

Trabajo Fin de Grado

Grado en Ingeniería de Tecnologías Industriales

Modelo de la evolución temporal de la composición y la actividad de los residuos de una central nuclear

Autor: Pablo Benavente Rico

Tutor: Dr. Antonio de la Cruz González Fernández

Dpto. Física Aplicada III
Escuela Técnica Superior de Ingeniería
Universidad de Sevilla

Sevilla, 2020



Trabajo Fin de Grado
Grado en Ingeniería de Tecnologías Industriales

Modelo de la evolución temporal de la composición y la actividad de los residuos de una central nuclear

Autor:

Pablo Benavente Rico

Tutor:

Dr. Antonio de la Cruz González Fernández

Profesor titular

Dpto. Física Aplicada III
Escuela Técnica Superior de Ingeniería
Universidad de Sevilla
Sevilla, 2020

Trabajo Fin de Grado: Modelo de la evolución temporal de la composición y la actividad de los residuos de una central nuclear

Autor: Pablo Benavente Rico

Tutor: Dr. Antonio de la Cruz González
Fernández

El tribunal nombrado para juzgar el Proyecto arriba indicado, compuesto por los siguientes miembros:

Presidente:

Vocales:

Secretario:

Acuerdan otorgarle la calificación de:

Sevilla, 2020

El Secretario del Tribunal

A Isa

A mi tutor

*A todos aquellos que me
apoyaron para no abandonar la
carrera*

Resumen

La energía nuclear, a pesar de ser libre de emisiones durante su producción, no es libre de residuos. Precisamente la producción y el almacenamiento de estos supone uno de los principales estigmas sociales que caracterizan a la energía nuclear.

En este proyecto se realiza un estudio sobre la evolución temporal de la composición y actividad del combustible nuclear gastado, dada la composición en el momento de la descarga. Partiendo de una selección de núclidos se elaboran las series radiactivas, que en muchos casos están acopladas, formando un sistema de EDOs. Resolviéndolo, se emplean los resultados para estimar la actividad de los residuos a corto, medio y largo plazo, extrayendo las implicaciones que ello supone para el almacenamiento.

Abstract

Although nuclear energy does not produce emissions, it does generate waste. In fact, nuclear waste production and its storage are precisely the main stigmas associated with nuclear energy.

This project provides a study of the evolution of spent nuclear fuel composition and activity once it has been discharged. An ODEs system is made up of a selection of nuclides and its radioactive series, which are often coupled. The results are used for the estimation of nuclear waste activity in short-, mid-, and long- term to find out the consequences of its storage.

Índice

Resumen	vii
Abstract	viii
Índice	ix
Índice de Tablas	xi
Índice de Figuras	xii
1 Introducción	11
1.1 Características significativas	13
1.2 Percepción social	14
1.3 Clasificación de los residuos nucleares	15
1.3.1 Muy baja actividad	15
1.3.2 Actividad baja e intermedia, de vida corta	15
1.3.3 Actividad baja e intermedia, de vida larga	16
1.3.4 Actividad alta	17
2 Procesos en un reactor PWR	18
2.1 Elemento combustible	18
2.1.1 Uranio 238	20
2.1.2 Uranio 235	21
2.1.3 Enriquecimiento	22
2.1.4 Plutonio	23
2.2 Fisión nuclear	24
2.3 Burn-up	26
2.4 Productos de fisión	26
2.5 Actínidos. Formación de plutonio y otros elementos transuránicos	29
2.6 Productos de activación	30
3 Fundamentos de la desintegración radiactiva	31
3.1 Ley de desintegración radiactiva	32
3.2 Desintegración alfa	33
3.3 Desintegración beta	34
3.4 Desintegración gamma	35
4 Formulación matemática	37
4.1 Ecuaciones de Bateman	37
4.1.1 Ramificación y recombinación	39
4.1.2 Superposición	40
4.2 Integración numérica de EDOs acopladas	42
4.3 Exponenciación de matriz	42

4.3.1	Planteamiento	42
4.3.2	Aplicación	44
5	Aplicación al combustible gastado	48
5.1	Almacenamiento temporal y permanente	49
5.2	Central nuclear de Gösgen	50
5.3	Selección	50
5.3.1	Actínidos	50
5.3.2	Productos de fisión	52
5.4	Resultados	53
6	Implicaciones	59
7	Conclusión	62
	Referencias	63
	Apéndice I	65
	Apéndice II	67
	Apéndice III	68

ÍNDICE DE TABLAS

Tabla 1. <i>Número de reactores nucleares por tipo y potencia eléctrica instalada</i>	12
Tabla 2. <i>Número de reactores nucleares en construcción</i>	12
Tabla 3. <i>Radiactividad de los principales productos de fisión del combustible nuclear irradiado</i>	28
Tabla 4. <i>Radioactividad de los principales actínidos en el combustible nuclear irradiado</i>	30
Tabla 5. <i>Núclidos principales en la composición inicial del combustible nuclear</i>	33
Tabla 6. <i>Selección de principales actínidos</i>	51
Tabla 7. <i>Productos de fisión seleccionados</i>	52
Tabla 8. <i>Solubilidad de selección representativa de núclidos</i>	61

ÍNDICE DE FIGURAS

Figura 1. <i>Descomposición radiolítica del agua</i>	14
Figura 2. <i>Residuos VLLW</i>	15
Figura 3. <i>Residuos LILW-SL</i>	16
Figura 4. <i>Residuos LILW-LL</i>	16
Figura 5. <i>Sistema de clasificación de residuos nucleares</i>	17
Figura 6. <i>Corte transversal de una barra de combustible</i>	19
Figura 7. <i>Corte transversal de un elemento combustible</i>	19
Figura 8. <i>Matriz de elementos combustibles en un reactor HWR</i>	20
Figura 9. <i>Efecto Doppler térmico</i>	21
Figura 10. <i>Enriquecimiento del combustible</i>	22
Figura 11. <i>Centrifugación</i>	23
Figura 12. <i>Energía de enlace por nucleón respecto a la masa atómica</i>	25
Figura 13. <i>Distribución bimodal de los productos de fisión del U-235</i>	27
Figura 14. <i>Distribución bimodal de los productos de fisión del Pu-239</i>	27
Figura 15. <i>Radiotoxicidad relativa del combustible nuclear</i>	29
Figura 16. <i>Carta de Segré</i>	32
Figura 17. <i>Espectroscopía alfa</i>	34
Figura 18. <i>Espectroscopía beta</i>	35
Figura 19. <i>Espectroscopía gamma</i>	36
Figura 20. <i>Simulación de una serie radiactiva. Abundancias relativas.</i>	46
Figura 21. <i>Simulación de una serie radiactiva. Actividades relativas.</i>	47
Figura 22. <i>Ciclo simplificado del combustible nuclear</i>	48
Figura 23. <i>Piscina de refrigeración del combustible</i>	49

Figura 24. <i>Central nuclear de Gösgen</i>	50
Figura 25. <i>Carta de Segré con los productos de fisión del U-235</i>	53
Figura 26. <i>Evolución temporal de las actividades de los principales actínidos en el combustible</i>	55
Figura 27. <i>Evolución temporal de las actividades de los principales productos de fisión</i>	56
Figura 28. <i>Actividades acumuladas de los transuránicos, especies de uranio y productos de fisión</i>	57
Figura 29. <i>ATI en la central nuclear de Ascó</i>	59
Figura 30. <i>Método KBS-3 para el almacenamiento en profundidad</i>	60

1 INTRODUCCIÓN

El 12 de diciembre de 2015 concluyen en París las sesiones de la XXI Conferencia de las Partes (CP 21) y la XI reunión de las Partes en el Protocolo de Kioto (CP/RP 11) en la Convención Marco de las Naciones Unidas sobre el Cambio Climático (CMNUCC). En esta fecha, las partes cerraron un nuevo acuerdo de alcance mundial en materia de cambio climático, presentando un plan de actuación para limitar el incremento de la temperatura media mundial muy por debajo de 2°C con respecto a los niveles preindustriales. [1]

Para alcanzar la meta, las emisiones de dióxido de carbono, producidas tanto en la generación de energía eléctrica como en transporte, industria y consumos, deben caer a niveles próximos a cero para mediados de este siglo.

En este panorama, la energía nuclear es una fuente baja en carbono, donde las únicas emisiones considerables son producidas en el proceso de construcción de la planta. En 2018, este tipo de energía proporcionó alrededor del 10 por ciento de la electricidad mundial. Junto con la expansión de las fuentes de energía renovable y el cambio de combustible del carbón al gas, la mayor producción de energía nuclear contribuyó a la nivelación global de emisiones de CO₂ a 33 GTm en 2019, mostrando que la tecnología nuclear desempeña un papel clave en la transición hacia un futuro de energía limpia. [2]

Una toma de conciencia más intensa por parte de la comunidad internacional sobre las amenazas que supone el calentamiento global, sumado a una demanda eléctrica creciente frente a los nuevos desarrollos industriales, han motivado en la última década que las distintas fuerzas políticas de los países más avanzados apuesten por la continuidad de la energía nuclear, considerada como una de las pocas opciones energéticas disponibles hoy día que ya han demostrado su efectividad e implementación a gran escala, garantizando un abastecimiento eléctrico predecible y con estabilidad en el precio. Así mismo, países con economías emergentes con una potencia eléctrica instalada precaria demandan nuevas instalaciones para hacer frente a su desarrollo y además reducir la dependencia energética exterior, contexto en el que la energía nuclear forma parte del conjunto de soluciones de la mano de las energías renovables. Esta postura se hizo evidente incluso pocos años después del catastrófico accidente nuclear de Fukushima I, en 2011, que puso de nuevo a la tecnología nuclear ante una visión mediática cargada de pánico y rechazo.

El Organismo Internacional de Energía Atómica (IAEA, International Atomic Energy Agency) recoge que los 442 reactores nucleares actualmente en operación producen alrededor del 11.4% de la electricidad mundial - datos a marzo de 2020- y hay 53 unidades en construcción en países como China, India, Rusia, Corea del Sur, Finlandia o Francia. Todos ellos, conscientes de los problemas energéticos y medioambientales, construyen nuevas plantas nucleares porque consideran que la energía nuclear es una fuente esencial para el presente y futuro de sus países. [3]

Tabla 1

Número de reactores nucleares por tipo y potencia eléctrica instalada

Tipo de reactor	Nombre descriptivo	Número de reactores instalados	Potencia eléctrica neta (MW)
BWR	<i>Boiling Water Reactor</i> , reactor de agua en ebullición	65	65101
FBR	<i>Fast Breeder Reactor</i> , reactor reproductor rápido	3	1400
GCR	<i>Gas cooled reactor</i> , reactor refrigerado por gas	14	7725
LWGR	<i>Light Water Graphite Reactor</i> , RBMK	13	9283
PHWR	<i>Pressurized Heavy-Water Reactor</i> , reactor de agua pesada a presión	48	23867
PWR	<i>Pressurized Water Reactor</i> , reactor de agua a presión	299	283092
		442	390468

Tabla 2

Número de reactores nucleares en construcción

Tipo de reactor	Nombre descriptivo	Número de reactores en construcción	Potencia eléctrica neta (MW)
BWR	<i>Boiling Water Reactor</i> , reactor de agua en ebullición	4	5253
FBR	<i>Fast Breeder Reactor</i> , reactor reproductor rápido	1	470
HTGR	<i>High Temperature Gas Cooled Reactor</i> , reactor refrigerado por gas de alta temperatura	1	200
PHWR	<i>Pressurized Heavy-Water Reactor</i> , reactor de agua pesada a presión	4	2520
PWR	<i>Pressurized Water Reactor</i> , reactor de agua a presión	43	47882
		53	56325

Nota: Como delatan los informes de la IAEA [3], el reactor protagonista tanto en la explotación actual como en la potencial es el *reactor de agua a presión* (PWR, Pressurized Water Reactor).

1.1 Características significativas

La central nuclear es una instalación industrial térmica empleada en la generación de energía eléctrica a partir de energía nuclear. Se caracteriza por el empleo de combustible fisionable que, mediante la energía de fisión de los enlaces entre los nucleones que componen el núcleo atómico, proporciona calor extraíble a través de vapor o agua líquida, para producir otra fuente de vapor. Este último se conduce a través de unas turbinas para producir energía eléctrica mediante el alternador.

Esta fuente energética posee varias características que lo diferencian del resto de instalaciones térmicas.

Por un lado, la energía nuclear requiere de grandes inversiones. La economía de dichas inversiones mejora con el tamaño de las centrales y con el número de centrales con el mismo tipo de tecnología, como sucede en Francia, donde todos los reactores instalados son PWR. A pesar de la magnitud de estas inversiones, la repercusión en el coste por kilovatio instalado no supone que este sea superior al de otras fuentes. Sí implica, sin embargo, tiempos de construcción muy largos, de aproximadamente 5 años.

Por otro, debido al gran tamaño y naturaleza de la fisión nuclear, las centrales nucleares han de trabajar en base, es decir, sin flexibilidad para seguir la demanda. Las plantas pueden tardar muchas horas, si no días, en arrancar o cambiar la producción de energía. Las más modernas pueden operar y funcionar como base y alternar posteriormente la producción para satisfacer las diferentes demandas, pero la operación en base es la más económica y tecnológicamente la más simple. Se debe principalmente al hecho de que requieren un largo período de tiempo para calentar el sistema de suministro de vapor nuclear y el generador de turbina a la temperatura de operación. En este modo, los cambios en la potencia se limitan a la regulación de potencia para la estabilidad de la red y para paradas de seguridad. También se encuentra el fenómeno de envenenamiento por xenón, producto de fisión que al ser fuerte absorbente de neutrones reduce significativamente la reactividad del reactor. Este fenómeno existe en todos los reactores y se debe tener en cuenta en los cambios de potencia, ya que las paradas del reactor llevan a la acumulación de xenón que podría mantener el reactor fuera de línea por un tiempo significativo.

Además, la fisión de un gramo de combustible nuclear (como puede ser el U-235) libera millones de veces más energía que la combustión de un gramo de combustible fósil. Supone que el coste del kilovatio-hora sea inferior que al resto de instalaciones térmicas (por ejemplo, tres veces inferior al del gas), con la ventaja adicional de que la reacción de fisión no produce gases de efecto invernadero.

Otra razón a tener en cuenta: se tiene que los productos de la fisión nuclear son radiactivos, intrínsecamente tóxicos. Sin embargo, a pesar de esta alta toxicidad, la masa residual es relativamente pequeña y controlable, incluso para el caso de actividad muy elevada.

Por último, característica que tiene a la energía nuclear en estigma junto a la anterior, en los reactores nucleares se produce también junto a los residuos Pu-239, material de alto interés militar, lo que implica mantener bajo control internacional este tipo de instalaciones y evitar potencial uso armamentístico. La IAEA, de mano de las Organización de las Naciones Unidas, con sede en Viena, se constituyó en el 1957 como garante del Tratado de No Proliferación Nuclear, para velar por la seguridad de las instalaciones y del medio ambiente.

1.2 Percepción social

Los productos de la fisión nuclear son radiactivos. Esta radiación, sea en bajas o altas dosis, tarde o temprano produce efectos biológicos.

La cadena de efectos empieza con la radiación ionizante, que interactúa solo con los átomos mediante su ionización. Los efectos de daño biológico son consecuencia de las interacciones de radiación entre los átomos que componen las moléculas y estas a su vez las células. Esta secuencia determina los efectos de la radiación en la biología desde el nivel más bajo al más alto, siendo el completo organismo vivo.

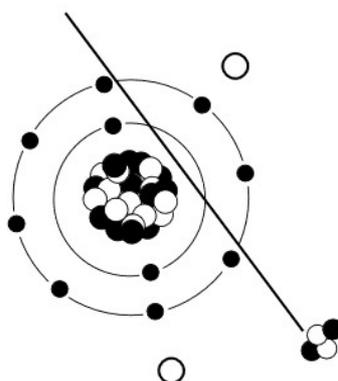


Figura 1. Ilustración sobre la descomposición radiolítica de la molécula de agua. Cuando la radiación incide sobre esta, puede romper la integridad de la molécula formando hidrógeno (H) e hidroxilo (OH). Cuando esto sucede, existen tanto la posibilidad de que vuelvan a recomponerse en una molécula de agua (suceso no dañino) como la posibilidad de formar un compuesto tóxico como el peróxido de hidrógeno (H_2O_2), que llevaría a la destrucción celular. [4]

El tema de mayor preocupación social es el de la seguridad de las instalaciones nucleares y la gestión de los residuos, puesto que el riesgo percibido por los no expertos es muy elevado.

Los peligros de los residuos radiactivos están determinados por varios factores que generalmente son el tipo e intensidad de radiación y las propiedades químicas del material radiactivo. Así, por ejemplo, la radiación alfa es la que menor poder de penetración tiene, pero sin embargo si el material es ingerido, la radiación es mucho más peligrosa que la beta o la gamma a efectos biológicos. Por otro lado, las propiedades químicas son el factor clave para la posible exposición interna. Por ejemplo, Sr-90, Ra-226 y Pu-239 son radionúclidos que se dirigen preferentemente a las regiones metabólicamente activas del hueso. Así el estroncio radiactivo puede sustituir al calcio y el cesio radiactivo, al sodio. Estos radionúclidos tienen una vida media biológica prolongada y suponen riesgos internos graves. Una vez depositados en el hueso, permanecen allí esencialmente sin cambios en la abundancia durante la vida del individuo. Estos elementos químicos radiactivos deben aislarse del medio ambiente siempre que sean radiactivos.

No son pocas las fuerzas políticas y organizaciones ambientalistas que consideran a la energía nuclear lejos de proveer un futuro seguro, limpio y sostenible, acusándola de ser cara y peligrosa. Además, justifican que la contaminación nuclear es invisible, pero no por ello es una energía limpia.

Un ejemplo beligerante contra la energía nuclear es Greenpeace [5], que empezó su movimiento de protesta contra la energía nuclear en 1971, entonces principalmente dirigido al problema del armamento nuclear. Posteriormente, las catástrofes ocasionadas en Chernóbil (1986) y Fukushima (2011) sirvieron de respaldo mediático a sus protestas por la conciencia generalizada de la peligrosidad nuclear, alegando que los beneficios potenciales no merecen los riesgos que hay que asumir. También predicen que no existe una solución fiable y segura para tratar los residuos radiactivos, puesto que cualquier vertido de ellos posee fugas al ambiente y más si los almacenes de residuos se instalan en zonas volcánicas y sísmicamente activas.

En puntos posteriores de este proyecto, se justificarán las medidas de gestión que siguen los residuos nucleares en la actualidad y cómo son implementables con seguridad, justificando que la energía nuclear posee un papel muy relevante en la transición energética desde las fuentes fósiles hasta un futuro más verde.

1.3 Clasificación de los residuos nucleares

Los residuos radiactivos se generan en numerosas actividades aparte de la producción de potencia eléctrica, donde se incluyen tanto los residuos de la operación, los relativos al ciclo del combustible y los producidos por desmantelamiento de centrales. Se encuentran desechos derivados de la medicina nuclear (de técnicas de radioterapia y radiodiagnóstico) y otros de actividades industriales como radiografía de componentes mecánicos y técnicas desinfección o esterilización, entre otras muchas, pudiendo alcanzar una producción neta de 1500m³ al año. Esta magnitud es similar a la producida por un reactor de 1000MWe. Por otro lado, la cantidad de combustible gastado por reactores de ese orden de potencia es de 30 toneladas al año.

