

LOS RESIDUOS NUCLEARES Y SU TRANSMUTACIÓN

J. M^a. MARTÍNEZ-VAL - P. T. LEÓN

Este artículo aborda el tema de la radiotoxicidad de los residuos nucleares, que representa un problema social y ético de considerable repercusión. Una posible forma de aliviar este problema es utilizar estos residuos como combustible nuclear, en nuevos diseños de reactores subcríticos accionados por acelerador (A.D.S.). Ello permite la eliminación de los isótopos considerados peligrosos, aliviando las exigencias de un futuro almacenamiento geológico profundo (A.G.P.). En este artículo se presenta un modelo de A.D.S., el reactor de lecho de bolas, que presenta características muy esperanzadoras para su utilización como transmutador del combustible nuclear gastado.

The problem of nuclear waste radiotoxicity presents very important ethical and social implications. A possible way to alleviate this problem is to use these isotopes as nuclear fuel, in state of the art subcritical reactors designs, driven by an accelerator (A.D.S.). This permits the elimination of the hazardous isotopes, alleviating the requirements of a future Deep Geological Storage (D.G.S.). This article presents an A.D.S. model, the Pebble Bed Reactor, which presents very promising characteristics to be used as a transmutator of nuclear spent fuel.

INTRODUCCIÓN

En el principio del desarrollo de la energía nuclear con fines comerciales, no se consideró prioritario el problema de los residuos nucleares aparecidos durante la explotación de las centrales nucleares. La radiactividad y sus efectos biológicos eran temas conocidos, pero la problemática de los residuos se desplazó hasta cuando hubiera necesidad real o social de abordar el caso. Este momento ya ha llegado, al menos en lo que a preocupación social y política se refiere. Desde el impacto social creado por el accidente de Chernobyl, la opinión respecto a la energía nuclear, y particularmente a la radiactividad, ha variado en sentido negativo. Posiblemente, este cambio no esté completamente justificado. Sin embargo, e independientemente de que haya o no presión social, los ingenieros de-

bemos ofrecer las máximas garantías de seguridad compatibles con el estado del arte y la justificación económica de las instalaciones. Después de muchos años de actividad, y del acercamiento del final de la vida útil de algunas centrales, ha llegado el momento de dar soluciones a uno de los grandes problemas actuales de la energía nuclear, los residuos. Si bien la necesidad de un Almacenamiento Geológico Profundo parece básica en cualquiera de las soluciones empleadas, la posibilidad de reducir el inventario radiactivo y la potencia residual de los residuos abre nuevas vías de estudio que pueden paliar el problema. Es aquí donde nace la idea de la transmutación, como medio de minorar el impacto de los residuos en el medio ambiente, especialmente en el largo plazo. La posibilidad de introducir medidas de seguridad adicionales en nuevos diseños de transmutación permite que este nuevo concepto pueda tener una mayor aceptación pública, hecho fundamental si se desea poner la idea en práctica.

LA RADIATIVIDAD GENERADA EN LA ENERGÍA NUCLEAR

La explotación de la energía contenida en los núcleos atómicos conlleva la aparición de radioactividad, lo cual puede analizarse como sigue:

Radiactividad del propio combustible.

Los reactores nucleares actuales son en su mayoría reactores de agua ligera

(L.W.R.), que necesitan como combustible uranio enriquecido. El uranio es un elemento químico presente en la naturaleza, y como la mayoría de los elementos está formado por distintos isótopos. Los isótopos del Uranio son radiactivos, por lo que aparecen otros elemento debido a desintegraciones de los isótopos que componían la mena original. Una tonelada de Uranio conteniendo exclusivamente isótopos de Uranio tiene una actividad de 0,3 curios, correspondiendo a una potencia de 0.018 W. Si incluimos la actividad de todos los isótopos que aparecen naturalmente con él, tenemos una actividad de 4,2 curios por tonelada. Esta actividad total resulta en una potencia radiativa de 0,1 W por tonelada de Uranio. Puesto que en el combustible no deben aparecer estos isótopos, se eliminan del mismo. En el proceso de limpieza del combustible nuclear se producen 3,9 curios por tonelada de Uranio.

