

Participación de ENRESA en programas de I+D sobre las distintas fases de la gestión del CG

J. A. Gago, A. Martínez-Esparza, F. J. Fernández

ENRESA ha elaborado una serie de planes de I+D con el fin de dar soporte a la gestión segura del combustible gastado realizada en España, que contempla una componente temporal (hasta 100 años) y una definitiva, para la cual la opción preferente contemplada en el actual PGRR es su disposición en una formación geológica profunda. Aunque ambos tipos de almacenamiento comparten puntos comunes, los estudios se focalizan en diferentes direcciones. En almacenamiento temporal interesa conocer el estado de la vaina después de la estancia en piscina, durante su posterior proceso de secado y etapa de almacenamiento en seco, atendiendo sobre todo a los procesos de fluencia y reorientación de hidruros que pudieran degradar sus propiedades mecánicas. En el almacenamiento definitivo, no se da crédito alguno a las vainas y se modela el comportamiento a largo plazo del combustible nuclear irradiado: estabilidad físico-química, disolución y liberación de radionucleidos, formación de fases secundarias en las condiciones esperadas en las distintas formaciones (granitos, arcillas, rocas salinas). En todos los casos se han formado equipos de trabajo nacionales y se ha participado en diversos proyectos y laboratorios internacionales, fundamentalmente europeos.

ENRESA has prepared a series of R&D plans with the aim of supporting the safe spent fuel management performed in Spain, which consists of an interim component (up to 100 years) and a definitive one, for which geological disposal is the preferential option considered in the current National Radwaste Management Plan. Even though both kinds of storage share some points in common, the studies are focused in different directions. For interim storage it is important to know the cladding behaviour and condition during in pool storage, drying process and subsequent dry storage period, the attention being focused in the creep and hydride reorientation processes which could degrade the cladding mechanical behaviour. In final disposal, no credit is given to the clad and the nuclear irradiated fuel long-term behaviour is modelled: physical and chemical stability, dissolution and release of radionuclides, secondary phase formation under the conditions expected in the different host rock formations (granite, clay, salt). In both cases, national research teams have been created which have participated in different projects and laboratories at an international level, mostly European ones.

El R.D. 1349/2003 de 31 de octubre sobre ordenación de las actividades de la Empresa Nacional de Residuos Radiactivos, S. A. (ENRESA) y su financiación asigna en su Artículo 4.1 a esta empresa, entre otros, los siguientes cometidos:

- a) Tratar y acondicionar los residuos radiactivos;
- b) Buscar emplazamientos, diseñar, construir y operar centros para el almacenamiento temporal y definitivo de los residuos radiactivos;
- i) Establecer los planes de Investigación y Desarrollo necesarios para el desempeño de sus cometidos.

Desde 1982 se sigue en España una práctica de ciclo abierto, que implica la gestión del *combustible gastado* (combustible irradiado descargado definitivamente de los reactores de las centrales nucleares para el cual el productor no tiene previsto ningún uso posterior) como residuo radiactivo. Esta gestión del combustible gastado, en adelante CG, comprende dos etapas claramente diferenciadas: la temporal y la definitiva.

Desde un punto de vista de la definición de programas de I+D sobre el combustible gastado, en su consideración como residuo radiactivo, ambas etapas comparten necesidades similares, como una buena caracterización isotópica del mismo, al tiempo que presentan singularidades que requieren de enfoques diferenciados, fundamentalmente centrados en la presencia y preservación de la vaina (de capital importancia para la etapa de almacenamiento temporal) y en la eventual disolución última del combustible, que actuaría como una barrera más en el complejo sistema multibarrera de un almacén geológico.

EL ALMACENAMIENTO TEMPORAL

El almacenamiento temporal puede tener lugar en medio húmedo, inicialmente en las propias piscinas de las centrales nucleares, o en seco (atmósfera inerte), como complemento a las piscinas o en instalaciones específicas, opción que ha cobrado auge en los últimos tiempos debido fundamentalmente a su carácter eminentemente pasivo.



JOSE ANTONIO GAGO. Ingeniero Industrial por la UPM. En la actualidad dirige el Departamento de Ingeniería de residuos de alta actividad DE ENRESA, al cargo de proyectos relacionados con el almacenamiento temporal, definitivo y otras opciones de gestión del combustible gastado y otros residuos de alta actividad. Dirige las actividades de I+D asociadas a la caracterización, comportamiento y tratamiento del combustible gastado y barreras de ingeniería asociadas.



AURORA MARTÍNEZ-ESPARZA. Química por la Universidad Complutense de Madrid. En la actualidad es Responsable de I+D de CG y Separación en el Departamento de Ingeniería de Residuos de Alta Actividad de ENRESA.