Estos tipos de residuos son principalmente clasificados por el nivel de radioactividad y el tiempo de desintegración. Estos dos parámetros son los que influyen en el método para tratar y almacenar estos productos.

La clasificación más común de acuerdo con los criterios anteriores sigue así, en orden creciente de actividad.

Los conceptos relativos a la actividad, su naturaleza y unidad de medida se definen en el capítulo correspondiente de fundamentos.

1.3.1 Muy baja actividad

Very low-level waste, VLLW. Son residuos que se descomponen en unos pocos meses, máximo varios años, con una actividad menor de 100Bq/g, niveles muy parecidos a los de la radioactividad mineral en la corteza terrestre. Se encuentran aquí los escombros y chatarra que han estado en contacto con productos radiactivos, de origen industrial o nuclear, irradiados por neutrones. Por ejemplo, el desmantelamiento de una central nuclear PWR convencional produce aproximadamente 80 millones de toneladas de este tipo de residuos. Basta con almacenarlos temporalmente y disponerlos luego como residuos comunes.



Figura 2. A la izquierda, equipamiento viejo de laboratorio que ha estado en contacto con elementos radiactivos, dispuesto en vertederos para residuos de muy baja actividad. A la derecha, bolsas de escombros para evitar la dispersión de polvo. [6]

1.3.2 Actividad baja e intermedia, de vida corta

Low and intermediate-level short-lived waste, LILW-SL. Contienen contenido bajo de núclidos emisores de partículas alfa, cuyos períodos de semidesintegración son inferiores o igual a 30 años, conteniendo generalmente emisores beta. La actividad de estos residuos es relativamente baja respecto a la del combustible irradiado de los reactores, pero no deja de ser muy alta en comparación con la clase anterior, como máximo sobre los 4kBq/g. Lo conforman los residuos que han sido contaminados por radiación, pero que no son radiactivos en sí mismos. Se depositan en almacenes superficiales debidamente acondicionados.

Lo componen escombros de diversas instalaciones nucleares, materiales derivados de la operación normal de las centrales, residuos de centros de investigación y aplicaciones médicas, como pueden ser guantes y batas.



Figura 3. A la izquierda, un almacén superficial para residuos de baja actividad. Muchos productores de estos residuos son responsables de su gestión, construyendo las estructuras necesarias para su almacenamiento. A la derecha, ejemplos de residuos con un tiempo de vida muy corto (como los procedentes de los hospitales), individualmente etiquetados para ser desplazados a sus correspondientes almacenes. [7]

1.3.3 Actividad baja e intermedia, de vida larga

Low and intermediate-level long-lived waste, LILW-LL. El límite entre los desechos de vida corta y larga es algo difuso y no puede cercarse con respecto a la concentración de residuos radiactivos, porque los niveles permitidos dependerán de las propiedades de los radionúclidos individuales. Como se mencionó en la clasificación anterior, la actividad se limita a 4000Bq/g de emisores alfa de larga vida. Se almacenan en paquetes de desechos radiactivos individuales, que se planean desechar en formaciones geológicas. Esta distinción respecto a la anterior se ha determinado en base a que el público general puede acceder accidentalmente a estos repositorios en un futuro, después de un período de control institucional activo y acabar realizando actividades de construcción típicas como viviendas y carreteras. Así mismo, en el momento de realizar los emplazamientos, se debe tener en cuenta la acumulación y distribución de núclidos de larga vida dentro de formaciones superficiales y potenciales vías de exposición a largo plazo.

Se incluyen en esta clase también a escombros y chatarra originarios del desmantelamiento de centrales e instalaciones nucleares, además de residuos provenientes de la industria y aplicación médica y otros varios consecuentes de la minería y fabricación del combustible nuclear.



Figura 4. Barriles de residuos, apilados y posteriormente cubiertos por cemento en un almacén superficial construido sobre terreno arcilloso. Es el centro de almacenamiento de Aube, Francia. Los residuos almacenados, junto a la clase anterior forman la mayor parte de los residuos radiactivos que se producen a nivel general. A pesar de las medidas de seguridad, son los que poseen menor riesgo para el medio ambiente, debido a la poca abundancia de núclidos radiactivos y al relativamente corto tiempo de semivida. (Fuente: ANDRA/Michel Dutzer)

1.3.4 Actividad alta

High level waste, HLW. Esta es la clase de actividad máxima. Contienen altas concentraciones de núclidos emisores de radiación alfa de vida larga, y también se incluyen los emisores de radiación beta y gamma con tiempos de semivida superiores a los 30 años. Exceden el límite de 4kBq/g y se caracterizan además por una producción significativa de calor (100W/m³), dada la elevada actividad específica.

Estos residuos están constituidos principalmente por los elementos combustibles gastados por la operación de las centrales nucleares. También se encuentran pequeñas cantidades de núclidos procedentes de la producción de isótopos medicinales y otras actividades de investigación o industriales.

Dado que los radionúclidos poseen períodos de semivida muy altos, requieren de técnicas de gestión prolongadas en el tiempo y total aislamiento.

Este apartado se desarrollará en el punto siguiente, donde se centrará la atención en los elementos combustibles gastados.

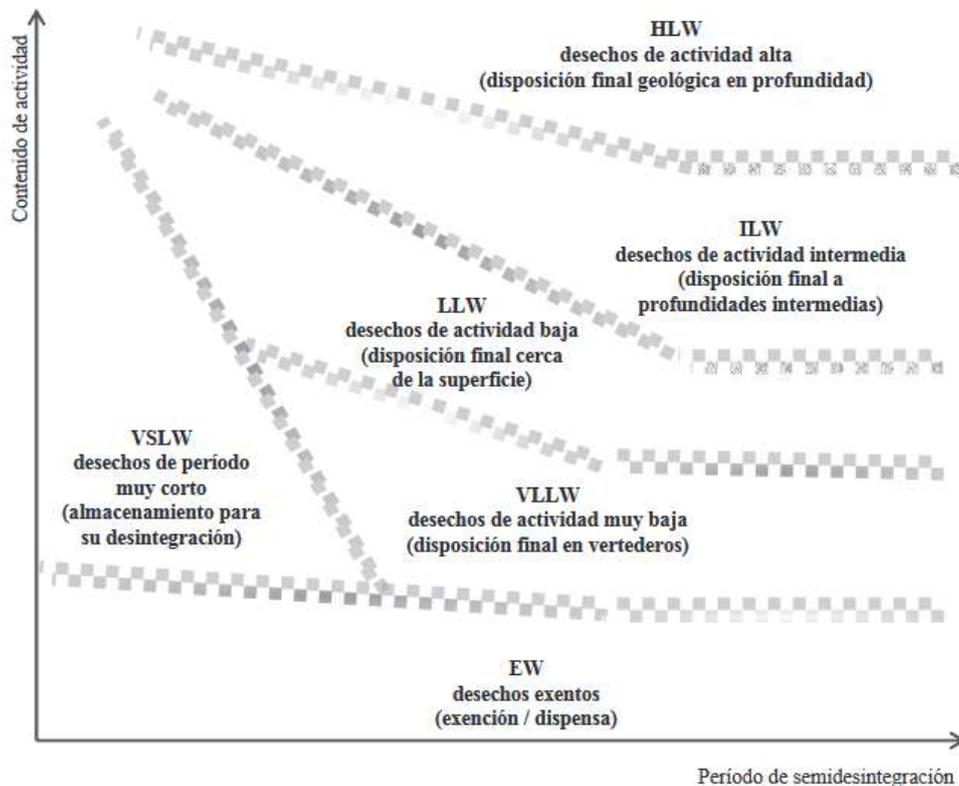


Figura 5. Ilustración conceptual del sistema de clasificación de residuos. Los tiempos de semivida de las especies radiactivas contenidos en los residuos nucleares varían desde períodos muy cortos (del orden de segundos) hasta otros muy largos (de varios millones de años). En términos de seguridad, un núclido con una período de semivida inferior a los 30 años se considera de período corto. Es útil distinguir entre los residuos que contienen principalmente radionúclidos de período corto y aquellos de período largo, ya que los peligros radiológicos asociados a los primeros se reducen considerablemente por desintegración tras algunos cientos de años. Las limitaciones impuestas con respecto a la actividad de los residuos que pueden someterse al almacenamiento final en una instalación dependerán de las propiedades radiológicas, químicas, físicas y biológicas de los residuos, así como de las especies contenidas. [8]

2 PROCESOS EN UN REACTOR PWR

El combustible nuclear es cualquier material formado por núclidos fisionables estando debidamente adaptado para la generación de energía térmica desprendida por las reacciones de fisión nuclear. Este tipo de combustible tiene la mayor densidad de energía de todas las fuentes de energía hasta ahora tecnológicamente viables. Se puede referir tanto al material fisionable propiamente dicho como a las estructuras que contienen el material nuclear junto con el moderador y elementos varios.

Para la producción de potencia, existen en mayor medida dos tipos de combustibles por el ciclo que emplean. Por un lado, se tiene el ciclo del uranio, que emplea el isótopo de uranio U-238 enriquecido en aproximadamente un 4% de U-235, siendo este último el fisionable por neutrones térmicos. Por otro lado, está el ciclo del torio. El Th-232 se emplea como material fértil, es decir, durante la quema del combustible, este se transforma en U-233, que sí es fisionable.

En esta sección se va a describir el fenómeno de fisión que sucede en el seno del núcleo del reactor, la composición de los elementos y los procesos de desintegración que experimentan tanto el combustible como los productos.

2.1 Elemento combustible

En la actualidad, el reactor nuclear más común es el reactor PWR de agua ligera, proporcionando aproximadamente el 85% de la energía nuclear a nivel mundial.

El combustible nuclear, por antonomasia, es el dióxido de uranio, UO_2 . Puede presentarse a su vez como una mezcla con dióxido de plutonio PuO_2 , formando así la denominada mezcla MOX (*mixed oxide*). Esto se desarrollará en el correspondiente apartado del posible enriquecimiento del combustible.

Este material cerámico tiene diversas propiedades que lo hacen muy adecuado como combustible nuclear, como son el elevado punto de fusión ($2865\text{ }^\circ\text{C}$) y tolerancia a la radiación. Así mismo es un buen cebo para los productos de fisión y los actínidos que se producen durante la operación del reactor. Esta característica es importante puesto que son elementos altamente radiactivos y tóxicos, por lo que deben ser confinados dentro de la propia estructura del combustible por cuestiones de seguridad.

También tiene ciertas desventajas, como una baja conductividad térmica que deriva en fragilidad y fuertes gradientes de temperatura ($1,7 \cdot 10^3 \text{K/cm}$) provocando un fuerte estrés térmico, puesto que la temperatura del centro del combustible es siempre considerablemente más alta que la superficie de la varilla de combustible y esto conduce a fenómenos tales como la migración de poros cercanos desde la región de baja temperatura hacia el centro de los pélets. De esta forma los productos de fisión, el oxígeno y el plutonio se redistribuyen. Este estrés térmico, además, hace que el combustible se deforme plásticamente en la región de alta temperatura y se produzcan grietas en las zonas más frías.

Una característica química del dióxido de uranio es que no es estable en un seno rico en oxígeno, pudiendo interactuar rápidamente y formar otros óxidos de uranio más ricos en oxígeno, como U_3O_8 , U_4O_9 . Esto supone, por tanto, la reorganización cristalográfica de material. Por lo tanto, la interacción entre el UO_2 y el O_2 en el núcleo del reactor se evita a toda costa llenando el espacio dentro de las varillas de combustible con helio a alta presión, sobre los 0.1 y 0.3 MPa.

Este se presenta en forma de pélet, formados por gránulos de dióxido de uranio UO_2 prensados, un sólido cerámico negro de baja conductividad térmica, de elevado punto de fusión. Estas características condicionan la geometría y las dimensiones de estas pastillas, como puede concluirse al resolver el problema de transferencia de calor por el volumen generador de los pélets.

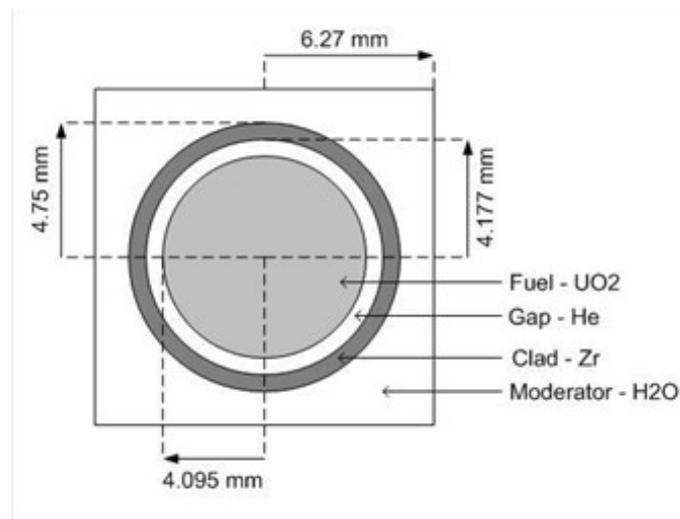


Figura 6. Corte trasversal de una barra de combustible, de aproximadamente 4m de longitud y 300 pélets. En el interior, concéntrico, se encuentra el pélet de dióxido de uranio. Estos tubos de zircalloy están presurizados con helio para permitir la dilatación o densificación del pélet. Estas dimensiones no son arbitrarias, están determinadas para evitar la fusión de este sólido cuando sea irradiado y cuyo volumen genere calor por las reacciones de fisión en su interior.

Estos pélets se introducen en una varilla de zircalloy para formar varillas de combustible. El zircalloy resulta la primera defensa ante la radiactividad y permite contener el material radiactivo dentro de la propia unidad. A su vez, estas varillas se ensamblan en una estructura superior compuesta por distintas varillas de combustible. Estas son las unidades que se insertan y retiran en la carga y descarga del combustible en el reactor nuclear. Como ejemplo, una planta PWR de 1GWe se alimenta con unas 50000 varillas, llegando a acumular alrededor de 17 millones de pélets.

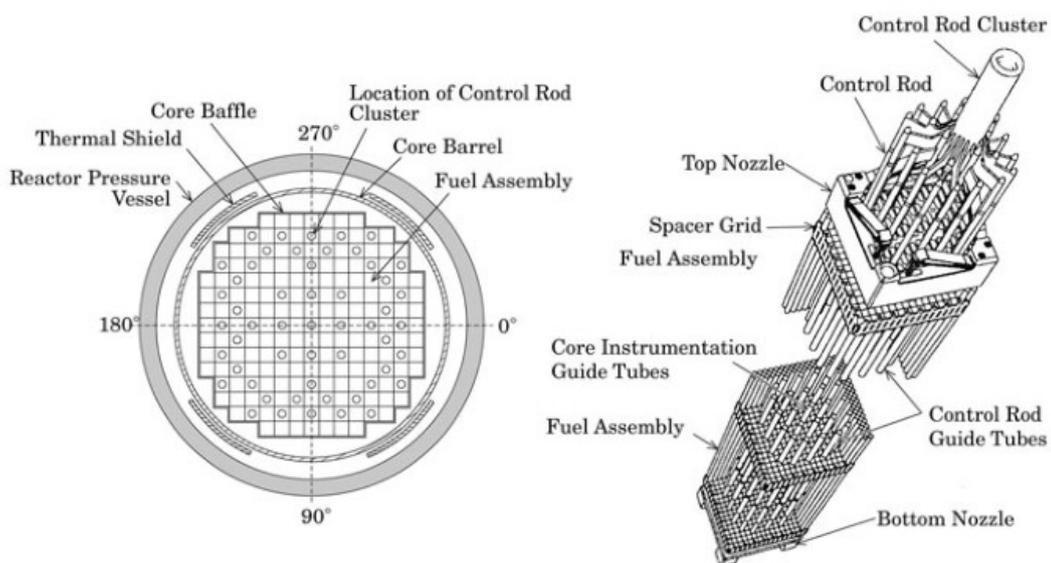


Figura 7. A la izquierda, corte trasversal del reactor nuclear. A la derecha, vista de un elemento combustible. Este reactor posee 193 elementos combustibles. Cada uno de ellos están diseñados para ser atravesados por tubos de instrumentación y de control para monitorizar y controlar el estado del reactor en todo momento. [9]

Esta estructura constituye la base del núcleo del reactor. Cabe destacar que el enriquecimiento de los elementos de combustible no es uniforme. De hecho, existen variaciones, no arbitrarias, tanto en dirección radial como axial, con el objetivo de optimizar la distribución de potencia térmica y con ello la economía del combustible.

Generalmente, un complejo nuevo de elementos de combustible posee energía suficiente para alimentar el reactor por 4 años a máxima potencia. Sin embargo, no todos los elementos se consumen igual y esto requiere que, cada 18 meses aproximadamente, se retire un tercio de los elementos del núcleo para colocar otros nuevos y a su vez, reordenar de nuevo todos los elementos combustibles en la matriz del núcleo.

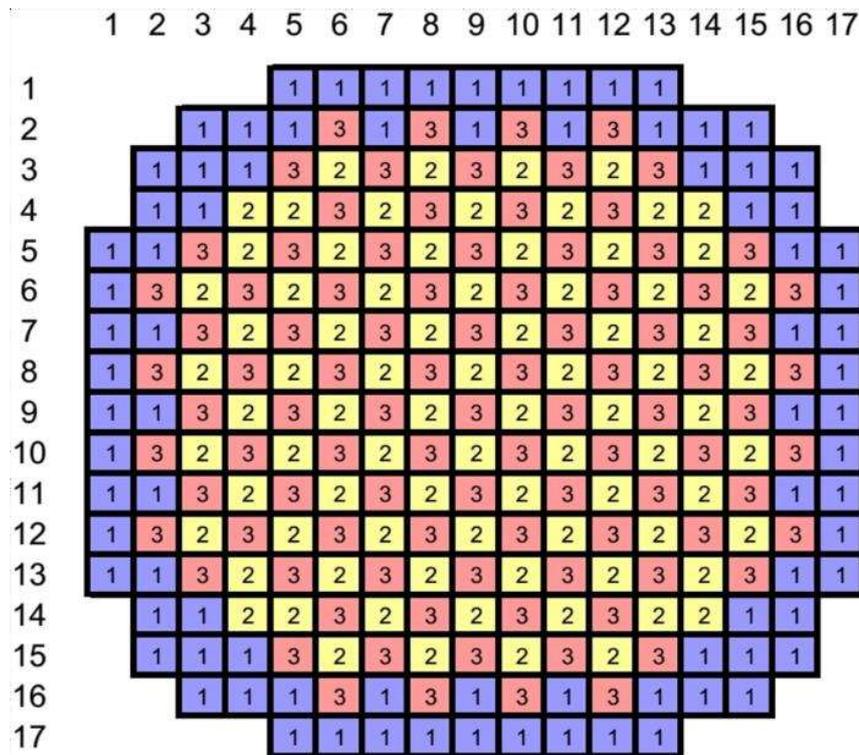


Figura 8. Matriz de elementos de combustible del núcleo del reactor. Cuando se realiza una parada para realizar la recarga, se reordena la matriz: los elementos nuevos se disponen en la periferia y los más consumidos (se mide a base del número de ciclos de recarga que hayan visto) se reparten alternadamente por el interior del reactor.