Radiactividad del proceso de enriquecimiento.

Las reacciones que producen la potencia en un reactor nuclear son de fisión. La probabilidad de fisión del U238 es muy baja, mientras que la del isótopo U235 es muy alta, especialmente con neutrones térmicos. En los reactores L.W.R. se necesita una concentración mucho mayor de U235 que la que aparece en la mena natural de uranio. Hay que realizar un proceso de "enriquecimiento" del combustible nuclear, para aumentar la proporción de U235 hasta un 3,5 %. Para llevar a cabo este enriquecimiento, se necesitan

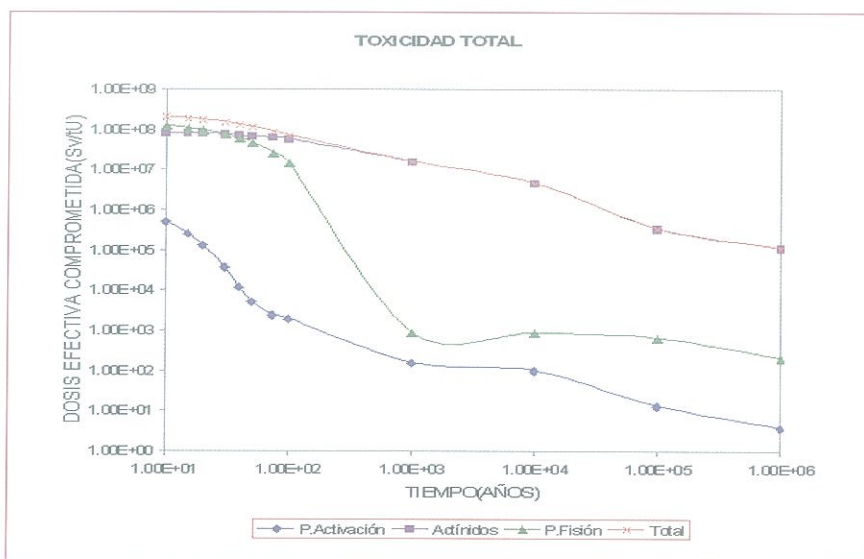


Figura 1. Radiotoxicidad del combustible gastado, tras su irradiación a 40 GWdia/ton.

unas siete toneladas de Uranio inicial para conseguir una tonelada de Uranio enriquecido. Por lo tanto, se extraen seis toneladas de uranio natural con una potencia radioactiva asociada de 0,6 W. Para producir una tonelada de Uranio enriquecido (con un curio de actividad) se obtiene una actividad residual de 28,4 curios en los residuos de estas fases pre-reactor.

Radiactividad aparecida en el reactor nuclear.

Esta etapa es la que produce una mayor actividad de todas las que forman el ciclo del combustible. De hecho, podría considerarse como una amplificación muy fuerte de la radiactividad natural del combustible. En un reactor nuclear aparecen básicamente tres tipos de isótopos radiactivos: productos de fisión, productos de activación y actínidos.

Después de un quemado de 40 GWdia/ton_Uranio, que es la energía extraída del combustible al final de su utilización a su paso por el reactor, la potencia radioactiva de salida del combustible alcanza 2 MW/ton_uranio. Se ha pasado, en el combustible, de 0,02 W/ton a 2 MW/ton, lo que significa una multiplicación de 10^8 . Si se parte del inicio, donde se necesitaban 7 toneladas de uranio natural para producir 1 tonelada de uranio enriquecido, se tiene 0,7W. de partida para obtener finalmente 2 MW por tonelada de uranio irradiado. Es decir, cerca de 3 millones de veces superior. Los contribuidores de la radiotoxicidad vienen representados en la figura 1.

