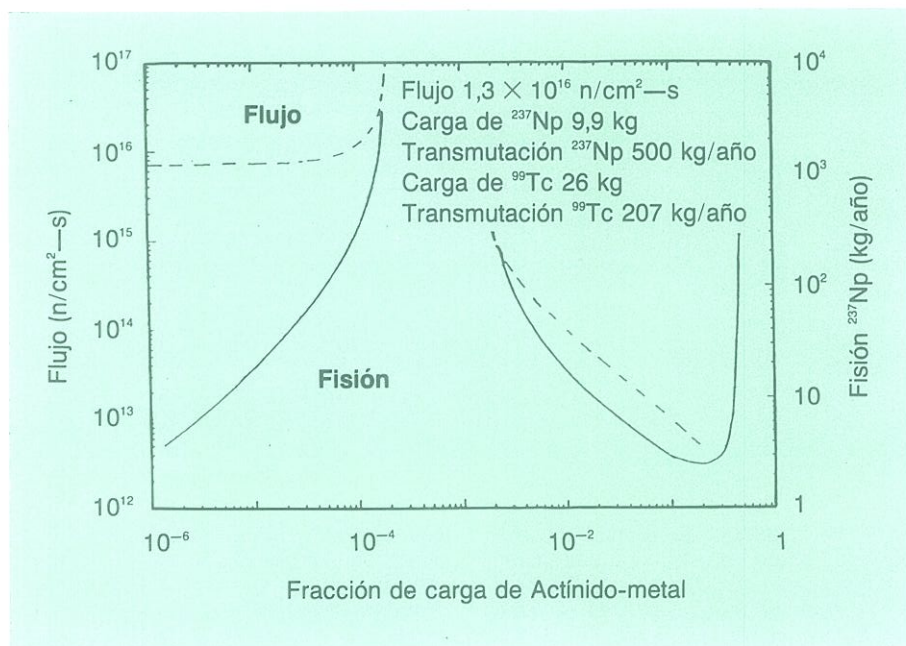
El caso del ^{237}Np es particularmente notable por su significación en muy largos periodos de tiempo, y a través de él se puede validar el uso del espectro térmico en niveles de flujo $\geq 2,5 \times 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ (5). Puesto que la $\sigma_{\text{fisión, térmica}}$ del ^{237}Np es muy pequeña (≤ 1 barn), los neutrones absorbidos por él crean preferentemente el ^{238}Np que tiene una elevada $\sigma_{\text{fisión}}$ (≈ 2.000 barn) frente a una σ_{captura} de 300 barn y que se desintegra emitiendo una β con una vida de 2,1 días produciendo el ^{238}Pu (de pequeña σ_{captura} frente a $\sigma_{\text{fisión}}$). La transmutación (fisión) precisa de un neutrón más para pasar al ^{239}Pu , que al absorber un neutrón con una $\sigma_{\text{fisión}}$ de ≈ 750 barn se fisiona finalmente. La economía neutrónica no es buena en esta imagen previa, pero no se debe olvidar que el flujo condiciona cual es el periodo efectivo de las reacciones en competencia con la desintegración del ^{238}Np . Si el valor del flujo fuese de $10^{16} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ aparecería un periodo por fisión ($1/\sigma_{\text{fisión}}\phi$) de 0,5 días, lo que supondría que la fisión sería preponderante sobre la desintegración β y lo que es igualmente importante que el "original" ^{237}Np aparece ahora como un combustible con una ganancia neta de neutrones en su destrucción. Obsérvese que para estos niveles de flujo, se han consumido 2 neutrones frente a los 2,7 neutrones emergentes de la fisión del ^{238}Np . La figura III representa la **vida media efectiva de actínidos y productos de fisión en función del flujo térmico**. Se observa que, comparándola con sus vidas medias naturales, el valor de las **efectivas** es claramente justificativo de la solución transmutadora. La mayor duda aparece en el ^{90}Sr , debido a la incertidumbre en su sección eficaz de captura (7), que podría situar su vida media en torno a los 25 años, que comparados con sus casi 30 años de decaimiento natural podría hacer ineficaz su transmutación. En este caso, y en el del ^{137}Cs , se debería de tomar una decisión sobre la conveniencia de su transmutación.