2.1.1 Uranio 238

El uranio U-238, que posee una vida media de 4.45Gy, constituye el 99% del uranio natural en la naturaleza. Forma así la cabeza de una de las cuatro cadenas de desintegración naturales, es decir, este núclido ha existido en su forma actual desde aproximadamente la formación de la Tierra, por eso sigue presente en la corteza terrestre.

Este isótopo es fisiónable, que no fisil. Es decir, no es capaz de fisiónarse mediante la absorción de neutrones térmicos (lentos, de baja energía). Esto hace que el U-238 no sea capaz de sostener una reacción nuclear de fisión en cadena, porque la mayoría de los neutrones producidos en la fisión tienen aún menos energías que la de los neutrones que la han provocado. Por esta razón es necesario enriquecer el uranio natural presente en el dióxido de uranio, abundante en U-238, con U-235 que sí es fisil.

Sin embargo, resulta ser fértil, lo que quiere decir que al absorber un neutrón se transmuta en un núclido fisil, como es el Pu-239. De esta forma, el U-238 contribuye a la operación normal de los reactores nucleares, siendo aproximadamente un 40% la energía liberada debida al plutonio producido.

Otra característica importante de este núclido es que contribuye a la estabilidad del reactor. El fenómeno que explica dicho mecanismo es el ensanchamiento Doppler térmico de la resonancia de las regiones efectivas de captura de neutrones. Esto supone una mayor probabilidad de absorción de neutrones por parte del U-238, desfavoreciendo la reacción de fisión en cadena del reactor.

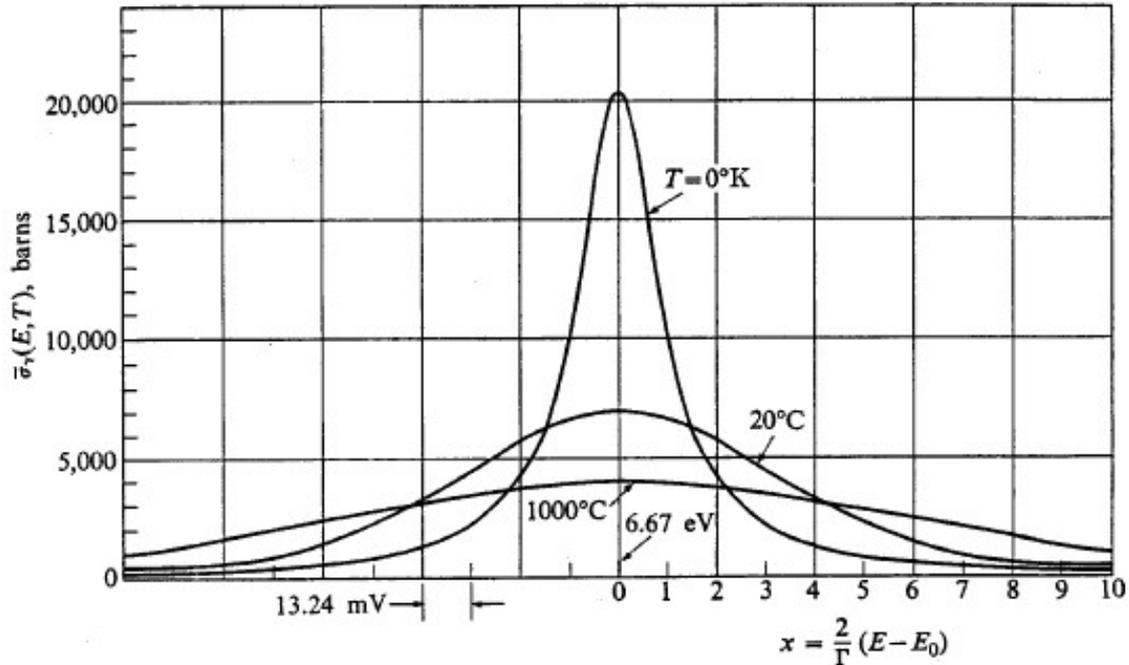


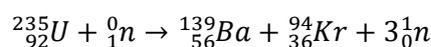
Figura 9. Visualización del ensanchamiento Doppler térmico. En el eje vertical, magnitud de la sección eficaz de absorción en barns ($1e-28m$). En el eje horizontal, medida de la energía asociada al neutrón. Aumentar la temperatura del U-238 supone aumentar la probabilidad de absorción de neutrones, al abrir la banda de resonancia a más neutrones de distintas energías. [10]

Respecto a la composición del combustible, aproximadamente un 96.7% en masa está compuesto de dióxido del isótopo U-238, siendo la composición restante (3.3%) debida principalmente al isótopo U-235, incluido tras el proceso de enriquecimiento del combustible para hacer viable la reacción de fisión en cadena.

2.1.2 Uranio 235

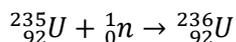
Este isótopo del uranio solo constituye el 0.72% del uranio natural, siendo el segundo isótopo más común en la naturaleza. Posee un tiempo de semivida de 0.704Gy, aproximadamente 6.5 veces más corto que el del U-238, siendo aún comparable con la edad de la Tierra, lo que ha permitido que siga presente en la corteza terrestre, formando una de las series de desintegración natural.

El U-235 sí es un núclido fisil lo que quiere decir que es capaz de experimentar una reacción de fisión después de absorber un neutrón térmico. De hecho, dentro de todos los isótopos actualmente existentes en la naturaleza, es el único fisil. Esto se caracteriza con que la sección eficaz de fisión es de 585barns para neutrones lentos y de aproximadamente 1 para los rápidos.



Generalmente, cuando este núclido sufre fisión, se divide en menores (en menor probabilidad puede darse una fisión triple) junto con los neutrones térmicos ya comentados y la liberación de energía en forma de calor y rayos gamma. Lo más probable es que la división se realice en fragmentos desiguales, siendo los más probables el cripton Kr-95 y bario Ba-137.

Respecto al fenómeno de absorción de neutrones, se tiene en cuenta también la posibilidad de que el neutrón absorbido no provoque la fisión, sino que sea capturado. Esto se debe a que el tamaño de la sección eficaz para la captura radiactiva de neutrones térmicos no es despreciable, del orden de 100barns. Por esta razón, un 15% de las reacciones de captura suponen la transmutación del U-235 en U-236 tras emisión de radiación gamma.



Otra característica importante es que el número de neutrones térmicos producidos por fisión (aproximadamente 2.43) es suficiente para mantener una reacción en cadena, convirtiéndolo en material muy estratégico, sea para fines civiles como militares. Por esta razón está muy controlado el proceso de enriquecimiento, siendo trazable todos los productos producidos en las respectivas centrales.

2.1.3 Enriquecimiento

Este proceso es necesario para crear el combustible nuclear a partir del uranio extraído, aumentando el porcentaje de U-235 que se somete a fisión con neutrones térmicos. Los reactores de agua ligera como es el PWR requieren de este tratamiento para poder operar, sin embargo, otros reactores como el reactor canadiense CANDU y el reactor de sal fundida pueden usar uranio natural como combustible. [11]

El combustible nuclear se extrae de depósitos naturales de mineral de uranio y luego se aísla mediante reacciones químicas y procesos de separación. En su forma aislada, el uranio se conoce como torta amarilla o urania y se presenta como U_3O_8 . Sin embargo, como se mencionó previamente, el uranio natural no tiene una concentración suficientemente alta de U-235 para mantener una reacción nuclear en cadena, alrededor del 0,72% frente al resto que es U-238. Debido a esto, la concentración de U-235 debe aumentarse antes de que pueda usarse efectivamente como combustible nuclear. El objetivo del enriquecimiento de uranio es, así, aumentar el porcentaje del U-235 con respecto a otros, con un porcentaje necesario de alrededor del 4% para los reactores de agua ligera.

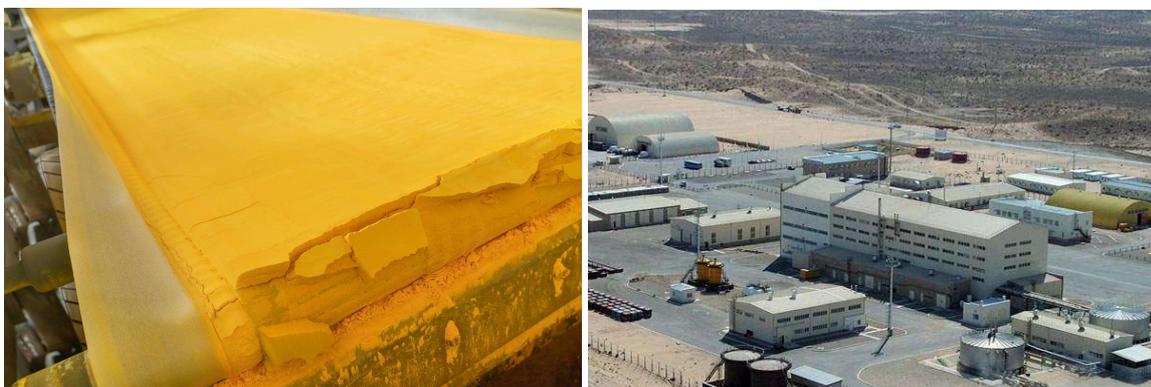


Figura 10. *Yellow cake* sobre cinta, en la planta industrial de Muyunkum. El mineral extraído de las menas de uranita se tritura finamente y el uranio se extrae mediante una serie de operaciones químicas. Esto se conoce como “procesamiento”, siendo el resultado la conocida pasta amarilla, conteniendo un 75% de óxido de uranio U_3O_8 . [12] A la derecha, imagen de la planta, con una producción anual entre 1,500tm y 4,000tm de uranio.

Para continuar con la preparación del material combustible, la urania se purifica mediante una serie de transformaciones químicas y se convierte en la forma fluorada UF_6 , operación denominada “conversión”. Libre de impurezas, el material experimenta la etapa propiamente conocida como “enriquecimiento”.

La etapa del enriquecimiento requiere que el uranio esté en forma gaseosa, razón por la cual la urania se transformó en UF_6 . Esto se debe a que el método de separación de los distintos isótopos del uranio no puede hacerse por separación química puesto que se comportan igual, sino por separación física, debido a la sutil diferencia de masas entre las moléculas del UF_6 . Esta diferencia es más identificable cuando el material está en

el estado gaseoso.

Los métodos más comunes para la separación de estos isótopos son la difusión gaseosa, la centrifugación y la separación por láser. El más extendido de todos ellos es el proceso de centrifugación.

El UF_6 se alimenta a un cilindro que contiene un rotor. Cuando el rotor se hace girar a altas velocidades, las moléculas del hexafluoruro de U-238, que es el isótopo más pesado, se acumula cerca de las paredes del cilindro, mientras que las del U-235, sutilmente más ligero, se acumula cerca del eje central. El producto enriquecido se retira. Estas plantas centrifugadoras son muy compactas, ventaja frente a la difusión gaseosa, y energéticamente más eficientes.



Figura 11. Nueva actualización de la central de centrifugado en Natanz, Irán. Imagen proporcionada por la Organización de Energía Atómica de Irán (noviembre, 2019). La instalación asegura ser capaz de aumentar el enriquecimiento de uranio más allá del 20%, en violación del acuerdo nuclear internacional de 2015 con las potencias mundiales. Como se puede observar, los centrifugadores se conectan también formando cascadas paralelas.

El enriquecimiento repercute aproximadamente como la mitad del coste de fabricación del combustible nuclear y el 5% del coste sobre la electricidad generada. Puede considerarse que este proceso es la principal fuente de gases de efecto invernadero del ciclo del combustible nuclear, ya que la electricidad utilizada para el enriquecimiento puede proceder de fuentes no verdes. Aún habiendo emisiones de gases de efecto invernadero asociadas, solo representa alrededor del 0.1% de las emisiones de una central eléctrica de carbón equivalente.

2.1.4 Plutonio

Un aspecto importante y fundamental de la energía nuclear es que, en lugar de usar el combustible nuclear preparado una vez y, tras quemarlo, desecharlo, gran parte del combustible gastado se puede reciclar, cerrando así el ciclo del combustible.

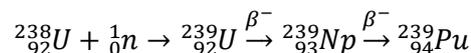
El medio actual de hacerlo es separando el plutonio de los productos para posteriormente mezclarlo con uranio empobrecido, formando el combustible de óxido mixto (MOX) de UO_2 y PuO_2 , típicamente con porcentajes en masa de 7% de Pu-239 y 93% de U-238, mostrando un comportamiento similar como combustible que la mezcla típica de uranio enriquecido. Respecto al uranio, muy poco de este se recupera.

Otra forma de cerrar el ciclo del combustible es reciclar todo el uranio y el plutonio sin separarlos, y completar con un poco de uranio enriquecido a un nivel más alto de lo habitual (17% U-235). Este es combustible de mezcla regenerada (REMIX, *regenerated mixture*). En cada caso, los productos de fisión y los actínidos menores se separan como desechos de alto nivel cuando se procesa el combustible gastado. En el punto posterior se desarrolla la composición de estos residuos.

Normalmente, con el cambio de combustible cada año y medio, aproximadamente la mitad del Pu-239 se gasta en el reactor, proporcionando más de un tercio de la energía total. Se comporta como U-235 y su fisión libera una cantidad similar de energía. Cuanto mayor es el consumo, menos plutonio permanece fisionable en el combustible usado. Típicamente, aproximadamente el uno por ciento del combustible usado descargado de un reactor es plutonio, y aproximadamente dos tercios de este es fisionable (50% Pu-239, 15% Pu-241). En todo el mundo, se eliminan unas 70 toneladas de plutonio contenido en combustible usado al reabastecer reactores cada año.

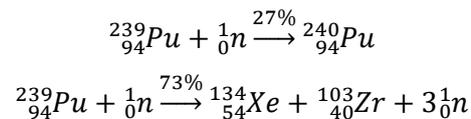
Este núclido es un isótopo fisil pues es capaz de experimentar la reacción de fisión tras la absorción de un neutrón térmico. Además, en cada reacción de fisión se producen 2.88 neutrones térmicos, por lo que es suficiente para mantener una reacción en cadena.

El origen del isótopo dentro del combustible nuclear se remonta a la captura de un neutrón por parte del U-238 natural. Transformado en U-239, por desintegración beta negativa con un tiempo de semivida de 23.5 min, se transforma en Np-239 con tiempo de semivida de 2.35 días, produciéndose al final de esta cadena el Pu-239.



El Pu-239 sufre desintegración alfa transmutándose en U-235, pero dado que el período de semivida es de 24100 años, la producción adicional de U-235 en los elementos combustibles por este mecanismo es despreciable.

La sección eficaz de absorción de neutrones térmicos es de 750 barns, mientras que para neutrones rápidos es del orden de varios barns. Generalmente, la absorción de neutrones desencadena en una reacción de fisión, pero existe también la posibilidad de capturar el neutrón y transmutarse en Pu-240 con emisión gamma. La sección eficaz para captura radiante de neutrones térmicos es de 270. De esta forma, los mecanismos más probables son:



Generalmente, la fisión del Pu-239 se produce en dos fragmentos núclidos más pequeños, desprendiendo calor y radiación gama. Lo más probable es que la división se realice en fragmentos desiguales, siendo los más comunes el criptón Xe-134 y bario Zr-103.

2.2 Fisión nuclear

Aun habiéndose tratado de forma individual las reacciones de fisión experimentadas por los constituyentes del combustible, se procede a explicar un poco de la teoría que explica este fenómeno.

La fisión nuclear es una reacción nuclear en la cual el núcleo de un átomo se divide en núcleos más ligeros.

El término se refiere tanto a una reacción nuclear como a un proceso de desintegración radiactiva, siendo este último denominado *fisión espontánea*, proceso muy poco común. En este apartado, se discutirá la *fisión nuclear inducida por neutrones*, el proceso de mayor importancia práctica en la física del reactor.

En la fisión nuclear inducida por neutrones, un neutrón incidente es absorbido por el núcleo pesado (*fisionable*), formando un núcleo compuesto excitado a un nivel de energía tan elevado que el núcleo acaba dividiéndose en fragmentos, o núcleos hijos. En el proceso se libera gran cantidad de energía en forma de radiación y energía cinética de las partículas. Además, y lo que es crucial, se pueden producir 2, 3 o más neutrones libres, permitiendo desencadenar nuevas reacciones de fisión y manteniendo así una reacción en cadena.

Es importante mencionar que no todo neutrón que se dirija a un núcleo puede provocar la fisión. Una división muy básica comprende los *neutrones rápidos* (1-20MeV) y *neutrones térmicos* (0,025eV), de gran interés en la tecnología nuclear. Así pues, existen núcleos que pueden experimentar fisión con unos tipos de neutrones y no así con otros. Véase como ejemplo el U-238, que es el isótopo de uranio más común en la corteza terrestre: prácticamente no experimenta fisión mediante absorción de neutrones térmicos. Esto se mide con el concepto

de sección eficaz (medida en Barn), puesto que tiene una sección eficaz de fisión considerablemente más elevada para neutrones rápidos que térmicos. Esto se desarrollará cuando se hable de la composición del combustible.

En contraposición con el ejemplo del U-238, se encuentra el núclido U-235, que experimenta fisión con neutrones térmicos. A este tipo de núclido se les denomina *físil*, siendo un subconjunto del total de núclidos fisionables.

Para comprender esta reacción, se introduce el concepto de *energía de enlace* nuclear. Esta energía se traduce como la energía requerida para desarmar un núcleo atómico en sus componentes, los nucleones. Los protones y neutrones en el núcleo se mantienen unidos por la interacción nuclear fuerte. La masa del núcleo siempre es menor que la suma de las masas de los protones y neutrones constituyentes. Esa diferencia másica es una medida de la energía de enlace nuclear, conociéndose como *defecto de masa*.