En el corto plazo ($t < 100$ años) los principales contribuidores de la dosis son los productos de fisión y los actínidos (Uranio, Neptunio, Americio,

Curio, etc.). A partir de los 100 años, el principal contribuidor de la dosis son los actínidos, con mucha diferencia sobre los productos de fisión y los productos de activación.

En esta gráfica se comprueba el gran problema que supone el almacenamiento geológico del combustible sin ningún reprocesamiento del mismo. La radiotoxicidad es muy alta incluso después de un millón de años, lo que supone una emisión de energía nada despreciable. Además, en estudios de la evolución isotópica del combustible tras el quemado, se comprueba que la capacidad de automantener la cadena de reacciones en el combustible gastado puede llegar a aumentar con el tiempo, debido a que en las cadenas de desintegración pueden aparecer isótopos como el Pu239, con gran probabilidad de fisión. La conveniencia de la

separación y transmutación de algunos isótopos parece pues clara. Es importante comparar estos valores con el Uranio Natural. La radiotoxicidad de este último es de $2 \cdot 10^5$ Sv/ton_U, teniendo en cuenta el Uranio con toda su progenie radiactiva (aparecida de forma natural).

También es importante tener en cuenta la escala de tiempos. Los productos de fisión necesitarían unos 500 años para alcanzar valores de radiotoxicidad similares a las del uranio natural. El tener un almacenamiento controlado y seguro durante este intervalo de tiempo parece factible, si tenemos en cuenta que muchas obras humanas han perdurado un tiempo mucho mayor que éste. Sin embargo, es muy difícil calcular qué puede ocurrir en un millón de años. Bien es cierto que se han llevado a cabo estudios de distintas zonas posibles de albergar un almacenamiento y que sean estables durante este enorme intervalo de tiempo, encontrándose distintas soluciones (formaciones salinas, etc.). Sin embargo, la posibilidad de que cambios en la geometría que adopte el combustible con el paso del tiempo puedan llevar a estados críticos del mismo, el problema de la proliferación nuclear (por el isótopo plutonio 239), junto de la incertidumbre que acompaña a estos enormes intervalos de tiempo, hace que la posibilidad de almacenar los residuos sin ningún tratamiento posterior configure un escenario de mayor riesgo que el natural.

De estos datos se obtiene como conclusión que el principal problema proviene de los actínidos, ya que con su transmutación conseguiríamos eliminar el problema de la criticidad, la

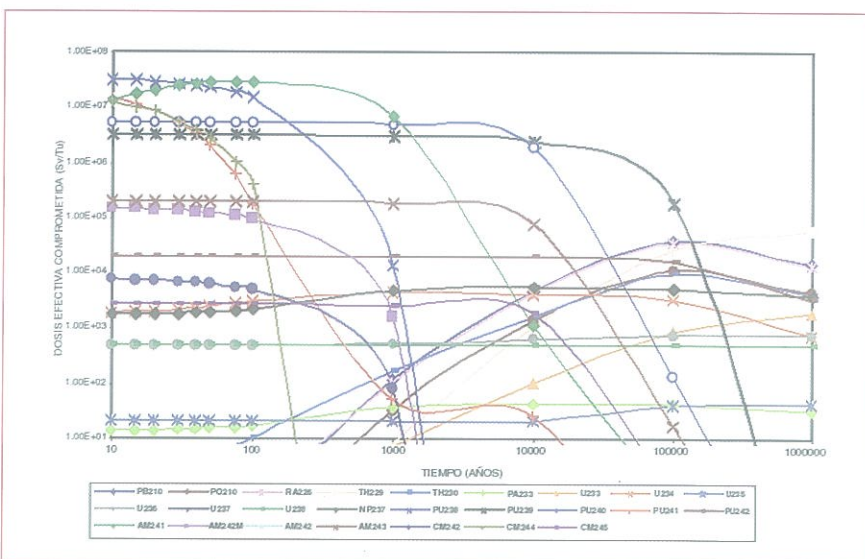


Figura 2. Radiotoxicidad de los principales actínidos en el combustible irradiado.