Entre los isótopos de la tabla II hay algunos (*) para los que la transmutación nuclear puede resultar no satisfactoria. El ^{85}Kr (gas noble) posee una sección eficaz térmica de tan solo 1,7 barns, precisaría de muy altos flujos con un riesgo poco compensable; la cantidad de ^{135}Cs en la descarga es pequeña ($\leftarrow ^{135}\text{Xe}$) aportando pocos curios; el ^{151}Sm se transmuta rápidamente debido a su gran sección eficaz; y la ventaja de la transmutación del ^{93}Zr y del ^{107}Pd es pequeña dado que producen partículas poco energéticas y de poco riesgo. Un aspecto crítico al considerar la efectividad de la transmutación es la capacidad necesaria de **separación isotópica**, imprescindible para una óptima economía neutrónica y por razones de seguridad.

La remoción será preferentemente continua, para lo que los productos de fisión por un lado, y los actínidos por otro, se transportarán a través de un fluido conductor (sales fundidas/actínidos; fluoruros, carbonatos o los menos convenientes sulfatos (σ 's del S)/productos de fisión). No habría razón para que los productos de fisión de cada especie no puedan ser transmutados separada y secuencialmente. Otra motivación importante para la separación es la posible presencia de otros isótopos estables del mismo elemento que se desea eliminar, lo que puede dar lugar simultáneamente a la generación del isótopo problema a la vez que está siendo transmutado. Por ejemplo, en la transmutación del ^{107}Pd se pasa de necesitar 20 neutrones por

F III Dependencia de la vida media efectiva con el flujo neutrónico térmico.





F IV Flujo y tasa de transmutación de Actínidos función de la fracción Espectro térmico de carga del actínido-metal. Transmutación conjunta del ^{99}Tc .

átomo sin separación, a sólo 2 con previa separación de los otros isótopos del Pd.

La bondad de una planta de transmutación está asociada a la disponibilidad de suficiente volumen de irradiación que contenga el menor inventario posible de residuos, en un grado tal de dilución que se den las condiciones requeridas de criticidad y seguridad de operación del sistema. En este aspecto se demuestra una importante ventaja a favor de los sistemas de muy alto flujo térmico frente a las propuestas de espectro rápido. La figura IV muestra el valor del flujo y tasa de fisiones del ^{237}Np , transmutado conjuntamente con el ^{99}Tc en un **espectro térmico** típico de soluciones como el Accelerator Transmutation of Wastes (ATW) (ver sección siguiente). La variable independiente es la fracción de dilución (carga) del actínido-metal (en este caso ^{237}Np) en el volumen de irradiación, indicando el valor unidad que todo el sistema es ^{237}Np metal sólido. Para una carga de 10^{-4} los neutrones por fisión comienzan a ser significativos en comparación con los de las reacciones de espalación, y el flujo total aumenta. Para 2×10^{-4} de carga el sistema entraría en una fase oscilatoria que le conduciría a un estado supercrítico; para valores superiores a 2×10^{-3} la absorción en el ^{237}Np es lo suficientemente alta como para que el nuevo isótopo ^{238}Np (¡concentración!) comience a decaer antes de que el segundo neutrón necesario lo fisione. Los valores del flujo y fisiones disminuyen hasta fracciones de 0,1. Si la carga continúa aumentando el sistema se aproxima a criticidad debido fundamentalmente a