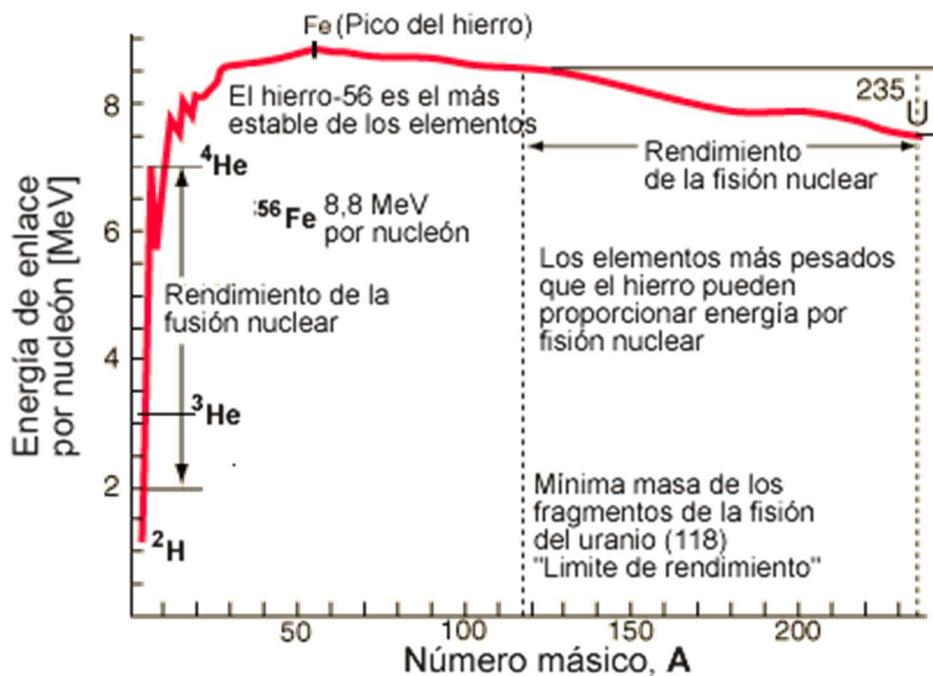


Figura 12. Para un núcleo de número másico A (número de nucleones), la energía de enlace nuclear por nucleón es E_b/A [Wikimedia]. Esta magnitud se muestra en la gráfica (eje vertical) frente al número másico A (eje horizontal). Para números másicos bajos, la magnitud aumenta rápidamente y alcanza un máximo de 8.8 MeV a aproximadamente $A = 60$, siendo los núclidos con las energías de enlace más altas Fe-56, Fe-58 y Ni-62. Después de eso, la energía de enlace relativa disminuye. Para los núcleos pesados ($A > 60$), se obtiene una configuración más estable, cuando un núcleo pesado se divide en dos núcleos más ligeros (también existe la fisión en más fragmentos). Este es el origen del proceso de fisión. Sin embargo, aunque pueda parecer que todos los núcleos pesados pueden sufrir fisión (inducida o espontánea), la fisión ocurre muy raramente. Para que el proceso de fisión tenga lugar, se debe agregar una cantidad suficiente de energía al núcleo. En la cola de la gráfica se tienen los dos isótopos del uranio más comúnmente empleados en la tecnología nuclear de potencia.

En principio, cualquier núcleo en un estado energético lo suficientemente alto puede experimentar fisión. Esa energía de excitación debe estar por encima de un valor particular para ciertos núclidos, conociéndose como *energía crítica*. La energía crítica depende de la estructura nuclear y es bastante grande para núcleos ligeros ($Z < 90$). Para núcleos más pesados ($Z > 90$), siendo de aproximadamente 4 a 6 MeV para núcleos con un número par de nucleones (A), y generalmente es mucho más baja para núclidos de A impar. Cabe señalar que algunos núcleos pesados, como el Pu-240, experimentan fisión incluso en el estado fundamental de energía. Este fenómeno se conoce como fisión espontánea. La fisión espontánea contribuye a asegurar suficiente flujo de neutrones en los detectores de rango de fuente cuando el reactor es subcrítico en el apagado a largo plazo.

2.3 Burn-up

En la tecnología nuclear de potencia, el término *burn-up* (grado de combustión) es un coeficiente que representa cuánta energía ha sido extraída del combustible nuclear. Es, por tanto, un factor de utilización.

Para entender este concepto, se rescata el objetivo del procesamiento del combustible. Como este no está formado enteramente por material fisil, se necesita enriquecerlo de forma que la fisión pueda producirse de forma sostenida. Cuanto mayor enriquecimiento, mayor es el tiempo en el que el combustible mantiene la reacción en cadena. Y cuanto más tiempo permanece el combustible en el reactor, mayor es el grado de combustión.

Puede definirse como el porcentaje núcleos del combustible que se han fisionado respecto al total. Sin embargo, la monitorización del número de átomos fisionados puede requerir de costosas técnicas de instrumentación. En su lugar, se define como la cantidad de energía producida por el combustible consumido. Se expresa en GWdía/MT, y su valor medio para centrales nucleares modernas ronda los 45. Esto es, para una central moderna de 3000MW térmicos (1GWe) operativa los 365 días del año en la que se gastan 24 toneladas de uranio enriquecido.

Cómo de caliente o radiactivo esté este combustible gastado depende tanto del grado de combustión, así como de la composición inicial del combustible y las condiciones de operación del núcleo. De esta forma queda estrechamente relacionado el grado de combustión con el diseño de los sistemas de la planta, puesto que cada uno tiene sus límites para soportar la temperatura y radioactividad que le rodea. Esto condiciona también las instalaciones y los protocolos para gestionar el combustible retirado del núcleo del reactor.

Dado que el combustible nuclear está revestido de metal, durante la quema, este revestimiento reacciona con el agua de refrigeración. Esta reacción forma óxido en el exterior y libera hidrógeno, provocando que la composición del revestimiento pueda cambiar. Estos procesos comienzan lentamente y se acentúan a medida que el burn-up crece hasta el valor de 45 GWdía/MT. Esta es otra razón por la que es importante controlar el burn-up, para que en el almacenamiento en seco y los paquetes de transporte una vez se evacúen de la central los residuos puedan mantener el combustible de manera segura.

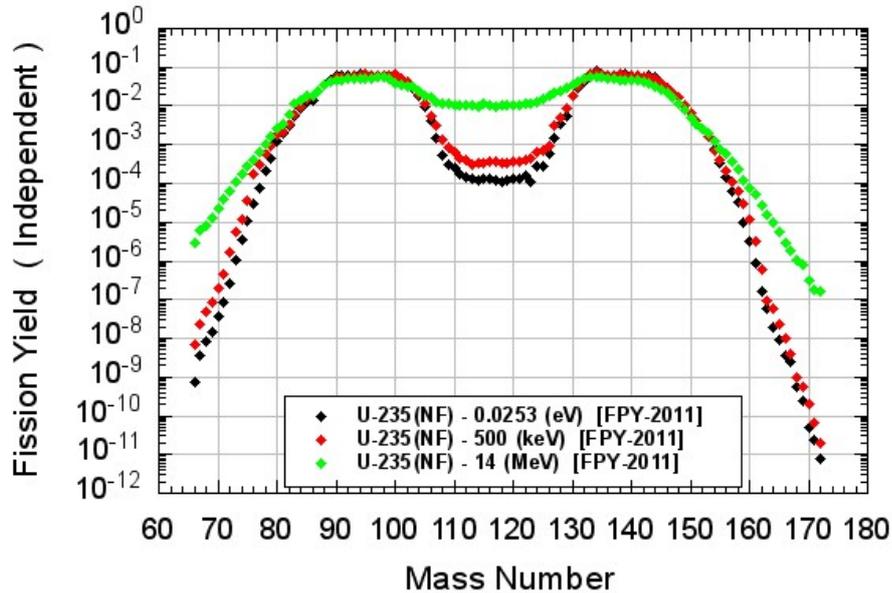
2.4 Productos de fisión

Describiendo la composición inicial del combustible nuclear, se introdujeron dos reacciones nucleares de fisión, una del U-235 y otra del Pu-239. Las dos reacciones mostradas no son las únicas que se producen, sino las más comunes.

La división del núcleo en otros dos fragmentos se produce de forma aleatoria; la descripción de las interacciones a esta escala posee un carácter inherentemente probabilista.

Generalmente, cuando el núcleo de U-235 sufre fisión, se divide en dos núcleos más pequeños, junto con unos pocos neutrones y libera energía en forma de calor (energía cinética de estos fragmentos) y radiación gama. El promedio de la masa del fragmento es de aproximadamente 118, pero se encuentran muy pocos fragmentos cerca de ese promedio. Como se mostró, es mucho más probable que se rompa en fragmentos desiguales, y las masas de fragmentos más probables están alrededor de la masa 95 y 137. Pero existen otras muchas combinaciones que se dan con probabilidades considerables.

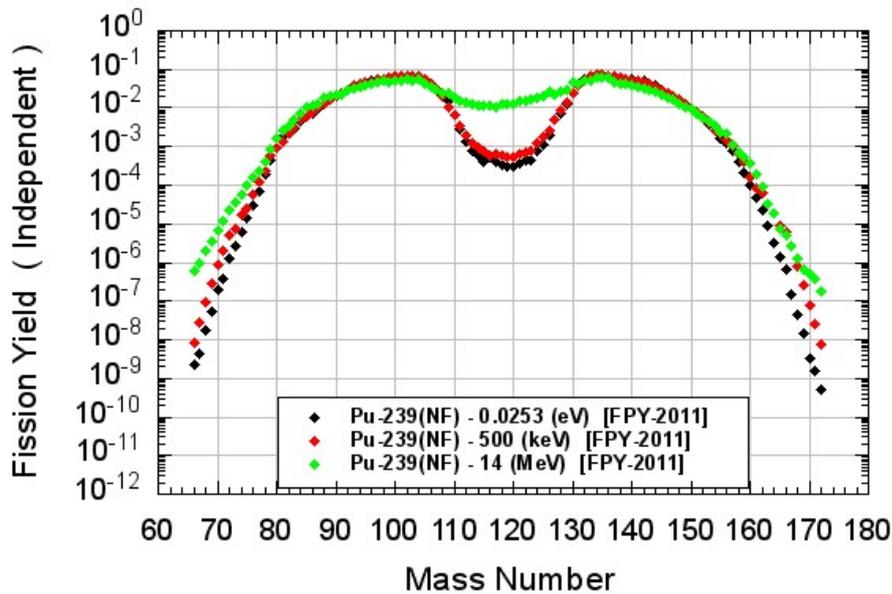
U-235 Neutron-induced Fission Yields



JAEA Nuclear Data Center

Figura 13. Frecuencia de los productos de fisión del U-235 por número másico para la absorción de neutrones de distintas energías. Para la mayor frecuencia, la fisión del isótopo se produce en Kr-95 y Ba-137. La gráfica que más ocupa en el contexto de la producción de potencia es la negra, siendo la distribución de masas de los fragmentos para la absorción de neutrones térmicos. [13]

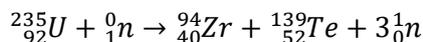
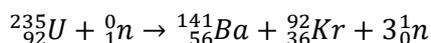
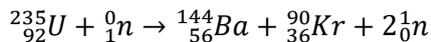
Pu-239 Neutron-induced Fission Yields



JAEA Nuclear Data Center

Figura 14. Frecuencia de los productos de fisión del Pu-239 por número másico para la absorción de neutrones de distintas energías. El valle intermedio, a medida que aumenta la energía de los neutrones y/o la energía del átomo fisionable, se vuelve más superficial. Esto implica que se vuelve más probable la fisión simétrica. Para la mayor frecuencia, la fisión del isótopo se produce en Xe-134 y Zr-103. La gráfica relativa a los neutrones térmicos es la negra. [14]

Así de la fisión del U-235 se producen otros isótopos distintos a los comentados. Véase a modo de ejemplo las siguientes reacciones, donde se muestra la formación de isótopos del mismo elemento o distinto.



En total pueden desprenderse de la fisión nuclear del U-235 más de cincuenta núclidos distintos. Y de forma análoga sucede en la fisión experimentada por el Pu-239. Por esta razón, para la realización del proyecto se escogió un número de especies con un porcentaje de aparición mayoritario y con un tiempo de semivida lo suficientemente largo como para poder ser considerado tras la retirada del combustible nuclear gastado del reactor del núcleo.

Aproximadamente, 33kg por tonelada métrica (33% masa) de combustible gastado lo forman los productos de fisión del plutonio y uranio.

Tabla 3

Radiactividad de los principales productos de fisión del combustible nuclear irradiado.

Isótopo	Tiempo de semivida	Actividad por año en descarga (10^6Ci)
H-3	12.4y	$1.93 \cdot 10^{-2}$
Kr-85	10.76y	0.308
Sr-90	27.7y	2.11
Zr-95	65.5d	37.3
Ru-106	368d	14.8
Sb-125	2.71y	0.237
I-129	$11.7 \cdot 10^7$ y	$1.01 \cdot 10^{-6}$
I-131	8.05d	23.5
Xe-133	5.27d	43.9
Cs-134	2.05y	6.7
Cs-137	30y	2.94
Ce-144	284d	30.2
Sm-151	87y	$3.41 \cdot 10^{-2}$
Eu-154	16y	0.191
Eu-155	1.81y	0.204

Nota: Se asume que es de una central PWR de 1000MWe, con enriquecimiento al 3.3% en U-235 y operado durante 3 años a un burn-up de 33 GWdía/MT. [15]

2.5 Actínidos. Formación de plutonio y otros elementos transuránicos

Cuando un neutrón es absorbido por un núcleo, este no experimenta necesariamente fisión, como se comentó con la formación de plutonio a partir del núclido U-238. Puede formarse así elementos con mayor número atómico que el uranio, denominándose elementos transuránicos, siendo todos producidos de forma artificial.

Al igual que todo fenómeno a la escala atómica, la formación de los elementos transuránicos también posee carácter probabilista. El U-238, en lugar de absorber un solo neutrón, también puede capturar una partícula alfa y transmutar en otro isótopo del plutonio, el Pu-242, entre otros ejemplos.

El combustible gastado contiene alrededor de 10 kg de plutonio, representando aproximadamente 1% de la masa total. El núclido de Pu-239 es el más abundante (5,7 kg). Los actínidos distintos del plutonio (neptunio, americio y curio) son menos abundantes, sumando alrededor de 800 g por tonelada de combustible. Estos núclidos se conocen como actínidos menores. El principal actínido menor es el Np-237.

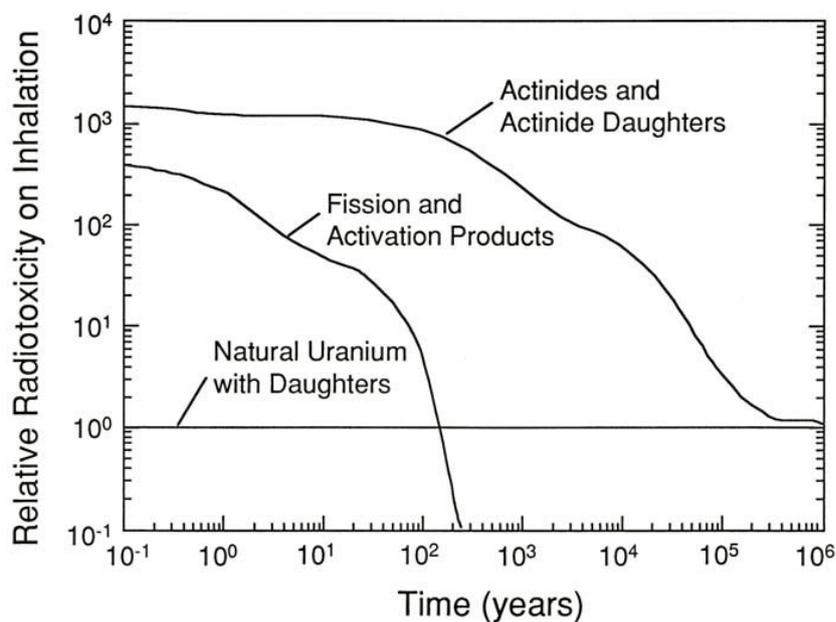


Figura 15. Radiotoxicidad relativa por inhalación de combustible nuclear gastado con una ratio burn-up de 38 GWdía/MT. Los valores de radiotoxicidad son relativos a la radiotoxicidad (línea horizontal) de la cantidad de mineral de uranio que se extrajo originalmente para producir el combustible (8Tm de combustible natural produce 1Tm de uranio enriquecido, 3.5% U-235). Se observa que la mayor toxicidad es la relativa a los productos transuránicos, poseyendo además gran actividad durante períodos de tiempo muy largos. [16]

Tabla 4

Radioactividad de los principales actínidos en el combustible nuclear irradiado

Isótopo	Tiempo de semivida	Actividad por año inicial (Ci)	Concentración másica ($\frac{kg}{kgU}$)
U-234	$2.47 \cdot 10^5 y$	19.4	$1.43 \cdot 10^{-4}$
U-236	$2.36 \cdot 10^7 y$	7.22	$4.83 \cdot 10^{-3}$
Np-237	$2.14 \cdot 10^6 y$	14.4	$8.11 \cdot 10^{-4}$
Pu-238	86y	$1.01 \cdot 10^5$	$3.72 \cdot 10^{-4}$
Pu-239	24400y	$8.82 \cdot 10^3$	$5.81 \cdot 10^{-3}$
Pu-240	6580y	$1.30 \cdot 10^4$	$2.84 \cdot 10^{-3}$
Pu-241	13.2y	$2.81 \cdot 10^6$	$1.82 \cdot 10^{-3}$
Pu-242	$3.79 \cdot 10^5 y$	37.6	$1.02 \cdot 10^{-3}$
Am-241	458y	$4.53 \cdot 10^3$	$2.28 \cdot 10^{-4}$
Am-243	7950y	477	$2.38 \cdot 10^{-4}$
Cm-242	163d	$4.40 \cdot 10^5$	$2.76 \cdot 10^{-5}$
Cm-244	17.6y	$7.38 \cdot 10^4$	$1.41 \cdot 10^{-4}$

Nota: Se asume un enriquecimiento del 4.1% en U-235 y operado durante 3 años a un burn-up de 52.5 GWdía/MT.

2.6 Productos de activación

Durante las operaciones de la planta, ciertos componentes y estructuras resultan contaminados con radionúclidos. Además de la contaminación de la superficie, también se produce la *activación*, mediante la cual los núclidos inicialmente no radiactivos se convierten en núclidos radiactivos. Este proceso conduce, por ejemplo, a la formación de Ca-41 en la estructura de hormigón de 1-2 m de espesor que rodea el recipiente a presión del reactor. Por lo tanto, parte del hormigón debe eliminarse como residuo radiactivo después del desmantelamiento.

Los productos de activación en el circuito de refrigerante primario de un reactor son una razón principal por la que los reactores usan una cadena de dos o incluso tres circuitos de refrigerante unidos por intercambiadores de calor.

En particular son especialmente afectados los componentes estructurales metálicos, las rejillas de soporte y el revestimiento alrededor de los gránulos de combustible. Los principales productos de activación son Co-58 y 60, Mn-54, Sb-124, H-3 y C-14. Son radiactivos, pero suelen tener vidas medias cortas.

La cantidad de estos radionúclidos puede limitarse seleccionando cuidadosamente los elementos presentes en los elementos combustibles. Por ejemplo, se han desarrollado ciertas aleaciones de acero y circonio en las que se minimiza el contenido de cobalto, reduciendo así la formación de Co-60 altamente radiactivo.

Es importante saber con la mayor precisión posible qué radionúclidos están presentes en qué cantidades en los componentes de la planta, por ejemplo, para la planificación de la protección contra la radiación o para la selección de métodos y protocolos para la descontaminación de los componentes. También es clave para determinar qué materiales derivados del desmantelamiento pueden reutilizarse o eliminarse como residuos convencionales y cuáles deben clasificarse como residuos radiactivos.

3 FUNDAMENTOS DE LA DESINTEGRACIÓN RADIATIVA

La radiactividad es un proceso espontáneo en el cual la estructura del núcleo cambia, transmutándose en otro distinto. Este proceso es experimentado por núcleos inestables, aquellos cuya energía de ligadura de sus constituyentes no es suficiente para mantener el conjunto ante un exceso de nucleones. Por un lado, parece evidente cómo el exceso de protones puede suponer inestabilidad: se da un exceso de energía interna debida a la excesiva interacción electromagnética de los protones, de forma que la interacción nuclear no pueda contrarrestarla. Sin embargo, la razón por la que un exceso de neutrones inestabiliza el núcleo no parece del todo obvia. Esta puede justificarse con otra aproximación.