Tabla 1.
Composición isotópica de los TRU considerados para transmutación, descargados de un reactor L.W.R. tras 30 GW•día/ton de combustible.

Isótopo	Masa de descarga L.W.R. (kg/ton U)	porcentaje %
Np 237	0,47	4,924
Pu 238	0,16	1,680
Pu 239	5,19	54,482
Pu 240	2,17	22,780
Pu 241	0,515	5,406
Pu 242	0,35	3,674
Am 241	0,54	5,669
Am 243	0,09	0,945
Cm 242	0,01	0,105
Cm 244	0,031	0,325

no se detallan los distintos métodos de separación, aunque se debe señalar que se están consiguiendo buenos resultados en la separación de actínidos y productos de fisión de vida larga.

TRANSMUTACIÓN

Un diseño de reactor nuclear que presenta enormes ventajas tanto en seguridad como en flexibilidad para la transmutación son los ADS (Accelerator Driven Systems). Este diseño consiste en un reactor subcrítico (la composición isotópica del combustible y su geometría hace que no se pueda mantener la reacción en cadena y la población neutrónica decaiga muy rápidamente), activado por una fuente neutrónica externa, necesaria para mantener el nivel de flujo neutrónico en el interior del reactor para conseguir una elevada tasa de transmutación. Las ventajas de este diseño son las siguientes:

- **Características de seguridad excelentes.** Al tratarse de un reactor subcrítico, cortando la fuente externa de neutrones (ésto se puede realizar con suma facilidad) la población neutrónica del reactor y por lo tanto la potencia desaparecen en tiempos extremadamente cortos. Garantizando bajo cualquier circunstancia la subcriticidad del conjunto (basta con partir de un k_{ef} suficientemente baja), el riesgo de un accidente como el ocurrido en Chernobyl se hace inherentemente nulo.

- **Flexibilidad en el funcionamiento.** Este diseño presenta la ventaja de tener un grado de libertad adicional con la fuente. En diseños críticos, donde la k_{ef} debe permanecer en un valor fijo e igual a la unidad, no se tiene este gra-

do de libertad, que es aprovechable básicamente para una configuración óptima del espectro,

- **Menor influencia del bajo porcentaje de neutrones diferidos en el reactor.** En reactores críticos, es fundamental el parámetro β , que mide el porcentaje de diferidos para un determinado combustible. En un transmutador, se cargará combustible (plutonio y actínidos menores) con una β muy baja. Esto, que es un problema muy grave en reactores críticos, no lo es tal en reactores subcríticos, ya que la k_{ef} está suficientemente lejos de la unidad como para no alcanzar nunca un valor de criticidad pronta.

- **Flexibilidad en el diseño.** La posibilidad de transmutar todos los isótopos cargados en el reactor dependerá del tipo de espectro (rápido, epitérmico o térmico) que se obtenga en el reactor. En el caso de un reactor crítico, la necesidad de diseño básica de una k_{ef} igual a la unidad deja muy poca libertad para elegir el tipo de espectro que se va a desarrollar en el reactor. Además, tampoco deja libertad a la hora de elegir la composición isotópica del combustible, algo que puede ser importante si se quiere transmutar todo el inventario isotópico de un parque nuclear. En el caso de reactor subcrítico, no se tiene esta traba en el diseño, con lo que el espectro obtenido y la composición isotópica del combustible pueden variarse en función de las necesidades que existan en cada caso. Estas ventajas hacen que el diseño de los ADS sea muy atractivo para la transmutación. Se están realizando estudios en distintos países, como se detalla a continuación:

- **Unión Europea.** La Unión europea comenzó a interesarse por los estudios de P&T (Partitioning and Transmutation) en el IV Programa Marco, en el que dedicó una modesta cantidad (4 MEuros) a diversos estudios, particularmente el experimento TARC efectuado en el CERN bajo la dirección de Carlo Rubia, y con notoria participación española. En este experimento se comprobó la eficacia del método denominado Adiabatic Resonance Crossing para transmutar Tc-99 (en Ru-100, isótopo estable).