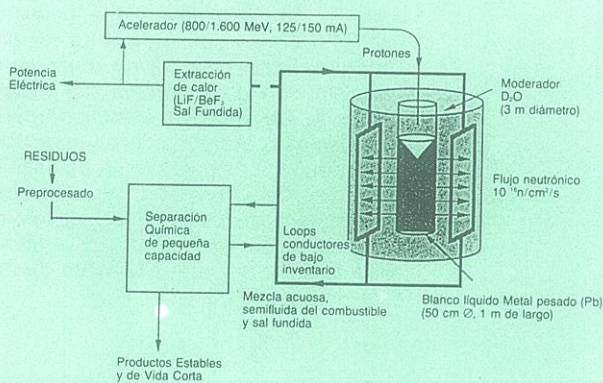
los **neutrones rápidos**. Esta es la región en que han sido diseñados la mayor parte de los conceptos transmutadores rápidos. Los números encuadrados en la figura IV corresponden a los valores alcanzables para una carga de 1×10^{-4} y un flujo térmico de $1,3 \times 10^{16} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Hasta 500 kg/año de ^{237}Np con sólo un inventario de 9,9 kg, y 207 kg/año de ^{99}Tc con 26 kg de inventario, suponen razones de soporte entorno a los 20 reactores PWR. En un sistema clásico (¿?) basado en la región rápida del espectro, obtener esta tasa de transmutación supone (parte derecha de la figura) cargas de 0,5 lo que corresponde a un inventario superior en unas 100 veces.

CONCEPTOS TECNOLÓGICOS

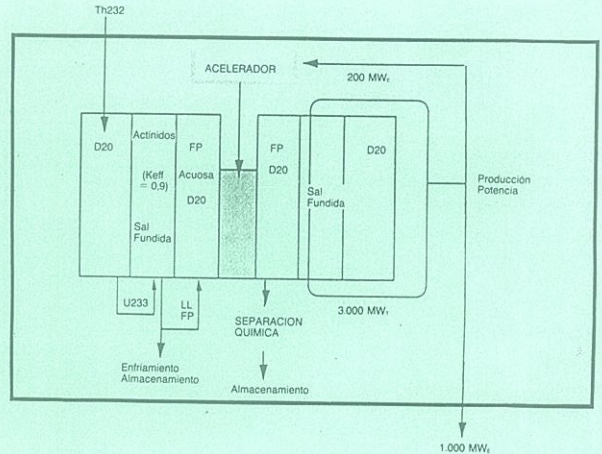
Los conceptos de sistemas transmutadores de residuos radiactivos no son nuevos y en la bibliografía se pueden encontrar ejemplos que nos remontan a la década de los cincuenta y sesenta. Interesantes referencias históricas pueden encontrarse en Schmidt (8), Bonnaure (9), Konashi et al., p. 664 en (6), Takahashi p. 657 en (6). Se ha propuesto el uso de transmutaciones no inducidas por neutrones (reacciones nucleares con partículas cargadas, excitación coulombiana, procesos fotónicos), y las más efectivas con neutrones provenientes de: **reacciones de espalación producidas en un blanco pesado por proto-**

nes acelerados; reactores de fisión (típicamente rápidos); reactores de fusión (inercial (4), magnético (8)) o híbridos; explosiones termonucleares (referencias en Schmidt (8)). Tres conceptos se consideran actualmente más realistas y de referencia: **Accelerator Transmutation of Waste (ATW)** propuesto por el laboratorio de Los Alamos (EUA) que representa al sistema basado en acelerador de protones y reacciones de espalación, con envoltura de **espectro térmico**; el **proyecto OMEGA (Options for Making Extra Gains from Actinides and fission products)** lanzado por el Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI/Japón), también basado en acelerador de protones y espalación, pero de **espectro neutrónico rápido** en la envoltura transmutadora; y un **transmutador basado en el Particle Bed Reactor (PBR)** concebido en el laboratorio de Brookhaven (EUA) y que se asocia a la idea de un reactor de **espectro rápido** con tecnología relacionada con los reactores de alta temperatura (HTGR).