El modelo de capas nuclear describe relativamente bien el comportamiento general de las energías de enlace. Los protones y los neutrones ocupan orbitales de energía similares al del electrón en un átomo de hidrógeno. Sin embargo, los protones y neutrones son fermiones distinguibles, por lo que las capas de energía que ocupan son independientes. Esto supone que los niveles más bajos puedan ser ocupados tanto por neutrones y protones

Según el modelo de capa, los protones y los neutrones en los núcleos ocupan niveles de energía similares a los niveles de energía de los electrones en un átomo de hidrógeno. Sin embargo, dado que los protones y los neutrones son fermiones distinguibles, el apilamiento sobre los niveles de energía que ocupan es independiente. Esto significa que los niveles más bajos de energía pueden ser ocupados simultáneamente por neutrones y protones, ya que no son indistinguibles.

Si se agregan muchos neutrones a un núcleo, se ven obligados a llenar niveles cada vez más altos, mientras que hay niveles más bajos disponibles para los protones. Por lo tanto, el núcleo puede reducir su energía al convertir los neutrones en protones a través de la desintegración beta negativa, y es por eso por lo que estos núcleos ricos en neutrones son inestables. El exceso de protones se puede ver de forma análoga, resultando en la conocida desintegración beta positiva.

Desde el año 2019, se conocen alrededor de 3000 tipos de núclidos, siendo solo 252 estables, es decir, aquellos en los que no se ha presenciado desintegración alguna. Dentro de los inestables conocidos, existe mucha disparidad entre el tiempo que tarda en desintegrarse para tender a la estabilidad. Así, por ejemplo, existen núclidos primigenios encontrados en la naturaleza (de tiempos de semivida de orden de la edad de la Tierra) como otros que solo viven fracciones minúsculas del segundo, productos de laboratorio, como el H-7.

La *carta de Segré* es una gráfica bidimensional donde se representan todos los núclidos conocidos en función del número de protones y el número de neutrones. Se ilustra así el concepto de *valle de estabilidad*, siendo una forma de organizar todos los núclidos de acuerdo con su energía de enlace en función de los números de nucleones.

La mayoría de los estables tienen números aproximadamente iguales de protones y neutrones, por lo que la diagonal $Z = N$ forma una aproximación que define los nucleidos estables. Sin embargo, conforme crece el número de protones, se necesitan más neutrones para estabilizar el núcleo, por lo que los núclidos con valores mayores de Z requieren de un número aún mayor de neutrones para ser estables, desviándose de la diagonal.

Los núclidos inestables a menudo se descomponen en secuencias de reacciones llamadas *cadena de desintegración* que llevan los núclidos resultantes secuencialmente hacia las laderas del valle de la estabilidad, llevándolos hacia mayores energías de enlace, siendo estables los núclidos que terminan la cadena.

Existen numerosos mecanismos para que el núcleo evolucione hasta alcanzar la estabilidad. Los más comunes son la desintegración alfa, desintegración beta y desintegración gamma.

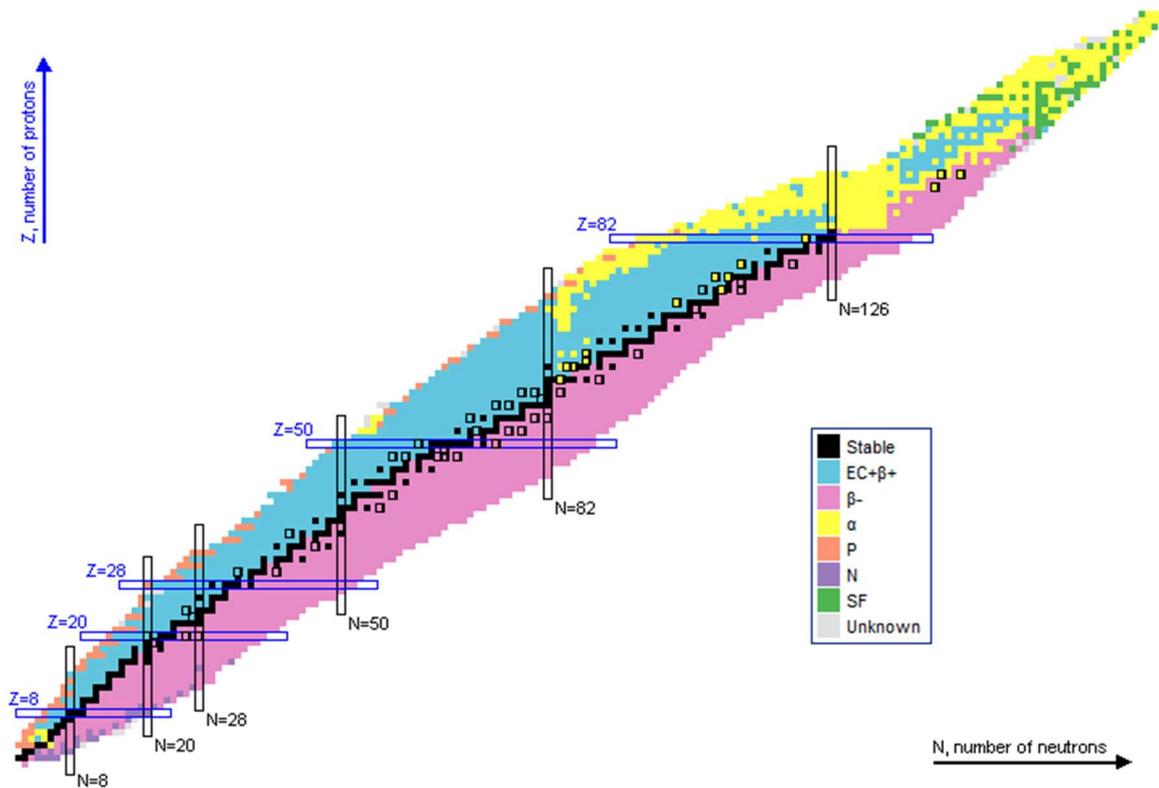


Figura 16. Carta de Segré. En vertical, el número de protones del núcleo. En horizontal, el número de neutrones. Los colores no representan la energía de enlace sino el tiempo de desintegración que experimentan los núclidos. Para valores pequeños de Z , se observa que los núclidos se sitúan sobre la diagonal $Z=N$. Sin embargo, para valores mayores de Z , los núclidos se quedan situados a la derecha de la diagonal, ilustrando que requieren de un mayor número de neutrones para ser estables. A un lado y otro de la curva de estabilidad que dibujan los núclidos se contempla la razón por la que se desintegran mayoritariamente: si los núclidos tienen exceso de neutrones, sufrirán desintegración beta negativa (en rosa); si por el contrario, tienen exceso de protones, desintegración beta positiva (celeste). [17]

3.1 Ley de desintegración radiactiva

El fenómeno de la desintegración está determinado por la mecánica cuántica, la cual ofrece un modelo de estudio inherentemente probabilista. Por esta razón no es posible determinar cuándo un núcleo concreto va a desintegrarse, pero pueden realizarse predicciones en base al comportamiento estadístico de poblaciones.

La *ley de desintegración radiactiva* dictamina que la probabilidad por unidad de tiempo de que un radionúcleo se desintegre es constante, independientemente del tiempo. Esta constante se denomina *constante de desintegración* λ , y es característica para cada tipo de núcleo inestable.

El *tiempo de semivida* $t_{1/2}$ de un radionúcleo es el tiempo transcurrido a partir del cual, de media, una población formada por este se disminuye a la mitad. Este tiempo está relacionado con la constante de desintegración como:

$$\lambda(s^{-1}) = \frac{\ln 2}{t_{1/2}(s)}$$

El número de núclidos que se desintegran por unidad de tiempo se define como *actividad*, que se mide en el Sistema Internacional con el Bequerelio (Bq), que equivale a una desintegración por segundo. Esta unidad es muy pequeña, empleándose el Curio (Ci) en su lugar, que son 37GBq, siendo aproximadamente la actividad de 1g de Ra-226. La actividad en un instante dado es directamente proporcional a la cantidad de núclidos presentes.

Para una muestra dada de N núcleos de una especie, la actividad se define matemáticamente como:

$$A = \lambda \cdot N$$

Tabla 5

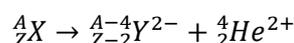
Núclidos principales en la composición inicial del combustible nuclear

Isótopo	Tiempo de semivida (años)	Masa para actividad de 1Ci	Tipo de desintegración
U-238	44.7G	2.98tm	$\alpha, SF(10^{-7})$
U-235	0.703G	463kg	$\alpha, SF(10^{-8})$
Pu-239	24.11k	16g	$\alpha, SF(10^{-10})$

Nota: se desintegran principalmente mediante emisión alfa, existiendo una remota posibilidad de fisionarse de forma espontánea (*Spontaneous Fission*).

3.2 Desintegración alfa

La desintegración α consiste en la emisión de dos protones y dos neutrones enlazados, constituyendo partículas idénticas al núcleo del He-4. La reacción nuclear de esta desintegración es:



En cada desintegración, la partícula α emitida tiene una energía determinada, es decir, el espectro de emisión es discreto, siendo el rango de valores desde 1.5MeV hasta 9MeV. Esto permite diseñar técnicas de detección selectivas para identificar los núclidos.

Son partículas muy energéticas, con una masa muy grande y, debido a su carga, tienen gran capacidad de ionización, siendo la más ionizante de las radiaciones.

Sin embargo, tienen poco poder de penetración, pues depositan su energía en un recorrido muy corto y son fácilmente frenadas. Por ejemplo, una partícula α de 5.3MeV penetra solo $37\mu m$ en la piel. Esta característica es importante desde el punto de vista de protección radiológica.

El U-238, formando aproximadamente el 97% del combustible de un reactor, experimenta desintegración α , el 77% de las veces con energía de 4.2MeV.

Como se observa en la carta de Segré (figura 16), este modo de desintegración solo se ha observado en núclidos considerablemente más pesados que el níquel, siendo los emisores α más ligeros conocidos los del telurio ($Z=52$) Te-106 y Te-110. Como tras la desintegración se pierde igual número de protones que de neutrones, la transmutación se produce aproximadamente al núclido inferior en la recta paralela a $Z=N$.

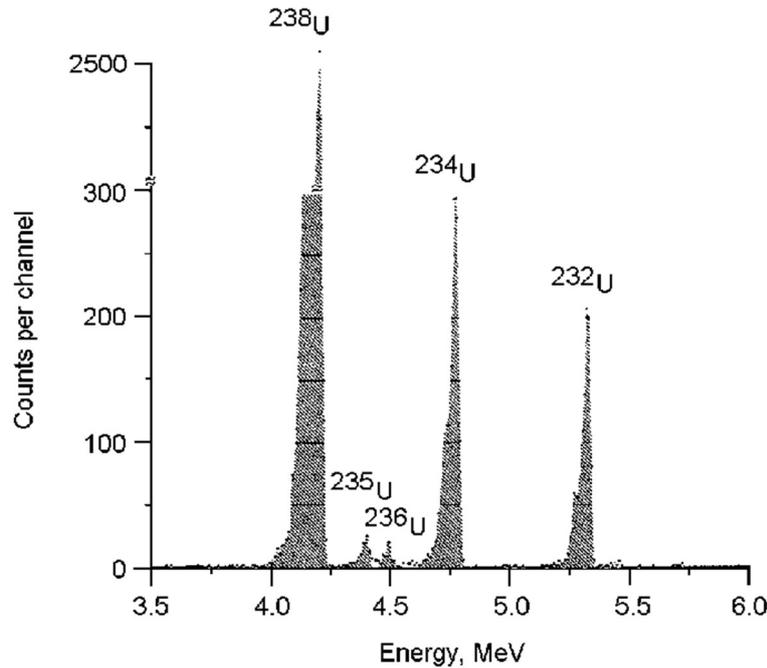


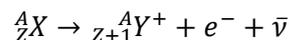
Figura 17. Resultados de una espectroscopía de partículas α en muestras de terreno contaminado en Kosovo. En el eje horizontal, la energía de la partícula detectada; en el vertical, el número de impulsos detectados. Para la desintegración de cada núclido de uranio, se observan picos de energía distinguibles. [18]

3.3 Desintegración beta

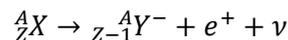
Los núclidos que experimentan desintegración beta ven conservado su número másico tras la transmutación. Se caracteriza por la emisión de una partícula β , que son electrones o positrones.

Las partículas β son partículas muy energéticas y de altas velocidades. Poseen un poder de penetración mayor que el de las partículas α , siendo menos ionizantes que estas.

En el caso de que un núclido posea mayor cantidad de neutrones que de protones, se produce la desintegración beta negativa, o *desintegración electrónica*. Dado que los electrones son partículas negativamente cargadas, debido a la ley de conservación de la carga eléctrica, la carga nuclear debe aumentar en una unidad. También se produce emisión de un antineutrino.



Si, por el contrario, el exceso es de protones sobre neutrones, el núclido experimenta desintegración beta positiva, o *desintegración positrónica*. Los positrones son antipartículas de los electrones, teniendo la misma masa, pero carga contraria. Por ello, su emisión reduce la carga nuclear en una unidad. Se produce también la emisión de un neutrino. Aparece así el fenómeno de aniquilación que se produce cuando tanto un positrón como electrón de baja energía colisionan.



En esta desintegración, la energía se reparte entre el núclido hijo, la partícula β y el neutrino (antineutrino). Dado que el núcleo se lleva poca energía, se puede considerar que el reparto es entre las otras dos partículas, siendo de forma aleatoria. Puesto que el electrón no recibe siempre la misma energía, se dice que el espectro de emisión es continuo, pues no podrán observarse picos definidos como en el caso de la espectroscopía α .

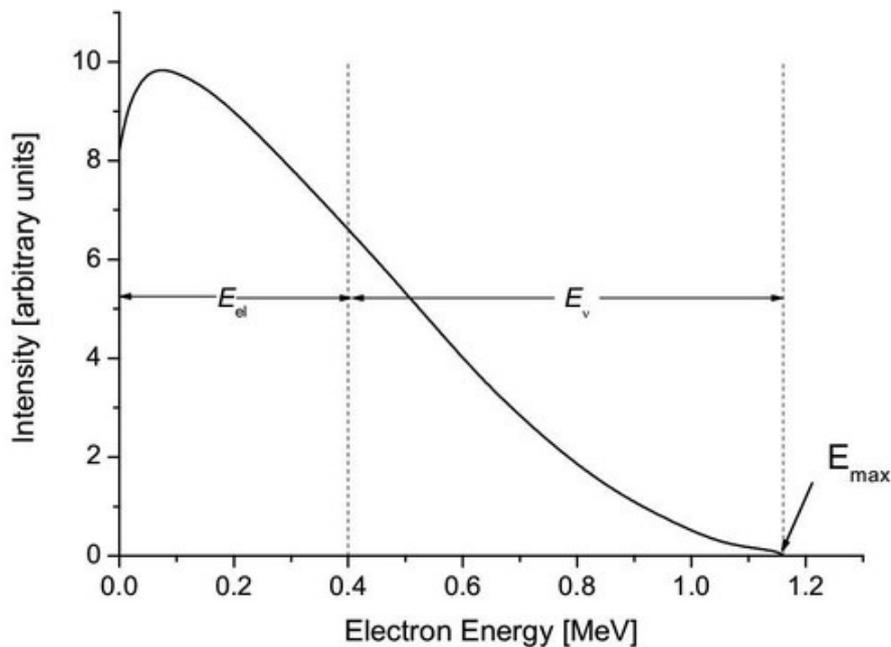


Figura 18. Espectroscopía de radiación β para una muestra con Bi-210. La energía a repartir entre el electrón y el antineutrino es 1.16 MeV. Un núcleo de Bi puede emitir un electrón con una energía de 1 MeV y el antineutrino se llevará el resto, 0.16 MeV. Pero otro núcleo de Bi al desintegrarse emite un electrón con una energía de 0.7 MeV y el antineutrino tendría 0.46 MeV. Es decir, cada vez que un núcleo de Bi se desintegra la energía del electrón no siempre es la misma. [19]

3.4 Desintegración gamma

Cuando un núclido experimenta desintegración γ , no cambia su número másico ni atómico, supone un reajuste de los niveles de energía ocupados por los nucleones.

Se habla de *isómeros* a núclidos con el mismo número de protones y mismo número de neutrones, pero diferente estado de energía. De esta forma un núclido se transforma en un isómero tras experimentar desintegración γ .

En la mayoría de las aplicaciones, los estados excitados se crean en la desintegración de un núclido padre, por lo tanto, una desintegración γ generalmente acompaña a otras formas de desintegración. Típicamente después de una desintegración γ , los núcleos generalmente contienen demasiada energía para estar en su estado estable o secundario final.

Los rayos γ son fotones de alta energía con longitudes de onda muy cortas (muy alta frecuencia). Estos fotones están en el rango de energía de unos pocos keV a ~ 8 MeV, lo que corresponde a los niveles de energía típicos en los núcleos con vidas razonablemente largas.

Dado que los rayos γ son solo fotones de muy alta energía, poseen un elevado poder de penetración y son biológicamente peligrosos. Se requieren de materiales densos y de elevado número atómico para ser absorbidos.

A diferencia del espectro de emisión de radiación β , el espectro de emisión de la radiación γ es continuo, puesto que la energía que libera el núcleo tras la desintegración dado el estado determinado es enviada mediante el fotón.

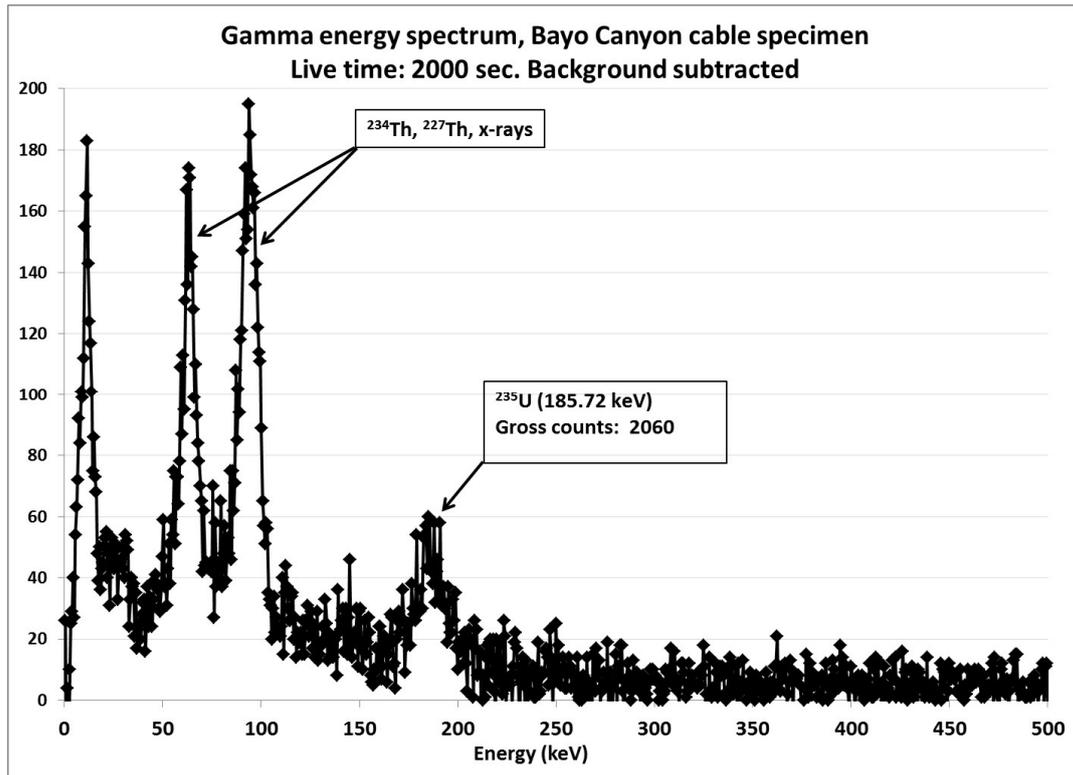


Figura 19. Resultados de una espectroscopía de rayos γ de una muestra de la cubierta de un cable contaminada en Bayo Canyon, Los Álamos, EE. UU. En la muestra se detectó suficiente radiación gamma como para identificar rastros de uranio. Los picos son consistentes con la radiación de desintegración prominente de U-235 a 185.72 keV (emitida en 57.2% de las desintegraciones). [20]

4 FORMULACIÓN MATEMÁTICA

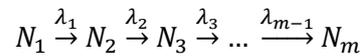
Tras una serie de experimentos sobre la emanación del torio, Lord Rutherford concluyó que la ley de desintegración radiactiva puede expresarse en un enunciado [21]: la cantidad de materia radiactiva que cambia por unidad de tiempo es constante. Esa constante es característica del tipo de materia considerado. La denominó, acordemente, constante de radioactividad. Esta ley establece que la velocidad a la que cambia la materia radiactiva es proporcional a la cantidad de esta.