En el V Programa Marco (1999-2002) la U.E. ha aumentado considerablemente el presupuesto dedicado a P&T, elevándolo a 26 MEuro, y ello ha estimulado el interés de la transmutación no sólo de los centros de investigación que ya estaban dedicados a

ello, sino a empresas industriales del sector nuclear que, inicialmente, se habían mostrado muy reacias a dedicar sus esfuerzos a P&T. No obstante, en la primera convocatoria (1999) se han seleccionado prioritariamente las propuestas del tipo científico y experimental, tanto en el área de Física Nuclear (medidas de secciones eficaces en las fuentes de espalación y en ciertos blancos de actínidos), de materiales (Plomo, Pb/Bi, estudios de corrosión etc.) y de química (estudios de separación).

En la segunda convocatoria (2001) se prestará mayor atención a los diseños conceptuales y análisis de los efectos del quemado de los A.D.S. en la reducción de la radiotoxicidad residual.

Paralelamente a los cometidos oficiales de la U.E., existe un Technical Working Group liderado por Carlo Rubbia (TWG-CR) en el que participan países de la U.E. y que tiene como objetivo fundamental coordinar las actividades y elaborar un Road Mapping que sirva a los intereses, un tanto contrapuestos, de los países participantes, que son: Italia, Francia, Alemania, Bélgica, Austria, Suecia, Portugal y España, más el Joint Research Center de la U.E. (sobre todo, el instituto de transuránidos de Karlsruhe). Es de notar la participación de dos países sin energía nuclear (Austria y Portugal) que están presentes por razones de interés científico.

- **España.** Oficialmente la Transmutación se incorporó de manera explícita al 4º Plan de I+D de ENRESA (1999-2002) aunque anteriormente había prestado cierta atención al tema (por ejemplo, había sido patrocinadora parcial de los equipos españoles en el experimento TARC). Para ENRESA trabajan fundamentalmente el CIEMAT y la Universidad Politécnica de Madrid (U.P.M.), esta última a través de la Fundación para el Fomento de la Innovación Industrial.

Aunque inicialmente las investigaciones se centraron en los A.D.S. con plomo fundido (o Pb/Bi), en la actualidad el equipo de la UPM-FI² se orienta más a un tipo de transmutador basado en un reactor subcrítico de lecho de bolas, siendo éstas de una matriz de grafito, en cuya parte más interna se diluye una cierta cantidad de transuránidos para que se consuman, al tiempo que hacen de combustible. En un epígrafe posterior se da una reseña de este diseño conceptual.

Dentro de las actividades españolas hay que mencionar la existencia de LA-ESA, sociedad que posee los derechos

para explotar las patentes de Carlo Rubbia referentes al Energy Amplifier, incluyendo las de transmutación, así como las del transmutador de lecho de bolas.

- **USA.** El departamento de Energía ha elaborado un famoso Roadmapping a instancias del Congreso de Estados Unidos, y en él se ha establecido las bases de un estudio muy sistemático de la transmutación por ADS, que allí se denomina ATW. Participan LANL, ANL y PNL sobre todo. Se estudian prototipos de ADS, basados en un reactor rápido refrigerado por eutécticos Pb/Bi, y combustible en matriz de zirconio. La fuente externa de neutrones es provista por reacciones de espalación, con un acelerador de protones de 1 GeV. y 10 mA.

- **Japón.** Dentro del programa OMEGA, JAERI está llevando a cabo estudios sobre ADS. Se están desarrollando dos tipos de reactores, con distintos combustibles, y se realizan también estudios sobre fuentes neutrónicas (LI-NAC de 1.5 GeV. Y 3mA.)

UN EJEMPLO DE TRANSMUTADOR: EL PBT

Uno de los diseños conceptuales que parece procedente estudiar en profundidad para evaluar sus prestaciones como Transmutador y sus características de Seguridad Nuclear es el reactor de Lecho de bolas, en configuración subcrítica y activado por acelerador.