El ATW (5) (Arthur et al., Cappiello et al., Lawrence et al., en (6); Cappiello et al., H. G. Hughes et al., LaBauve et al., Wilson et al., Rider et al., en (3)), figuras V y VI, es un concepto basado en un acelerador de protones (800/1.600 MeV) con corrientes que, según uso y diferentes alternativas, podrían estar entre los 30/50 mA hasta 125/150 mA, que incide en un blanco de Pb preferentemente líquido (¿sólido?). Teniendo como fuente las reacciones de espalación originadas en el blanco se calcula disponer de flujos en la zona limítrofe con el Pb de $5 \times 10^{15} - 10^{16} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$. El sistema ha sido inicialmente concebido para la transmutación de los 2.000 kg. de Tc y I, y los cerca de 700 Kg. de actínidos (Pu, Np, Am) existentes en un volumen de unos 200.000 m³ (residuos de aplicaciones militares) en la planta de Hanford (EUA), y extensible a las de Savannah e Idaho. En este diseño, el sistema operaría con una corriente de 50 mA y una capacidad de transmutación de 70 kg/año de productos de fisión y 17 kg/año de actínidos, con una potencia neta asociada a la planta de unos 40 MW. En paralelo se está completando un diseño a gran escala, pensado no sólo para la transmutación de residuos, **sino además para la obtención de energía neta en torno a los 1.000 MWe**. La *envoltura* del blanco está dividida en tres secciones cilíndricas co-axiales, de manera similar, pero con distinto llenado, según el objetivo. Los productos de fisión de secciones eficaces más bajas fluyen como sales en la **zona más interna** y de mayor flujo neutrónico, donde la existencia del D₂O modera el espectro. El flujo aquí deberá ser el más alto, incentivado por las fisiones de otras zonas y con una componente epitérmica importante que ayuda a la transmutación. La *zona intermedia*



F V Esquema del sistema Accelerator Transmutation of Waste (ATW) ilustrando los componentes críticos, Los Alamos (USA).



F VI Esquema del Accelerator Transmutation of Waste (ATW) como sistema transmutador y generador de energía, Los Alamos (USA).

conducirá/contendrá las sales fundidas (también extractor de energía en el sistema de potencia) de los actínidos; en ella habrá un menor flujo térmico, de manera que quizás el valor usado en la figura IV esté sobreestimado. Se calculan tasas de transmutación muy razonables que nos situarían en el soporte de unos **10 reactores PWR, pero con un bajo inventario**. La zona externa contiene D_2O y los productos de fisión de mayor sección eficaz y, en el caso del concepto de potencia, también se dispondrá el torio natural que generará el combustible ^{233}U . Los sistemas de circulación y cambiadores de calor actúan de manera separada y los productos de fisión generados en la zona intermedia son purgados pasando a alimentar los flujos de las otras zonas. Una reducida planta radioquímica tratará los productos extraídos de los loops conductores, procediendo a la separación química ya mencionada.

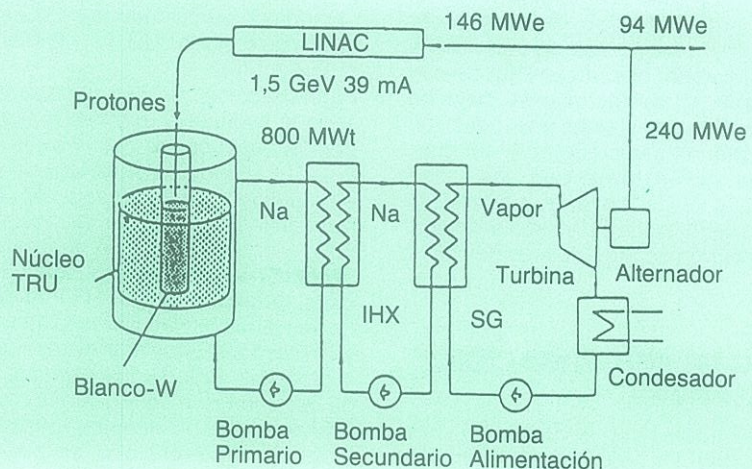
El OMEGA (Takada et al., p. 673 en (6); Takizuka et al., p. 70 en (2), figura VII, es un sistema basado también en las reacciones de espalación inducidas por una corriente (39 mA) de protones (1,5 GeV) incidiendo en un blanco de Wolframio de 1,4 m de alto y 0,4 m de diámetro. Este blanco está rodeado del combustible metálico de actínidos para producir un espectro rápido de neutrones. El combustible consiste en dos clases de aleaciones Np-15pu-30Zr y AmCm-35Pu-10Y.