FRANCISCO JAVIER FERNÁNDEZ LÓPEZ. Ingeniero Industrial por la ETSII de la UPM. Ingeniero Civil Físico por la U. Libre de Bruselas. Actualmente trabaja en el Dpto. de Ingeniería de Residuos de Alta Actividad de ENRESA.

El almacenamiento temporal en seco implica que el combustible deberá ser recuperado en un futuro más o menos lejano, bien para su almacenamiento definitivo, bien para su reproceso o para otros usos, si procede. Para ello, las exigencias que se imponen al CG se pueden resumir en que, al final de su período de almacenamiento, éste no presente grandes daños y se pueda manejar de forma segura. Estas exigencias se trasladan, por tanto, a la vaina del CG, primera barrera de confinamiento estructural (después de la propia pastilla) para evitar la liberación de elementos radioactivos.

Durante el período de estancia en reactor, la vaina sufre las sollicitaciones más importantes que determinarán su comportamiento posterior: tensiones externas procedentes del refrigerante, tensiones internas debidas a los gases de relleno y a los gases de fisión, interacción mecánica entre pastillas y vainas, corrosión, hidruración, daño por irradiación neutrónica, etc. El período de estancia en piscina no supone diferencias con esta situación. La gran experiencia acumulada en almacenamiento en piscinas demuestra que, controlando la química del agua y manteniendo baja la temperatura, el estado de la vaina permanece básicamente inalterado.

En cambio, el proceso de almacenamiento en seco puede suponer ciertos cambios en el comportamiento de la vaina. Para efectuar la transición de húmedo a seco, previamente al almacenamiento, se debe secar el elemento combustible para evitar la existencia de agentes oxidantes en el contenedor o en la cápsula, antes de sellarlo en una atmósfera inerte. Caso de no realizarse adecuadamente, tanto el proceso de secado como el propio almacenamiento podrían provocar aumentos de temperatura de la vaina incluso por encima de los niveles de estancia en reactor. Los fenómenos a estudiar se concentran en estos aspectos: fluencia, debida al aumento de la presión de los gases internos no compensada por el refrigerante, y comportamiento de hidruros: disolución y reprecipitación, incluyendo una posible reorientación de los mismos que disminuya la resistencia mecánica de la vaina. Aunque se debería considerar el total de tiempo del almacenamiento temporal, en general, se puede reducir el problema al estudio de estos fenómenos cuando coincidan los parámetros (presión, temperatura, etc.) que pueden suponer un riesgo para la vaina.

A pesar de que empieza a haber un conocimiento importante del comportamiento de la vaina durante el almacenamiento temporal, quedan aún por conocer aspectos del mismo. Asimismo,

la tendencia actual de alcanzar altos quemados de combustible obliga a estudiar el comportamiento de nuevas aleaciones más resistentes a la corrosión como material de las vainas, que pudieran resultar más degradadas debido a estancias más largas en el reactor: mayores capas de óxido, mayor concentración de hidruros, mayor generación de gases internos, etc.

ENRESA participa en el marco de la plataforma CEIDEN en una serie de programas de I+D para aumentar el conocimiento de la vaina de cara a su almacenamiento temporal en seco, opción elegida tanto en los ATIs existentes como en el futuro ATC.

Debido a que en España no existen celdas calientes para el estudio de CG, se emplean los servicios de laboratorios internacionales para el análisis de vainas irradiadas, como por ejemplo, el de Studsvik, en Suecia. Dentro del país se realizan estudios con vainas no irradiadas y también se trabaja en modelización de su comportamiento. Actualmente ENRESA participa en los siguientes programas de I+D en este campo que se encuentran descritos con mayor amplitud en otros artículos de esta misma revista:

- Vainas irradiadas (CSN, ENUSA y ENRESA en Studsvik): Se han enviado barras de alto quemado para su estudio. Se han realizado análisis isotópicos del combustible y varios ensayos de fluencia con segmentos de dichas vainas en diversas condiciones de tensión anular y temperatura. Además, se han realizado ensayos de microdurezas y metalografías con determinación de hidruros en algunas muestras.

- Vainas no irradiadas (CSN, ENUSA y ENRESA en la ETSI Caminos, Canales y Puertos, UPM): Se han enviado vainas no irradiadas para determinar su comportamiento mecánico realizando ensayos de tensión anular en diversas condiciones de temperatura y cantidad de hidruros. El proceso de hidruración no sólo permite modular la cantidad de hidruros en cada probeta sino también su orientación respecto a la tensión, clave para su resistencia mecánica.

- Modelización (CSN, ENUSA y ENRESA en las ETSI Caminos, Canales y Puertos y ETSI Minas, UPM): Se pretende modelizar el comportamiento mecánico de las vainas no irradiadas del punto anterior. La ETSI Minas busca modelizar el proceso de hidruración de las vainas.