4.1 Ecuaciones de Bateman

Un elemento radiactivo puede desintegrarse, a su vez, en otro radiactivo. Suponiendo que la desintegración se produce exclusivamente en un núclido, se plantea una serie de desintegración.

El problema de determinar el número de núcleos presentes de cada especie en un instante dado lo planteó Harry Bateman partiendo de las hipótesis que presentó Lord Rutherford cuando estudió el fenómeno de la desintegración radiactiva, estableciendo el modelo y resolviéndolo de forma genérica para una serie indefinida. [22]

Sea, pues, una serie radiactiva sin ramificaciones



Siendo N_i el número de núcleos presentes de la especie i -ésima y λ_i su constante de desintegración correspondiente, la dinámica del sistema se corresponde con la de un sistema homogéneo de EDOs lineales de coeficientes constantes:

$$\begin{cases} \dot{N}_1 = -\lambda_1 N_1 \\ \dot{N}_i = \lambda_{i-1} N_{i-1} - \lambda_i N_i \end{cases}$$

La cantidad de núcleos iniciales se desintegran en los siguientes. Sin embargo, para el resto de la estirpe, aparece un término adicional correspondiente a la formación de nuevos núcleos por la desintegración del elemento anterior.

Supuesta solo la presencia de núcleos del padre en el instante inicial, se tienen las siguientes condiciones iniciales:

$$\begin{cases} N_1(0) = N_0 \\ N_i(0) = 0 \end{cases}$$

Simplificando notación y notando que la expresión de la transformada de Laplace de la primera derivada es

$$\mathcal{L}\{\dot{N}_i\} = s\mathcal{L}\{N_i\} - N_i(0); \quad \mathcal{L}\{N_i\} = \mathcal{N}_i$$

aplicando la transformada de Laplace al sistema:

$$\begin{cases} s\mathcal{N}_1 - N_0 = -\lambda_1\mathcal{N}_1 \\ s\mathcal{N}_i = \lambda_{i-1}\mathcal{N}_{i-1} - \lambda_i\mathcal{N}_i \end{cases}$$

y reordenando términos:

$$\begin{cases} \mathcal{N}_1 = \frac{N_0}{s + \lambda_1} \\ \mathcal{N}_i = \frac{N_0}{\lambda_i} \prod_{j=1}^i \frac{\lambda_j}{s + \lambda_j} \end{cases}$$

Se observa que la estructura para la transformada de Laplace de un núclido dado tiene la siguiente estructura: el numerador está formado por el número de núclidos iniciales multiplicado por el producto de todas las constantes de desintegración de todos los antepasados de dicho núclido, y el denominador está formado por el producto de los factores $(s + \lambda)$ de todos los antepasados y de la propia especie (con el caso particular de $\lambda = 0$ si el núclido es estable).

Para resolver el sistema es necesario devolver las ecuaciones al dominio del tiempo aplicando la antitransformada, lo que hace necesaria la descomposición en fracciones simples. Dado que las fracciones están compuestas por factores lineales distintos, se tiene que:

$$\prod_{j=1}^i \frac{1}{s + \lambda_j} = \sum_{j=1}^i \frac{A_j}{s + \lambda_j}; \quad A_j = \frac{1}{\prod_{\forall k \neq j} (\lambda_k - \lambda_j)}$$

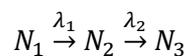
Descomponiendo el productorio en el sistema de ecuaciones transformado, preparando para antitransformar:

$$\begin{cases} \mathcal{N}_1 = \frac{N_0}{s + \lambda_1} \\ \mathcal{N}_i = \frac{N_0}{\lambda_i} \prod_{j=1}^i \lambda_j \sum_{j=1}^i \left(\frac{1}{\prod_{\forall k \neq j} (\lambda_k - \lambda_j)} \frac{1}{(s + \lambda_j)} \right) \end{cases}$$

La conversión es inmediata, conocida la transformada elemental $\mathcal{L}\{e^{-\lambda t}\} = \frac{1}{s + \lambda}$, se sigue que la solución desarrollada por Bateman al problema de la desintegración de una serie radiactiva es:

$$\begin{cases} N_1 = N_0 e^{-\lambda_1 t} \\ N_i = \frac{N_0}{\lambda_i} \prod_{j=1}^i \lambda_j \sum_{j=1}^i \left(\frac{e^{-\lambda_j t}}{\prod_{\forall k \neq j} (\lambda_k - \lambda_j)} \right) \end{cases}$$

Aplicando estas expresiones a una serie radiactiva simple de tres especies en la que solo se considera la presencia inicial de núcleos del padre:



Definiendo la abundancia relativa de cada elemento respecto a la cantidad inicial de núcleos del padre: $n_i := \frac{N_i}{N_0}$, se tiene que la evolución temporal de cada una de ellas es:

$$\begin{cases} n_1 = e^{-\lambda_1 t} \\ n_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} (e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_1 t}) \\ n_3 = 1 - (n_1 + n_2) \end{cases}$$

Nótese que la tercera ecuación no se ha obtenido mediante aplicación de la solución genérica, sino por balance de núcleos totales: dado que todo núcleo se transmuta en otro, la abundancia relativa de la especie más joven será igual al valor complementario de las otras dos. De esta forma se ha simplificado el cálculo a expensas de forzar la normalidad del vector solución.

La ventaja principal de la solución proporcionada por Bateman es su franqueza. La expresión analítica es fácilmente implementable en código, mediante bucles *for* para los productorios y sumatorios.

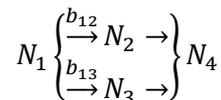
Nótese que el denominador de las expresiones plantea un potencial problema de cancelación numérica, puesto que puede resultar que dos núclidos de la serie radiactiva tengan constantes de desintegración muy próximas, contrayendo el denominador y perdiendo precisión en el resultado. Este es un problema independiente del método para la resolución del sistema de forma analítica.

4.1.1 Ramificación y recombinación

Las ecuaciones de Bateman ofrecen una solución directa al problema de las abundancias. Se mostró su aplicación para una serie indefinida. Sin embargo, pueden aplicarse también para la solución cuando aparecen los fenómenos de *ramificación*, por el que una especie se desintegra en varias, y *recombinación*, por el que distintas especies desintegran en otra común.

Sea una familia radiactiva arbitraria en la que una cantidad de núcleos de la especie inicial puede desintegrarse en cualquiera de los siguientes en la sucesión de familia, se hace necesario definir la *ratio de desintegración* del elemento i en el j , b_{ij} , de forma que la suma de todas las ratios de desintegración del elemento i en el resto de hijos ($j > i$) sea igual a la unidad: $\sum_{j>i} b_{ij} = 1$. De esta forma, la interpretación equivalente es la probabilidad de que ocurra el proceso de desintegración del núclido i en el j .

Se considera ahora un sistema en el que un núcleo padre se ramifica en dos especies y estas, a su vez, se recombinan en una especie común. Se considera solo presencia de la primera especie en el instante inicial.



La dinámica de poblaciones del sistema se describe mediante el siguiente conjunto de ecuaciones diferenciales:

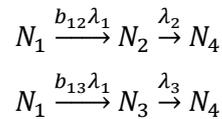
$$\begin{cases} \dot{N}_1 = -b_{12}\lambda_1 N_1 - b_{13}\lambda_1 N_1 \\ \dot{N}_2 = b_{12}\lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \dot{N}_3 = b_{13}\lambda_1 N_1 - \lambda_3 N_3 \\ \dot{N}_4 = \lambda_2 N_2 + \lambda_3 N_3 \end{cases}$$

Nótese que se puede multiplicar el crecimiento de la abundancia de '4' mediante desintegración de '2' por la probabilidad de que este suceso ocurra b_{24} , siendo igual a la unidad. De forma análoga, se hace para la formación de '4' por desintegración de '3', b_{34} .

La transformada de Laplace del sistema queda así:

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathcal{N}_1 = \frac{N_0}{s + \lambda_1} \\ \mathcal{N}_2 = b_{12} \frac{\lambda_1 N_0}{(s + \lambda_1)(s + \lambda_2)} \\ \mathcal{N}_3 = b_{13} \frac{\lambda_1 N_0}{(s + \lambda_1)(s + \lambda_3)} \\ \mathcal{N}_4 = b_{12} b_{24} \frac{\lambda_1 \lambda_2 N_0}{(s + \lambda_1)(s + \lambda_3)s} + b_{13} b_{34} \frac{\lambda_1 \lambda_3 N_0}{(s + \lambda_1)(s + \lambda_3)s} \end{array} \right.$$

De forma general se observa que para obtener la transformada de Laplace de la abundancia de la especie final, se deben sumar todos los caminos que parten a él desde el inicio de la serie, multiplicados cada uno de ellos por la probabilidad correspondiente. En este problema, solo existen dos caminos posibles:



Así, el trabajo para solucionar una familia radiactiva genérica consiste en desarrollar un algoritmo que produzca todos los caminos posibles, para luego aplicar la descomposición en fracciones simples como en el caso de las ecuaciones de Bateman.

Continuando con la resolución, se antitransforman las ecuaciones para cada uno de los núclidos, previa descomposición en fracciones simples, se obtiene la solución del sistema. Se han expresado en relación con la cantidad de núcleos iniciales (todos de la especie '1').

$$\left\{ \begin{array}{l} n_1 = e^{-\lambda_1 t} \\ n_2 = \frac{b_{12}\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} (e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_1 t}) \\ n_3 = \frac{b_{13}\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_3} (e^{-\lambda_3 t} - e^{-\lambda_1 t}) \\ n_4 = 1 - (n_1 + n_2 + n_3) \end{array} \right.$$

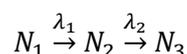
La abundancia '4' no se ha calculado mediante antitransformada (por simplificar el proceso) sino por balance de núcleos en la población total del sistema, puesto que se mantiene constante en toda la muestra. Así, se obtiene como el complementario de la suma de abundancias relativas del resto de especies. De nuevo, se ha forzado la normalización del vector solución.

4.1.2 Superposición

Hasta ahora, en ningún momento se había contemplado la posibilidad de que existiera una cantidad de núcleos iniciales de las diversas especies que forman parte de la familia radiactiva. Sin embargo, su aplicación es inmediata por el *principio de superposición*. Esta herramienta matemática es aplicable dada la linealidad del problema.

Así, sea una familia radiactiva con un número arbitrario de núcleos iniciales de las distintas especies que la conforman, la solución se obtiene sin más que considerar por separado cada una de las distintas poblaciones iniciales por especie, contemplándolas por separado para luego superponer las soluciones.

Como ejemplo ilustrativo se tiene la siguiente serie radiactiva de tres elementos, siendo el último estable:



El sistema de ecuaciones que describe el sistema es:

$$\begin{cases} \dot{N}_1 = -\lambda_1 N_1 \\ \dot{N}_2 = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \dot{N}_3 = \lambda_2 N_2 \end{cases}$$

La solución del sistema en el dominio de Laplace, considerando sólo una población inicial compuesta por la primera especie:

$$\begin{cases} \mathcal{N}_1 = N_{01} \frac{1}{s + \lambda_1} \\ \mathcal{N}_2 = N_{01} \frac{\lambda_1}{(s + \lambda_1)(s + \lambda_2)} \\ \mathcal{N}_3 = N_{01} \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(s + \lambda_1)(s + \lambda_2)s} \end{cases}$$

Si solo se considera al inicio la especie '2' se tiene:

$$\begin{cases} \mathcal{N}_1 = 0 \\ \mathcal{N}_2 = N_{02} \frac{1}{s + \lambda_2} \\ \mathcal{N}_3 = N_{02} \frac{\lambda_2}{(s + \lambda_2)s} \end{cases}$$

Y, por último, considerando solo una cantidad de núcleos de la especie '3':

$$\begin{cases} \mathcal{N}_1 = 0 \\ \mathcal{N}_2 = 0 \\ \mathcal{N}_3 = N_{03} \frac{1}{s} \end{cases}$$

Superponiendo las soluciones de estos subproblemas, se tiene la solución (en el dominio de Laplace) para una muestra que presenta núcleos de las tres especies.

$$\begin{cases} \mathcal{N}_1 = N_{01} \frac{1}{s + \lambda_1} \\ \mathcal{N}_2 = N_{01} \frac{\lambda_1}{(s + \lambda_1)(s + \lambda_2)} + N_{02} \frac{1}{s + \lambda_2} \\ \mathcal{N}_3 = N_{01} \frac{\lambda_1 \lambda_2}{(s + \lambda_1)(s + \lambda_2)s} + N_{02} \frac{\lambda_2}{(s + \lambda_2)s} + N_{03} \frac{1}{s} \end{cases}$$

Antitransformando, se obtiene la solución en el dominio del tiempo:

$$\begin{cases} N_1 = N_{01} e^{-\lambda_1 t} \\ N_2 = N_{01} \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \left(N_{01} \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} + N_{02} \right) e^{-\lambda_2 t} \\ N_3 = N_{03} - N_{02} (e^{-\lambda_2 t} - 1) + N_{01} \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} e^{-\lambda_1 t} - \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} e^{-\lambda_2 t} + 1 \right) \end{cases}$$

4.2 Integración numérica de EDOs acopladas

Otro enfoque para obtener la solución al problema de la desintegración radiactiva es mediante integración numérica de las ecuaciones diferenciales de primer orden lineales acopladas. Para familias de pequeña dimensión y bien definidas, la principal ventaja de esta solución es que se evita la pérdida de precisión inherente a la ecuación de Bateman cuando hay par de especies con constantes de desintegración muy próximas.

Sin embargo, tal ventaja se ve contrarrestada por la cantidad de recursos computacionales que son necesarios para resolver simultáneamente las cadenas de desintegración individuales y la rigidez que caracteriza el sistema cuando las constantes de integración difieren en muchos órdenes de magnitud. Esto supone que hay componentes en la solución con una dinámica mucho más rápida que otros, y aunque los de la dinámica lenta dominan la solución, estos de carácter transitorio determinan el paso del tiempo en la aplicación de los métodos numéricos aplicados al cálculo.

Respecto a la magnitud del sistema que se estudiará en el proyecto, este método puede aplicarse con facilidad en Matlab con el solucionador de ecuaciones diferenciales que trae implementado. Sin embargo, se ha decidido resolver el sistema mediante el siguiente método que se expone a continuación, que proporciona una expresión analítica para cada abundancia y la formulación es inmediata.

4.3 Exponenciación de matriz

4.3.1 Planteamiento

Un método general para la resolución de una familia radiactiva cualquiera es mediante exponenciación de matrices, siendo este un método empleado para resolver sistemas de ecuaciones lineales de primer orden con coeficientes constantes.

Con la definición de la ratio de desintegración parcial, se corrige el término que implica la formación de núclidos del elemento i como: $\Lambda_{ij} = b_{ji}\lambda_i$, para simplificar la notación.

De esta forma, la dinámica de poblaciones de una familia radiactiva genérica se describe mediante el siguiente sistema:

$$\begin{cases} \dot{N}_1 = -\lambda_1 N_1 \\ \dot{N}_i = \sum_{j=1}^{i-1} \Lambda_{ij} N_j - \lambda_i N_i \end{cases}$$

El sistema puede reescribirse como la siguiente ecuación matricial:

$$\dot{N} = AN$$

Siendo N el vector $m \times 1$ velocidades de desintegración, N el vector $m \times 1$ de las abundancias y A la matriz $m \times m$.

$$A = \begin{bmatrix} -\lambda_1 & 0 & 0 & \dots & 0 & 0 \\ \Lambda_{21} & -\lambda_2 & 0 & \dots & 0 & 0 \\ \Lambda_{31} & \Lambda_{32} & -\lambda_3 & \dots & 0 & 0 \\ \Lambda_{41} & \Lambda_{42} & \Lambda_{43} & \dots & 0 & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 \\ \Lambda_{m1} & \Lambda_{m2} & \Lambda_{m3} & \dots & \Lambda_{m(m-1)} & -\lambda_m \end{bmatrix}$$

Para el estudio de una única familia radiactiva, A es una matriz triangular inferior. Una característica muy relevante para el cálculo de la solución en este supuesto es que los autovalores de esta matriz son los elementos de la diagonal principal, siendo en este caso las constantes de desintegración de los núclidos del sistema.

La solución general del sistema es conocida, dado el vector $m \times 1$ de abundancias iniciales arbitrarias N_0 :

$$N = e^{tA}N_0$$

Presenta una clara ventaja: la composición de la matriz es inmediata e ilustra directamente las relaciones dentro de la familia. Por otro lado, otra ventaja es que permite resolver el problema de desintegración radiactiva en una muestra donde pueden aparecer series incluso desacopladas, con solo construir la matriz correspondiente.

En principio, la exponencial de una matriz puede calcularse de muchas maneras, como métodos que involucran teoría de la aproximación, mediante la resolución de un sistema de ecuaciones diferenciales auxiliar, con el análisis del espectro de la matriz, etc.

Una primera aproximación a la solución podría ser mediante el desarrollo en serie de Taylor de la exponenciación matricial.

Nombrando $B = tA$, la solución del sistema puede hallarse como sigue:

$$e^B N_0 = \left(I + B + \frac{B^2}{2!} + \frac{B^3}{3!} + \dots \right) N_0 = N_0 + BN_0 + \frac{B}{2}(BN_0) + \frac{B}{3}\left(\frac{B}{2}(BN_0)\right) + \frac{B}{4}\left(\frac{B}{3}\left(\frac{B}{2}(BN_0)\right)\right) \dots$$

Computacionalmente es viable: con el desarrollo y en serie de Taylor no se requiere de operaciones mayores que las de la matriz A $m \times m$ por el vector $m \times 1$. Sin embargo, no es muy eficiente, puesto que el tiempo de ejecución aumenta conforme lo hace la norma. [23] Además, aunque no aparezca el fenómeno de cancelación numérica de forma explícita, debido a los valores tan dispares o muy parecidos de los autovalores de la matriz, esta puede alcanzar un número de condición muy elevado, por lo que, para potencias muy elevadas de B , este número puede dispararse y concurrir en grandes variaciones en los resultados.