La inclusión del Pu se debe a consideraciones de reactividad, y el sistema opera con una k_{eff} de 0,9. La tabla IV resume las características más notables de este concepto, donde se propone recuperar ≈ 100 MWe, siendo el quemado de actínidos calculado equivalente a la descarga de unos 10 reactores LWR, pero con mayor inventario que el ATW.

T IV CARACTERÍSTICAS DEL PROYECTO OMEGA

Carga Actínidos	3.160 kg
k_{eff} inicial	0,89
Corriente del Haz (máx.)	39 mA
Flujo neutrónico ($>0,1$ MeV)	$4,0 \times 10^{15}$ n/cm ² /sec
Número de Neutrones	69%
Número de Fisiones (>15 MeV) (<15 MeV)	40 neutrones/protón
Potencia térmica	0,45 fisiones/protón
Densidad de potencia (máx.) (media)	100 fisiones/protón
Potencia lineal (máx.)	800 MWt
Tasa de operación al año	920 W/cm ³
Quemado anual actínidos	400 W/cm ³
	60 kW/cm ³
	300 días (80%)
	250 kg

F VII Diagrama de un sistema de Transmutación de Actínidos (OMEGA) basado en un acelerador de protones, JAERI (Japón).



T V

CARACTERISTICAS IMPORTANTES DE UN REACTOR TRANSMUTADOR DE ACTINIDOS TIPO "PARTICLE BED REACTOR" (PBR)

Moderador	D ₂ O	
Número de elementos de Pu (Fuente)	72	
Número de elementos de Actínidos (Blanco)	42	
Potencia en elementos Fuente @ 5 MW th/l; MWth	1.080	
(Flujo medio) _{fuentes} /(Flujo medio) _{fuentes}	0,86	
K-eff (limpio)	1.040 +/-0,005	
Blanco [Flujo (E > 5,5 KeV)/Flujo total]	0,39	
Carga Inicial, Kg		
Plutonio	30,0	
Neptunio	7,3	
Americio	9,9	
Curio	0,3	
Total Actínidos (no-Pu)	17,5	
Carga final después de 20 días @ ϕ (fuente) = ϕ (blanco), Kg.		
Plutonio	8,77 (1)	9,86 (2)
Neptunio	2,46	1,64
Americio	1,84	2,10
Curio	6,89	3,45
Actínidos total (no Pu)	11,19	7,19

(1) Espectro Pu/LWR.

(2) Espectro FFTF.

El concepto basado en un PBR (Todosow et al. p. 678 en (6)) consiste en un núcleo cargado con 72/85 elementos de plutonio (fuente) para controlar la criticidad, y 42 elementos conteniendo los otros actínidos (blanco) que se desean transmutar. El conjunto se encuentra inmerso en D₂O a baja temperatura (ó carburo de berilio en su versión sólida) que actúa como moderador/reflector. Los elementos consisten en una "cama" de las correspondientes partículas dentro de un anillo cilíndrico rodeado por dos anillos co-axiales (central y externo) por los que circula el refrigerante He. La separación entre los anillos es de un material poroso, de manera que el He (que circula verticalmente en sentido descendente) pueda fluir radialmente a través del combustible/blanco para ascender por el canal central. Las características del transmutador basado en PBR se dan en la tabla V, destacando su tasa de transmutación que supone una reducción de la mitad del inventario en ≈ 20 días, magnitud comparable con los otros diseños, y un inventario ciertamente reducido de 50 kg de Pu y otros actínidos. El flujo neutrónico previsible es de $\approx 10^{16}$ n.cm⁻².s⁻¹.