- Oxidación de combustible con vainas defectuosas (ENRESA en CIEMAT): Respondería a un comportamiento anómalo en el que hubiera presencia de oxidantes en un contenedor que pudiera entrar en contacto con el

combustible, oxidándolo, y produciendo, en función de las condiciones de temperatura, fases expansivas que podrían agrandar dicho defecto. Se ha realizado una revisión bibliográfica del problema y se han detectado carencias en ensayos con CG de altos quemados.

COMPORTAMIENTO DEL COMBUSTIBLE EN CONDICIONES DE ALMACENAMIENTO GEOLÓGICO

ENRESA ha planteado el almacenamiento geológico profundo (AGP) del combustible gastado (CG) como una de las alternativas en la gestión de residuos de alta actividad, que tendría lugar tras el decaimiento y consecuente enfriamiento previo en una o varias instalaciones en superficie.

La estrategia de ENRESA se basa en un proceso sistemático de sucesivos ejercicios de evaluación, cada vez más detallados y con un alcance mayor. En este sentido ha sido y es de especial interés integrar y aplicar al máximo los estudios internacionales más recientes así como los desarrollos llevados a cabo por los diversos grupos de I+D. Con este objetivo ENRESA ya ha auspiciado durante estos años el trabajo de distintos grupos de I+D, en cumplimiento de sus funciones, dentro de los cuatro planes de I+D anteriores, realizados desde 1989 hasta el 2003, así como en el 50 Plan que comenzó en 2004 y que finalizará en diciembre de 2008. Inicialmente el combustible se consideraba residuo y la única opción de gestión contemplada para su gestión a largo plazo fue el almacenamiento geológico. El Plan de IDT 1999-2003 supuso un cambio estratégico en las actividades de investigación y desarrollo asociadas a la gestión de residuos radiactivos, abriéndose a las tecnologías emergentes de Separación y Transmutación.

El combustible nuclear irradiado se caracteriza por su especial complejidad, su elevada actividad, que va evolucionando con el tiempo, cambiando sus características físicas y químicas por desintegración radiactiva de algunos radionucleidos en otros. A su vez, el estar compuesto de una matriz con un macro componente de UO_2 y la mayoría de los elementos del sistema periódico, aunque en muy baja concentración, a nivel de trazas en la mayoría de los casos, pero que a veces presentan una alta actividad específica, requieren el empleo de códigos de cálculo y modelos para predecir el comportamiento a largo plazo, dada la dificultad de su medida.

Los modelos matemáticos son necesarios para evaluar el comportamiento del mismo a escalas milenarias (1.000-10.000 años), ya que los ensayos realizados a

escala de laboratorio y los ensayos acelerados no son suficientes en un material que cambia su composición con el tiempo.

Los sucesivos planes de I+D han perseguido en lo referente al combustible gastado como forma de residuo, evaluar el comportamiento del combustible nuclear irradiado, desde el punto de vista de su estabilidad químico-física, profundizando en el conocimiento de los procesos y desarrollando modelos para la predicción de su comportamiento a muy largo plazo. Para ello ENRESA cuenta con un equipo integrado de investigación conformado por las siguientes organizaciones:

- El Departamento de Ingeniería Química de la UPC, que comenzó sus trabajos para Enresa en el año 1989, desarrollando una metodología que permitiera el estudio de dióxido de uranio como análogo químico del combustible nuclear irradiado, mediante ensayos dinámicos en entornos graníticos y salinos. Los laboratorios de la Universidad se han completado con un Centro Tecnológico en Manresa CTM.

- EL CIEMAT, que se incorporó en 1991 realizando tareas de caracterización de UO_2 y SIMFUEL (UO_2 con diferentes isótopos estables) como material análogo de combustible irradiado, dadas las dificultades para trabajar con combustible real. Actualmente dispone de unos laboratorios (IR-30) que permiten el trabajar con actividad y radionucleidos dentro de los límites autorizados.

- Enviro Spain (actualmente Amphos XXI Consulting) que se incorpora en 1995 para desarrollar un modelo de comportamiento del combustible, teniendo en cuenta los resultados experimentales de la UPC y del Ciemat y que basado en estos resultados sea capaz de predecir el comportamiento del mismo en condiciones de un almacén subterráneo.

En el año 2000 Enresa firma un Acuerdo Marco de Colaboración con el Instituto de Transuránicos (ITU) de la UE en Karlsruhe (junio 2000) y un Acuerdo específico para la investigación en combustible en septiembre de 2000, que ha tenido su continuación en un 2º Contrato que finalizará en diciembre de 2009. Este contrato permite el trabajo con combustible gastado real de diferentes grados de quemado en todas las condiciones y validar los modelos utilizados para evaluar su comportamiento. También permite la movilidad de investigadores dentro de lo que se ha denominado Espacio Europeo de Investigación (ERA) dentro de los objetivos del 6º Programa Marco.