Por otro lado, puede hacerse una aproximación algebraica a la solución del sistema.

Siguiendo el método estándar para resolver un sistema homogéneo de ecuaciones diferenciales lineales de coeficientes constantes, se obtiene la solución compacta [24]:

$$N = V\Gamma V^{-1} N_0$$

Siendo Γ la matriz diagonal $m \times m$ cuyos términos son $e^{\gamma_i t}$, siendo γ_i los autovalores de la matriz A .

La matriz V es la matriz $m \times m$ formada por los autovectores dispuestos en columna de la matriz A .

Esta solución asume que no hay par de constantes de desintegración iguales, misma asunción considerada en el planteamiento de Bateman, puesto que la matriz A no puede ser defectiva. Además, no palia tampoco el hecho de que la matriz A pueda estar mal condicionada. En cambio, la aproximación al problema es mucho más elegante que mediante el desarrollo de la serie de Taylor, además de presentar la solución directa [22].

Sin embargo, hallar esta solución supone también cálculos muy costosos. Uno de los problemas más importantes en el análisis numérico consiste en calcular los autovalores (y autovectores) de una matriz. Existen muchos algoritmos para solucionar el problema de los autovalores. Un algoritmo muy extendido para hallarlos se denomina algoritmo QR. [25] La idea básica es realizar una descomposición QR, escribir la matriz como producto de una matriz ortogonal y una matriz triangular superior, multiplicar los factores en orden inverso e iterar. Se hace evidente así, el elevado coste computacional que supone un desarrollo así del problema.

El método más popular para calcular la exponenciación de una matriz es el método *scaling and squaring* [26] (escalado y elevado al cuadrado). Este método parte de la relación $e^B = (e^{B/\sigma})^\sigma$ para una matriz B y un escalar σ , con el hecho de que e^B puede aproximarse bien mediante la aproximación de Padé cerca del origen, es decir, se asume que la norma de B es pequeña. La idea es escoger un σ que sea una potencia entera de 2, $\sigma = 2^n$, de

forma que la norma de B/σ sea del orden la unidad y aproximar así $e^{B/2^n} \approx r_{km}(B/2^n)$, *scaling*, siendo r_{km} una aproximación de Padé $[k/m]$ de la exponencial. De esta forma, elevando ambos miembros, la aproximación se construye tras n cuadrados consecutivos, *squaring*.

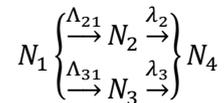
$$e^B \approx r_{km}(B/2^n)^{2^n}$$

Este algoritmo está implementado en MATLAB en la función *expm* (*exponential matrix*) y se emplea para la resolución de los problemas que se plantean en adelante.

4.3.2 Aplicación

Se propone comparar la solución obtenida mediante aplicación del método de los autovalores y autovectores con el de la exponenciación de matriz mediante la función *expm*.

Se considera el mismo sistema estudiado en el apartado anterior, en el que un núcleo padre se desintegra en dos especies distintas y estas, a su vez, desintegran en una especie común. Se considera solo presencia de la primera especie en el instante inicial.



La dinámica de poblaciones del sistema se describe mediante el siguiente conjunto de ecuaciones diferenciales:

$$\begin{cases} \dot{N}_1 = -\Lambda_{21}N_1 - \Lambda_{31}N_1 \\ \dot{N}_2 = \Lambda_{21}N_1 - \lambda_2N_2 \\ \dot{N}_3 = \Lambda_{31}N_1 - \lambda_3N_3 \\ \dot{N}_4 = \lambda_2N_2 + \lambda_3N_3 \end{cases}$$

Dado que $\Lambda_{21} = b_{12}\lambda_1$ y $\Lambda_{31} = b_{13}\lambda_1$, junto a $b_{12} + b_{13} = 1$, la primera ecuación puede simplificarse.

$$\begin{cases} \dot{N}_1 = -\lambda_1N_1 \\ \dot{N}_2 = \Lambda_{21}N_1 - \lambda_2N_2 \\ \dot{N}_3 = \Lambda_{31}N_1 - \lambda_3N_3 \\ \dot{N}_4 = \lambda_2N_2 + \lambda_3N_3 \end{cases}$$

La resolución para este caso mediante cálculo de autovalores y autovectores puede realizarse de forma manual sin mucha complejidad.

Por comodidad en el procedimiento, se considera el sistema compuesto por las especies '1', '2' y '3', puesto que la abundancia de la especie '4' puede hallarse conocidas las de las otras anteriores. Así, la matriz del sistema:

$$A = \begin{bmatrix} -\lambda_1 & 0 & 0 \\ \Lambda_{21} & -\lambda_2 & 0 \\ \Lambda_{31} & 0 & -\lambda_3 \end{bmatrix}$$

Cuyos autovalores son, por ser matriz triangular, los elementos diagonales. Así, la matriz Γ :

$$\Gamma = \begin{bmatrix} e^{-\lambda_1 t} & 0 & 0 \\ 0 & e^{-\lambda_2 t} & 0 \\ 0 & 0 & e^{-\lambda_3 t} \end{bmatrix}$$

La matriz con los autovectores columna ordenados y su inversa:

$$V = [v(-\lambda_1) \quad v(-\lambda_2) \quad v(-\lambda_3)]$$

$$V = \begin{bmatrix} \frac{-(\lambda_1 - \lambda_3)}{\Lambda_{31}} & 0 & 0 \\ \frac{\Lambda_{21}(\lambda_1 - \lambda_3)}{\Lambda_{31}(\lambda_1 - \lambda_2)} & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 1 \end{bmatrix}; V^{-1} = \begin{bmatrix} \frac{-\Lambda_{31}}{\lambda_1 - \lambda_3} & 0 & 0 \\ \frac{\Lambda_{21}}{\lambda_1 - \lambda_2} & 1 & 0 \\ \frac{\Lambda_{31}}{\lambda_1 - \lambda_3} & 0 & 1 \end{bmatrix}$$

Desarrollando los productos matriciales de la solución $N = V\Gamma V^{-1} N_0$, siendo $N_0 = [N_0 \ 0 \ 0]'$ y dividiendo el vector N por la abundancia de la especie padre en el instante inicial para obtener los valores relativos, se obtiene la solución.

$$n = \begin{bmatrix} e^{-\lambda_1 t} \\ \frac{\Lambda_{21}}{\lambda_1 - \lambda_2} (e^{-\lambda_2 t} - e^{-\lambda_1 t}) \\ \frac{\Lambda_{31}}{\lambda_1 - \lambda_3} (e^{-\lambda_3 t} - e^{-\lambda_1 t}) \end{bmatrix}$$

La abundancia relativa para la especie '4', tal y como se comentó, se obtiene como el complementario de la suma de abundancias relativas del resto de especies.

Se observa que la solución obtenida es exactamente la misma que mediante el método de la transformada de Laplace, al igual que la obtenida mediante la función de MATLAB.

A continuación, se realiza una serie de simulaciones para distintas combinaciones de los tiempos de semivida.

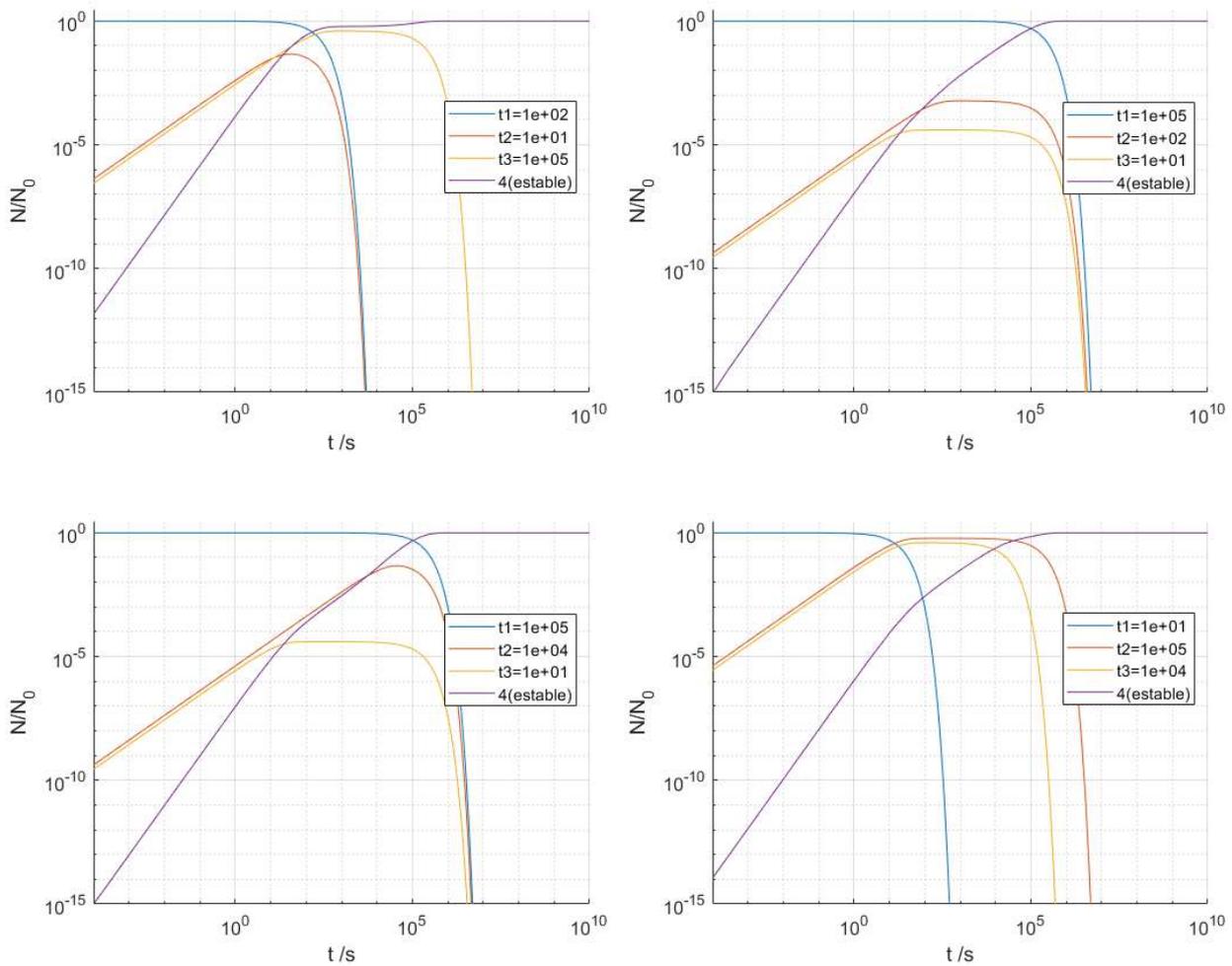


Figura 20. Abundancias relativas de las cuatro especies en distintos escenarios representativos. Las ratios de desintegración de la especie '1' en '2' y '1' en '3' son 0.6 y 0.4, respectivamente. Arriba a la izquierda, uno de los núclidos de la ramificación posee una vida media considerablemente mayor a los demás. Arriba a la derecha, el núclido padre tiene un tiempo de vida media muy superior al resto. Abajo a la izquierda, la especie del padre y de una de las ramas poseen tiempos de vida media muy elevados en comparación con la otra rama. Abajo a la derecha, las dos ramas tienen períodos de vida media muy elevados. Como se observa en cada una de ellas, la abundancia relativa de la especie '4' alcanza asintóticamente la unidad, como es de esperar al no desintegrarse.

En el primer escenario mostrado en la figura, el padre '1' tiene una constante de desintegración mucho mayor que la del hijo '3', situación de *no equilibrio* que se da a partir de cierto instante y en el que prácticamente toda la desintegración del padre supone toda la formación de ese hijo. Luego dado un tiempo lo suficientemente largo, los núcleos de la especie '3' transmutan todos en la especie '4'. Se observa en la gráfica que poco antes del instante 10^4 s la población de '4' se debe prácticamente a la desintegración de '2'.

En el cuarto escenario se visualiza mejor esta situación de no equilibrio, puesto que las dos especies hijas tienen constantes de desintegración muy parecidas e inferiores, a su vez, a las del padre.

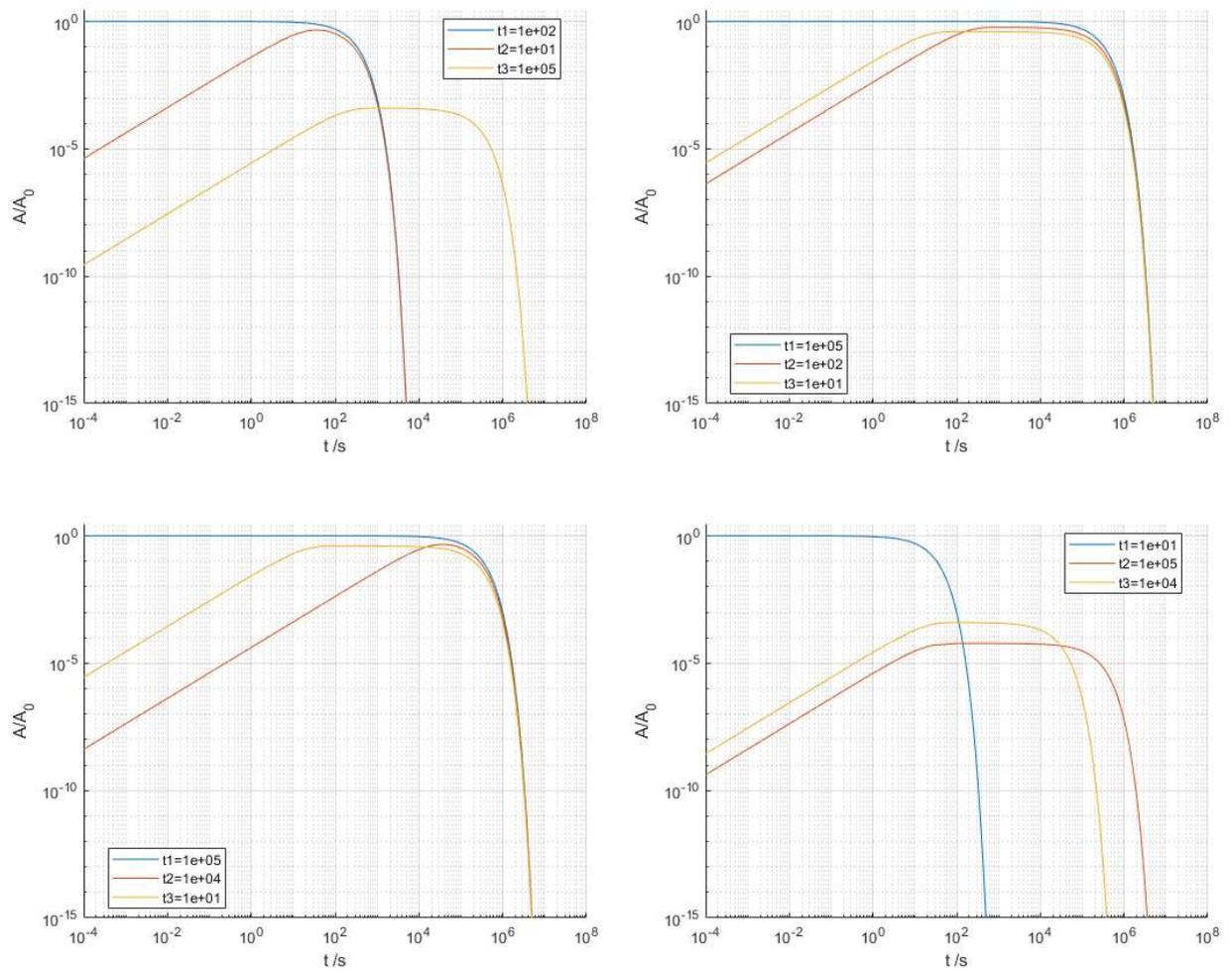


Figura 21. Actividades relativas a la actividad inicial del padre, de las cuatro especies en distintos escenarios representativos. La especie '4' no presenta actividad, al ser una especie estable y no desintegrarse.

En el segundo escenario de la figura 21, representando la actividad relativa, a la derecha, se puede ilustrar el fenómeno del *equilibrio secular*. Se da cuando la constante de desintegración del padre es mucho menor que la de los hijos. Esta situación se caracteriza porque la suma de actividades de los hijos se iguala a la actividad del padre.

5 APLICACIÓN AL COMBUSTIBLE GASTADO

Los fenómenos a escala nuclear están dominados por la mecánica cuántica, de forma que el carácter de todos estos es inherentemente probabilista. Como se describió en el apartado 3, de la misma forma que un núcleo de una especie concreta se desintegra en un par de fragmentos, este núcleo puede también capturar un neutrón y transmutar en un elemento. Y las posibilidades dentro de cada uno de los casos son muy diversas.

Por esta razón, la lista de especies que pueden encontrarse al analizar la composición del combustible nuclear gastado se vuelve inmensa. Muchos estudios realizados sobre la composición de dichos residuos parten de ciertas selecciones de núclidos, ya sea por facilidad de detección dada cierta tecnología o por algún interés, como pudiera ser para estudiar la radiación emitida al ambiente, la producción industrial de algún núclido concreto o regular la contención y el aislamiento de los residuos.

En este apartado, se introduce en primer lugar los procesos del ciclo de vida del combustible nuclear gastado para luego justificar la selección de las especies que se consideran para el estudio de la composición.

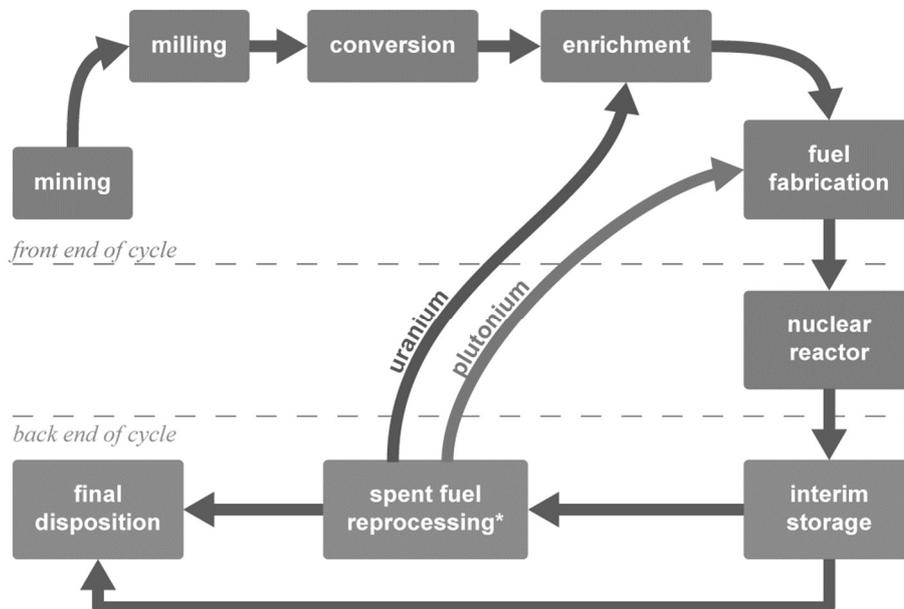


Figura 22. Ciclo simplificado del combustible nuclear. [27] La fase de reprocesamiento se omite en la mayoría de los países, debido principalmente a la controversia política por su potencial para contribuir a la proliferación nuclear. Por ello, solo se presentan las fases del almacenamiento temporal y permanente.