AREAS DE INVESTIGACION E INICIATIVAS

La investigación de la transmutación nuclear en el *tratamiento* de residuos no

ha hecho más que comenzar desde el punto de vista tecnológico, y aún básico. A pesar de todo lo escrito sobre el tema, no ha emergido claramente un único rango de operación neutrónica. Esta definición debe salir del cálculo detallado de las cadenas de transmutación acoplado a un riguroso análisis de transporte neutrónico, criticidad, y datos nucleares. El desarrollo de esta investigación abarca áreas de **neutrónica, gestión del combustible, activación neutrónica, daño de materiales por irradiación, física nuclear de energías intermedias, efectos de corrosión y radioquímica**. Temas éstos en los que el Instituto de Fusión Nuclear, debido a su trabajo en áreas disciplinariamente afines, mantiene métodos y modelos adecuados, habiendo contribuido puntualmente en la transmutación de residuos (10, 11, 12, Piera et al. p. 964 en (6)).

Algunos países se han tomado muy en serio la evaluación primero, y la investigación después, de esta vía. Así en los Estados Unidos de América, se espera el resultado de la evaluación que la Academia Nacional de Ciencias, motivada por el DoE, está realizando de algunas de las ideas expuestas (ATW) y otras, pudiendo concluir con la decisión de iniciar una instalación piloto. Japón ya inicio hace años el proyecto OMEGA, y progresa multidisciplinariamente dentro de esa línea, evaluando también alternativamente los conceptos basados en reactores. En Francia se ha iniciado por orden parlamentaria un estudio-evaluación

del concepto de la transmutación de residuos radiactivos y su influencia en el ciclo de gestión, debiendo situar el alcance de esta idea. Finalmente, la OCDE a través de su Agencia para la Energía Nuclear (NEA) ha lanzado un programa de comparación de códigos nucleares de energías intermedias para investigar las incertidumbres asociadas a los cálculos actuales en la determinación del flujo, espectro y elementos transmutantes a partir de las reacciones de espalación motivadas por protones acelerados en diversos blancos de materiales pesados.

REFERENCIAS

1. "Summary of Nuclear Power and Fuel Cycle Data in OECD Member Countries". Nuclear Energy Agency (1986).
2. "Emerging Nuclear Energy Systems 1989". U. von Möllendorf, B. Goel, Eds., World Scientific Pub. (1990).
3. "Transaction of the American Nuclear Society". Volume 63 (1991).
4. J. D. LEE et al.: "Use of Inertial Fusion Energy to reduce the hazard of fission reactor waste", presented to IEEE/NPSS 14th Symposium on Fusion Engineering, October 2 (1991).
5. C. D. BOWMAN et al.: "Nuclear Energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source". LA-UR-91-2601, Los Alamos (1991).
6. "Fusion Technology". Volume 20, December (1991).
7. L. A. Mc VEY et al.: J. of Radioanalytical Chemistry 76, 131 (1983).
8. E. SCHMIDT: "Nuclear transmutation of radioactive waste: a review of the state of the art". Technical Note N.º I.05.00.85.175, JRC Ispra (Italy) (December 1985).
9. P. BONNAURE, H. RIEF, P. MANDRILLON y H. TAKAHASHI: "Actinide transmutation by spallation in the light of recent cyclotron development". NEACRP-A-910, Nuclear Energy Agency (1987).
10. E. MINGUEZ: Energía Nuclear 119, 159 (1979).
11. M. PIERA et al.: "Transmutación de actínidos y gestión integral del ciclo de combustible mediante reactores híbridos". Ponencia en la XIII Reunión Anual de la SNE (1987).
12. J. M. PERLADO, M. PIERA, J. SANZ: Journal of Fusion Energy 8, N.º 3/4, 181 (1989).

* (Se dan volúmenes por referencias adicionales/autor específico en el texto.)