Finalmente Enresa realiza la integración de la experimentación realizada en los proyectos de los planes de I+D y en

los proyectos europeos, para incorporar la a los modelos y ejercicios de evaluación del comportamiento, mediante los grupos de integración.

En resumen, como resultados de estos planes de I+D se dispone de:

- Una infraestructura de laboratorios para estudios de análogos de combustible con las más modernas técnicas (IR-30) Ciemat y CTM en Manresa. Mediante el Acuerdo con el ITU se pueden realizar estudios de combustible real y contribuir a la formación y movilidad de los investigadores.

- Unos recursos humanos capacitados integrados en un equipo muy especializado.

- Un conjunto de resultados experimentales y de modelos y sub-modelos basados en los trabajos realizados por estos grupos, cuyo desarrollo y utilización ha resultado de suma importancia, ya que dichos modelos reúnen las cualidades combinadas de solidez científica y simplicidad de uso que se requieren en los ejercicios de evaluación del comportamiento.

El estudio del residuo sigue siendo una necesidad, debido a las obligaciones y competencias de Enresa, a la complejidad del problema y a la necesidad de estudiar nuevos combustibles y lograr la mayor estabilidad del residuo, con el mínimo volumen y radiotoxicidad.

Los proyectos en curso dentro del Plan de I+D actual y del 6º Programa Marco de la CE son los siguientes:

• RTDC. Proyecto Integrado NF-PRO (Near Field Project) 2004-2007

Es un proyecto integrado de la CE, que tiene por objeto el estudio del comportamiento de diversas formas de residuos vitrificados y del Combustible, en presencia de materiales del campo cercano, que constituye un componente primordial del almacenamiento geológico. Participan 40 organizaciones de investigación y agencias de residuos de la Unión Europea.

El Componente 1 tiene 4 tareas principales: dos dedicadas al estudio de residuos vitrificados y otras dos dedicadas a combustible en condiciones de almacenamiento y presencia de materiales del campo cercano. Comprende asimismo una tarea dedicada a la síntesis y gestión del conocimiento. Enresa participa en colaboración con el ITU.

• Acción Concertada MICADO. (*Model uncertainty for the mechanism of dissolution of spent fuel in nuclear waste repository*)

Se realiza dentro de la 2ª Convocatoria del 6PM de la CE desde 2006-2008 y tiene por objeto el análisis de incerti-

dumbres, en diversos modelos de evaluación del comportamiento de combustible en condiciones de almacenamiento geológico.

Enresa participa con la aportación del Modelo MAM (Matrix Alteration Model) desarrollado por ENRESA y colaboradores dentro del 5º Programa Marco en el proyecto SFS. Participan 18 organizaciones, agencias, laboratorios y consultoras.

• Proyecto Estabilidad

El objetivo es demostrar la estabilidad del combustible gastado como residuo en condiciones de almacenamiento. Las actividades más importantes son: estudiar el efecto de los productos radiolíticos simulados en la disolución de UO_2 , el efecto de la radiación γ sobre la disolución, efecto del H_2 como inhibidor de la disolución de la matriz, la alteración del combustible antes de la intrusión del agua en el contenedor y la lixiviación en medios hiperalcalinos. Lo lleva a cabo la UPC.

• Proyecto Acacias (Análisis y Caracterización del Combustible Irradiado para su Almacenamiento Seguro) 2004-2008

El objetivo es caracterizar y estudiar el comportamiento del combustible en condiciones de almacenamiento en arcilla, realizando estudios de caracterización de la superficie específica, de disolución de materiales simulados y la presencia de radiación (alfa y gamma) y estudios de coprecipitación. Lo ejecuta la Unidad de Residuos de Alta Actividad del Ciemat.

• Proyecto Modelación del Combustible

Persigue incorporar todos los desarrollos experimentales, no incluidos en los anteriores ejercicios de evaluación del comportamiento, en el nuevo modelo compartimental de la matriz. Incluye el desarrollo de Modelos de Liberación para diferentes radionucleidos relevantes en el comportamiento a largo plazo y busca completar los modelos anteriores con los nuevos desarrollos.

• Colaboración Enresa-ITU en I+D de combustible

En el contrato 2004-2009 las actividades que se realizan son:

1. Liberación Instantánea de radionucleidos a diferentes quemados.
2. Ensayos Dinámicos de Combustible.
3. Formación de fases Secundarias sobre combustible real.