Las bolas constitutivas de estos reactores estarían formadas por grafito pirolítico, salvo en su parte central, en la que estaría dispersado, posiblemente en forma de carburos, el combustible TRU. El radio de las bolas es de 3 cm, y el del núcleo activo de 1,5 cm en la versión más estudiada en este análisis, aunque dicho radio es uno de los parámetros fundamentales de diseño. Para valores muy bajos, de 0,5 cm, el espectro conformado no es recomendable, por la acumulación que se produce de transuránidos superiores.

Para valores muy altos de dicho radio, el espectro se hace altamente epitérmico, y la zona de resonancias adquiere mucha importancia neutrónica. Como resultado, la captura de Pu-240 a Pu-241 aparece muy favorecida, y se produce una acumulación de este último, así como de su secuela radiactiva (Am-241, Np-237, etc).

Una ventaja del PBT es que corresponde a un diseño específicamente pensado para eliminar Pu y demás TRU, en el cual es muy difícil proceder

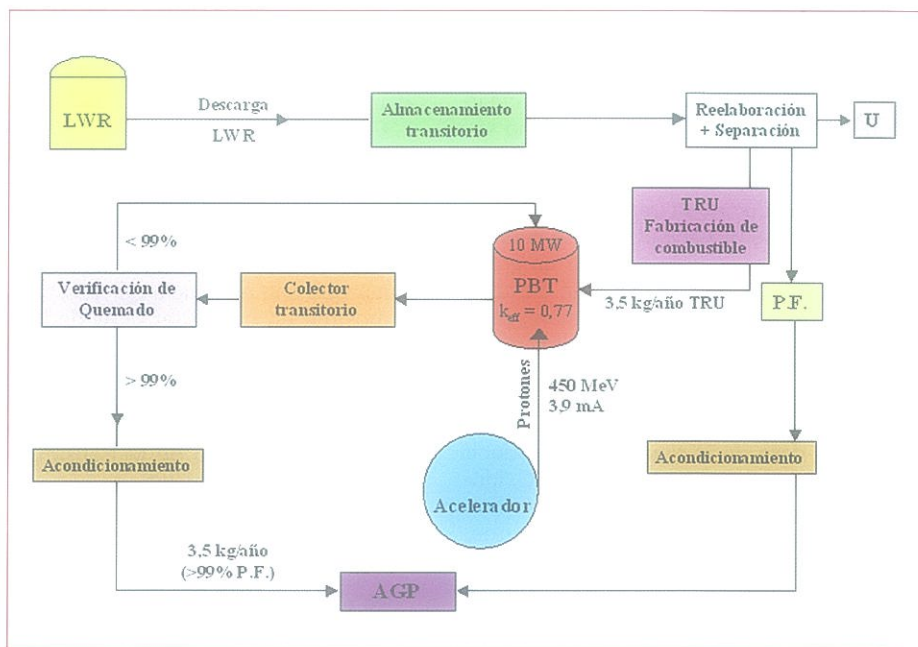


Figura 4. Ciclo de trabajo para transmutación en PBT.

a la reelaboración, por lo que aparece como muy resistente contra la sustracción de Pu (y por tanto, muy resistente contra la proliferación). Obviamente, el eslabón más débil en este sentido sería la planta de reelaboración del combustible comercial irradiado, donde convendría proceder a una extracción conjunta del Pu con los Actínidos Menores (AM).

Este transmutador está en principio pensado como eliminador de Pu principalmente, pero también podría usarse como eliminador de AM, en el caso en que el Pu se reciclara en reactores comerciales. La figura 4 muestra el tipo de ciclo de trabajo considerado en este caso, cuyo objetivo es reducir significativamente el contenido de TRU en

las bolas antes de su descarga final. Por razones operativas, las bolas han de desplazarse y reciclarse (sin reelaboración) en el reactor, con objeto de que las bolas ocupen su posición idónea en cada momento de quemado, tanto por su adecuación espectral como por su efecto en reactividad.

En la figura 5, se muestra la evolución con el quemado en el P.B.T. de los inventarios de los isótopos del Pu y de los demás transuránidos, agrupados éstos según su paridad nuclear (i=impares; p=pares).

Se aprecia que es factible llegar a una eliminación del 99.9% del Pu-239 con una fluencia neutrónica de 7.10^{22} n/cm². En este caso, la desaparición del Pu-240 sería mayor del 99%, y la del

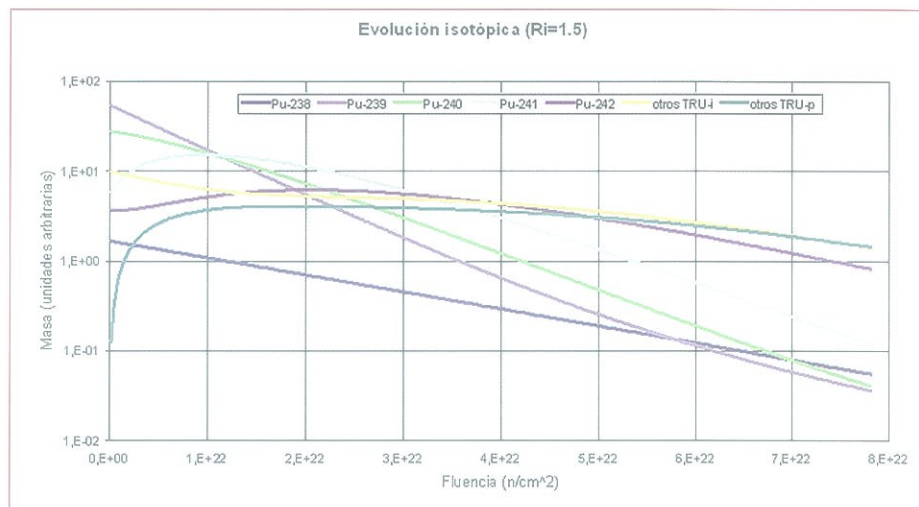


Figura 5. Evolución de los inventarios de los diversos nucleidos TRU considerados en el estudio de la transmutación en un PBT con Ri = 1,5 cm.

Pu-241 del orden del 95%. Incluso los actínidos de A superior también decaerían, aunque en menor proporción. En todo caso, el valor de la radiotoxicidad individual sería, de alcanzar dicho valor de irradiación, unos dos órdenes de magnitud por debajo de la que habría de no producirse la transmutación.

Obviamente cabe plantearse la cuestión de si es factible alcanzar un grado de quemado o irradiación tan elevado. En principio, parece ser posible, pues en cada bola (de 3 cm. de radio en este diseño) sólo se cargarían 2 gr. de TRU como combustible, estando éstos disueltos en la zona central ($R_i = 1,5$ cm. en el caso de la figura) para producir un espectro neutrónico tipo TARC, idóneo para una eliminación lo más uniforme posible de estos isótopos. Ciertamente el quemado será muy elevado medido en masa de combustible (~ 990 Mwdia/kg), pero será mucho menor si se mide por el peso total de la bola, pues será el grafito quien haya de soportar los efectos globales de irradiación, incluyendo la retención de los productos de fisión generados. Tomando esta referencia de masa, el quemado no llega a 10 Mwdia/kg de matriz total de combustible.

En cuanto al tiempo requerido para llegar a este nivel de irradiación, con un flujo neutrónico total de 10^{15} n/cm².seg., harían falta $7 \cdot 10^7$ seg., es decir, algo más de dos años a plena potencia equivalente, lo cual parece una cifra adecuada en el concepto nuclear.

Las bolas así irradiadas, con un contenido residual de actínidos muy pequeño ($< 1\%$ del inicial), tendrían una carga de cerca de 2 gr. de productos de fisión, que quedarían allí retenidos (todos, incluidos los gaseosos) si la temperatura de las bolas no excede los 1.800 °C. Este es pues un requisito fundamental de la seguridad nuclear de este aparato, que ya se ha comenzado a analizar, y que en principio parece puede cumplirse incluso en condiciones accidentales extremadamente severas. En la ponencia "Estudios básicos de transmutadores de residuo de vida larga: modelos neutrónicos", de José María Martínez-Val et al., en las IV Jornadas de I+D de ENRESA (Barcelona, Noviembre de 2000), se puede encontrar más información al respecto. Baste añadir aquí que dichas bolas irradiadas (con su carga de TRU transmutados en productos de fisión que alcanzarían el nivel natural de en unos 400 años) serían destinadas directamente al AGP, con el acondicionamiento o revestimiento exterior que se considerara pertinente, pero sin ningún tipo de ree-

laboración química, pues el grafito de las bolas sería la mejor primera barrera de confinamiento de los productos radiactivos.

Como conclusión, cabe subrayar que los ADS están siendo objeto de un estudio intenso por parte de la comunidad internacional, lo que da una idea de la importancia que tiene su desarrollo para la transmutación. Conviene resaltar que una eficiencia del 100 % es imposible en cualquier actividad industrial, y por lo tanto la necesidad última de un Almacenamiento Geológico Profundo parece inevitable, aunque la posibilidad de aliviar sus requisitos técnicos con el uso de la transmutación resulta muy atractiva.

AGRADECIMIENTOS

En este artículo se han usado datos y documentos elaborados en el actual Convenio de Investigación ENRESA-F212, sobre transmutación.

BIBLIOGRAFÍA

Abánades, A et al., 1999. Neutron-Driven Nuclear Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing. CERN-LHC/98-12 (EET) and Report of the Contract F141-CT96-009 of Euratom 40 Framework Programme (U.E.).

Arnold, H. et al, 1999. Experimental Verification of Neutron Phenomenology in Lead and Transmutation by Adiabatic Resonance Crossing in Accelerator Driven Systems. Physics Letters B 458, 167-180

Barret, L. et al, 1999 "A road mapping for Developing Accelerator Transmutation of Waste (ATW) Technology" DOE/RW-0519 (USA / DOE).

Bowman, C.D. et al, 1992. "Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source". Nuclear Instr.and Methods A230, 336.

Kugeler, K., Schulten, R.: Hochtemperaturreaktortechnik, Springer Verlag, 1989.

Martínez-Val, J.M. et al, 1999. "An Analysis of the Thermal Behaviour of Pebble-Bed Nuclear Reactors in the Case of Emergencies", NEA-OECD Information Exchange Meeting on Basic Studies on High Temperature Engineering, Paris, September 27-29 (1999).

Rubbia, C., 1999. Resonance Enhanced Nuclear Waste Transmutation. Università de Pavia.

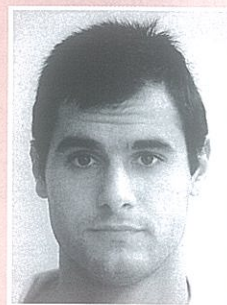
Ponencias de la 3ª conferencia ADT-TA (Accelerator Driven Transmutation and technology applications), Praga, Rep. Checa. (Junio 1999).

Ponencias de la 10ª Conferencia ICENES, Petten, Holanda (Septiembre 2000).

Ponencias de la 2ª Conferencia SA-FE-WASTE 2000. Montpellier, Francia (Septiembre 2000).



José María MARTÍNEZ-VAL es actualmente catedrático de la E.T.S. de Ingenieros Industriales de la U.P.M. (Madrid), ha sido director de esta escuela (1991-1995) y ha sido presidente de la S.N.E. (1987-1988). Actualmente es director de la Fundación para el Fomento de la Innovación Industrial (PFI), y vicepresidente del Comité Científico y Técnico de EURATOM.



Pablo T. LEÓN es Ingeniero Industrial (año 2000) por la E.T.S. de Ingenieros Industriales de la U.P.M. (Madrid), y ha sido becario del proyecto ENRESA de transmutación desde 1998. Actualmente es Ingeniero de la Fundación para el Fomento de la Innovación Industrial (PFI).