5.1 Almacenamiento temporal y permanente

El almacenamiento temporal supone, como dicho nombre indica, una solución temporal que desempeña un papel central en la gestión de los materiales más radiactivos: combustible de reactor gastado y, por ejemplo, en Francia, residuos vitrificados resultantes de la reprocesamiento de dicho combustible. Este almacenamiento durante varios años permite que la liberación de calor y la radiactividad disminuyan. Está formado por dos etapas en serie: el almacenamiento en piscinas de refrigeración y el almacenamiento en seco, que suele darse como primera etapa en instalaciones de la propia planta nuclear.

Las piscinas de refrigeración en las centrales nucleares, y las que se encuentran en instalaciones centralizadas como CLAB en Suecia, tienen una profundidad de 7-12 metros para blindar el combustible gastado (ensamblados en bastidores, generalmente de aproximadamente 4 metros de largo), permitiendo así ser inspeccionada por operarios. Los bastidores múltiples están hechos de metal con absorbedores de neutrones. El agua que circula protege y enfría el combustible. Estas piscinas son construcciones robustas hechas de hormigón armado grueso con revestimientos de acero. Estas piscinas a menudo están diseñadas para contener todo el combustible usado producido durante la vida útil planificada del reactor.



Figura 23. Suecia no reprocesa su combustible gastado. Desde 1985, dichos residuos se recogen y almacenan en piscinas en una cavidad excavada a 30 m bajo tierra. La capacidad de almacenamiento de estas piscinas alcanza las 11.000 toneladas. Los conjuntos de combustible son visibles bajo el agua. [28]

Parte del combustible que se ha enfriado en las piscinas durante al menos cinco años se almacena en barriles secos que permiten la circulación de aire dentro del blindaje, nueva etapa denominada almacenamiento en seco. Una agrupación común consiste en barriles de acero sellados, recipientes multiusos (MPC, *multi-purpose canisters*), cada uno con una capacidad aproximada de 40 elementos combustibles, con gas inerte. Los MPC también se pueden usar para el transporte y el almacenamiento final. Para dicho almacenamiento, cada uno está encerrado en un módulo de almacenamiento ventilado hecho de hormigón y acero. Por lo general, se colocan en la superficie, a unos 6 m de altura, y se enfrían por convección de aire, o pueden estar por debajo del nivel, mostrando solo la parte superior. Los módulos son robustos y proporcionan un blindaje completo. Cada barril tiene una carga térmica de hasta 45 kW.

Para la disposición final y asegurar que no ocurran emisiones ambientales significativas durante decenas de miles de años, se planifica la disposición geológica de 'barrera múltiple', construyéndose los almacenes geológicos profundos (AGP). Esta técnica inmovilizará los elementos radiactivos de larga vida, y los aislará de la biosfera.

5.2 Central nuclear de Gösgen

Para estudiar la evolución temporal de la composición y la actividad de los residuos de una central nuclear, se toman datos de partida de una planta real: la central nuclear de Gösgen, Suiza.



Figura 24. Central Nuclear de Gösgen. Presenta un único reactor LWR La matriz del núcleo del reactor contiene 177 elementos combustibles, 48 de los cuales están equipados con barras de control. Cada elemento combustible puede contener hasta 225 barras, pero solo 205 (204 para los MOX) están ocupadas por el combustible. Los 20 huecos restantes están reservados a las barras de control. El reactor en funcionamiento contiene un total de 76 tm de uranio. Funciona a 324° C y 153 bar. La potencia térmica de salida alcanza 3002 MW. La potencia eléctrica neta alcanza los 970MWe, que son suministrados a la red de 400kV. [29]

Los datos de la composición relativa del combustible nuclear gastado proceden de una serie de informes diseñados para documentar datos de ensayos radioquímicos como referente de calidad ante los cuales las predicciones mediante cálculos sobre la composición isotópica para el combustible nuclear gastado pueden validarse para analizar la precisión y el sesgo asociado a los métodos de cálculo. [30]

Concretamente, se consideran los datos experimentales analizados que se obtuvieron del programa internacional ARIANE (*Actinides Research In A Nuclear Element*), coordinado por Belgonucleaire. Como el nombre del programa indica, las mediciones incluyen datos extensos de actínidos y productos de fisión de importancia para las aplicaciones de seguridad del combustible gastado, incluidos la ratio burn-up, el calor por desintegración y las fuentes de radiación.

El escenario planteado parte de un enriquecimiento del combustible al 4.1% y una ratio burn-up de 52.5GWdía/MT.

5.3 Selección

Para la realización del trabajo se ha hecho una selección atendiendo a los principales radionúclidos considerados en la referencia [30], y a que tengan un período de semivida superior al de la estancia del combustible nuclear gastado en las piscinas de refrigeración, de forma que dicha composición tenga repercusión directa en el almacenamiento de estos residuos.

Aún con estas condiciones, el número de especies es muy elevado.

5.3.1 Actínidos

En primer lugar, se muestra en la tabla 5 la selección de los principales actínidos encontrados en el combustible nuclear. Se han escogido aquellos que tengan una proporción más significativa en el combustible nuclear

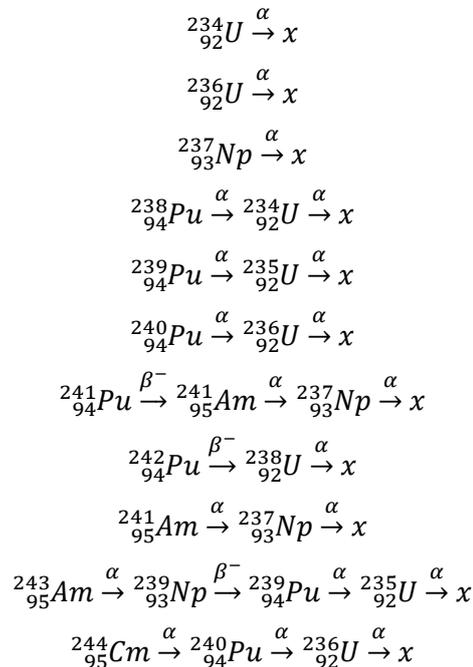
gastado. A su derecha, las series de desintegración de cada uno de los radionúclidos. Nótese que están acotadas, ya que las dimensiones de cada una de las familias son inmensas y los efectos apreciables escapan la escala temporal de consideración.

Tabla 6

Selección de principales actínidos

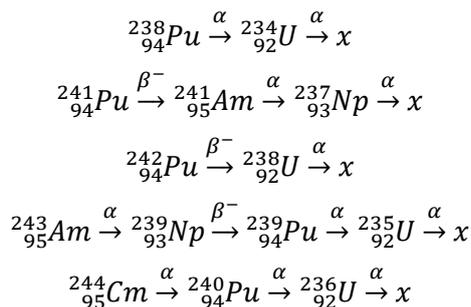
Isótopo	Tiempo de semivida (y)	Concentración másica ($\frac{kg}{kgU}$)
U-234	$2.47 \cdot 10^5$	$1.43 \cdot 10^{-4}$
U-236	$2.36 \cdot 10^7$	$4.83 \cdot 10^{-3}$
Np-237	$2.14 \cdot 10^6$	$8.11 \cdot 10^{-4}$
Pu-238	87.8	$3.72 \cdot 10^{-4}$
Pu-239	24400	$5.81 \cdot 10^{-3}$
Pu-240	6580	$2.84 \cdot 10^{-3}$
Pu-241	13.2	$1.82 \cdot 10^{-3}$
Pu-242	$3.79 \cdot 10^5$	$1.02 \cdot 10^{-3}$
Am-241	458	$2.28 \cdot 10^{-4}$
Am-243	7950	$2.38 \cdot 10^{-4}$
Cm-244	18.1	$1.41 \cdot 10^{-4}$

Nota: Datos experimentales de muestras de un elemento combustible al 4.1% en U-235, quemado a una ratio burn-up de 52.5GWdía/MT.



Lista de las series radiactivas de los actínidos en consideración

De la lista anterior, se pueden estudiar exclusivamente las cuatro series que se muestran a continuación, puesto que ya incluyen las otras. Además, estas series pueden estudiarse como sistemas independientes al no compartir especies, aunque con el método de exponenciación de matrices puede componerse la matriz total del sistema que contemple estas cuatro series.



Como se observa, el principal modo de desintegración de estas especies es principalmente la desintegración alfa, típicamente característica de núcleos con números másicos muy elevados.

La elección de estas series está respaldada tanto por la información sobre la composición inicial aportada por [30] como por el programa VISTA de la IAEA [31], donde en el apéndice tercero se muestran las series de desintegración consideradas para estudiar los cambios en la composición isotópica tanto durante la irradiación del combustible como tras la descarga de este.

5.3.2 Productos de fisión

Se recuerda que los fragmentos principales pueden tener un amplio espectro de masas nucleares, caracterizadas por el hecho de que el proceso de fisión no favorece una distribución de masa igual entre los dos fragmentos. La distribución de masa preferida de los productos es bimodal y se espera que el primer pico se encuentre entre aproximadamente los números de masa 90 y 100, y el segundo pico caerá entre aproximadamente los números de masa 130 y 140.

Puede observarse que las probabilidades de producción de las especies seleccionadas son superiores al 4%. Así por ejemplo el Cs-137 tienen una probabilidad del 6.3%. Cabe mencionar que, por ejemplo, si se tuviera que estudiar de donde procede un núcleo de Cs-137, se llegaría a que la mayoría proviene de la fisión directa de U-235 y una pequeña cantidad proviene de procesos indirectos, es decir, de la desintegración de radionúclidos precursores que se produjeron en el proceso de fisión. Por ejemplo, algunos núcleos son producidos por las desintegraciones beta sucesivas de productos que provienen de la producción inicial por fisión de la especie Te-137, que decae en I-137, este a su vez en Xe-137 y finalmente, a Cs-137.

El cesio se encuentra en torno al segundo pico. Es volátil a temperaturas elevadas y puede liberarse en situaciones de accidente. La especie Cs-137 puede permanecer en el medio durante muchos años después de escapar. Emite radiación beta negativa característica cuando se desintegra y es relativamente fácil de medir.

El Sr-90 también caen en las regiones de número de masa que son favorecidas en el proceso de fisión, y sus probabilidades son también relativamente altas. No se libera tan fácilmente de las fugas del combustible como el cesio, pero es un radionúclido de gran repercusión biológica ya que se comporta de forma similar al calcio, acumulándose en el tejido óseo cuando se ingiere. Esta es una preocupación particular si los niños, que beben una cantidad considerable de leche que es susceptible a la contaminación por Sr-90.

Aunque generalmente las especies más longevas y las que a menudo se consideran las más restrictivos en términos de cuánto tiempo deben almacenarse antes de que se consideren aceptables los niveles de radiactividad desde un punto de vista de exposición potencial, se encuentren las especies transuránicas, se destacan dos especies producto de la fisión con tiempos de semivida equiparables, el Tc-99 y otra especie del cesio, el Cs-135.

En el apéndice III se muestran los datos de partida de este proyecto. Se observa una lista muy detallada de actínidos y productos de fisión. Entre ellos, hay algunos como el Ru-101 y el Ag-109 que no se incluyen por ser estables. Por otro lado, se encuentran otros como el Sb-125 con una semivida de 2.76 años, período muy inferior al de la estancia del combustible gastado en las piscinas; además con una abundancia másica relativa de $7.5 \cdot 10^{-6}$. Estas razones son las que se han considerado para restringir la lista.

Tabla 7

Productos de fisión seleccionados

Isótopo	Probabilidad de producción	Tiempo de semivida (y)	Concentración másica ($\frac{kg}{kgU}$)	
Sr-90	4.505%	28.1	$7.75 \cdot 10^{-4}$	${}^{90}_{38}Sr \xrightarrow{\beta^-} {}^{90}_{39}Y \xrightarrow{\beta^-} {}^{90}_{40}Zr$
Tc-99	6.139%	$2.12 \cdot 10^5$	$1.12 \cdot 10^{-3}$	${}^{99}_{43}Tc \xrightarrow{\beta^-} {}^{99}_{44}Ru$
Cs-137	6.337%	30	$1.87 \cdot 10^{-3}$	${}^{137}_{55}Cs \xrightarrow{\beta^-} {}^{137}_{56}Ba$
Cs-135	6.911%	$2.3 \cdot 10^6$	$4.69 \cdot 10^{-4}$	${}^{135}_{55}Cs \xrightarrow{\beta^-} {}^{135}_{56}Ba$

Nota: Datos experimentales de muestras de un elemento combustible al 4.1% en U-235, quemado a una ratio burn-up de 52.5GWdía/MT.

Lista de las series radiactivas correspondientes

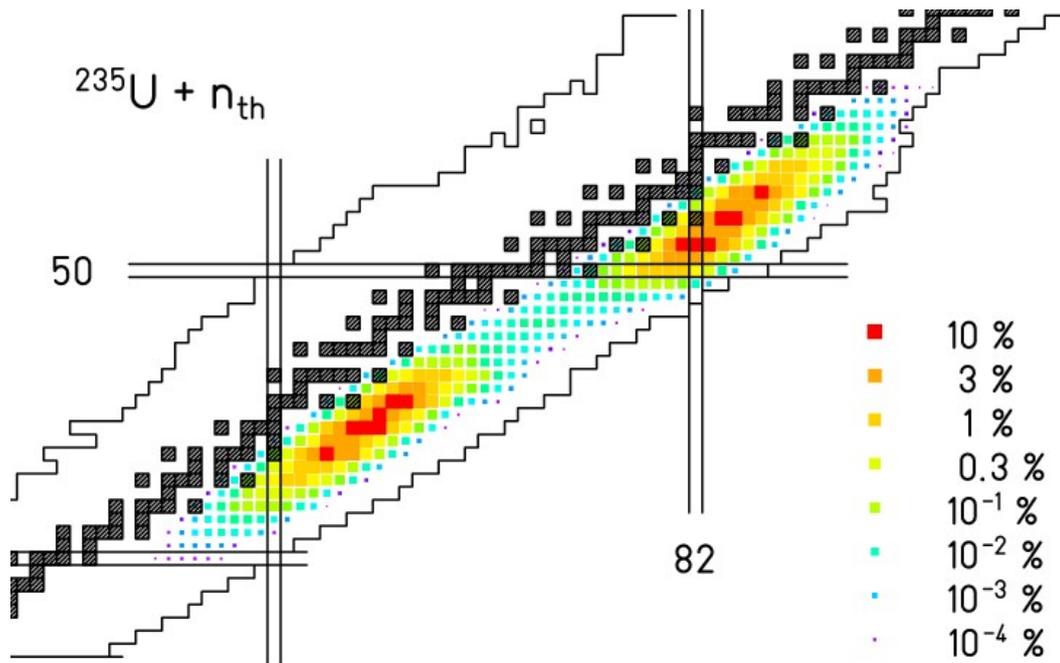


Figura 25. Carta de Segré con los productos de fisión del U-235 por neutrones térmicos. En el eje vertical, el número de neutrones. En el horizontal, el de protones. Nótese cómo los productos de fisión se encuentran por debajo de la línea de estabilidad. Debido a que son relativamente ricos en neutrones, muchos de ellos sufren rápidamente la desintegración beta. Esto libera energía adicional en forma de partículas beta, antineutrinos y rayos gamma. Por lo tanto, los eventos de fisión normalmente resultan en radiación beta y gamma, a pesar de que esta radiación no es producida directamente por el evento de fisión en sí. Las especies Sr-90 y Tc-99 se sitúan en los puntos rojos de la isla inferior izquierda; las especies Cs-137 y Cs-135, en la isla derecha.

5.4 Resultados

Para obtener la evolución temporal de las actividades del combustible nuclear gastado se ha decidido plantear el problema de desintegración radiactiva de dos muestras por separado: una de ellas correspondiente exclusivamente a los actínidos y la otra correspondiente a los productos de fisión. Como es evidente, esto puede realizarse ya que no hay series acopladas entre las dos muestras. Además, dentro de cada una de ellas, las series se han podido simplificar y se encuentran también desacopladas. Los productos de activación no se han contemplado, dada la poca repercusión que tienen respecto a los anteriormente mencionados.

De cualquier forma, el planteamiento mediante exponenciación de matriz no percibe este fenómeno. Construyendo las matrices A correspondientes a cada uno de los subproblemas se tiene que la solución de cada uno de ellos para la abundancia es:

$$N = e^{tA}N_0$$

con N_0 el vector $m \times 1$ de abundancias iniciales, siendo m el número de especies de la muestra; A la matriz del sistema $m \times m$ y e^{tA} la matriz exponenciada de orden $m \times m$.

La solución general del sistema es conocida, dado el vector $m \times 1$ de abundancias iniciales arbitrarias N_0 :

Lo que se va a representar es la actividad, que es lo relevante en cuanto a cuestiones de seguridad y almacenamiento. Recordando de puntos anteriores, la actividad se define como el producto de la abundancia de una especie por su constante de desintegración. Así, el vector de actividades es el siguiente:

$$A = \Lambda \circ (e^{tA}N_0)$$

siendo Λ el vector de constantes de desintegración $m \times 1$. 'o' denota el producto de Hadamard, es decir, el producto elemento a elemento de los dos vectores.

Para el subproblema de los actínidos se tiene una matriz 12×12 (12 especies radiactivas) y para el de los productos de fisión, 5×5 (5 especies radiactivas).

En las gráficas que se muestran a continuación, se marca una recta de referencia: la radiactividad natural del mineral de uranio, de aproximadamente 0.36MBq/kg.

La figura 23 recoge las actividades de los actínidos en MBq por kilogramo de combustible. La especie con mayor actividad a corto plazo es el Pu-241 y cabe mencionar que, junto al Np-239, son los principales emisores de radiación beta negativa en los actínidos. El resto de las especies, como se comentó, desintegran emitiendo partículas alfa. Se observa cómo en la muestra de actínidos disminuye la actividad al nivel natural del mineral de uranio a los $2 \cdot 10^8$ años. Debido a la constante de desintegración del Pu-241 y Pu-242 y al nivel máximo que alcanza la actividad del Np-239, puede considerarse que, a partir de los 200 años desde la descarga del combustible, la actividad total es debida a la desintegración alfa.

En la figura 24 se muestran las actividades de los productos de fisión en MBq por kilogramo de combustible. Todas estas especies decaen mediante desintegración beta negativa. Aunque la naturaleza de la desintegración sea distinta a la del uranio natural, que emite partículas alfas, se ha dibujado también la recta de referencia. Así, se puede ver que la actividad por parte de los productos de fisión alcanza los niveles naturales para aproximadamente el mismo período que en los actínidos: $2 \cdot 10^8$ años.

La figura 25 recoge las actividades acumuladas de las especies transuránicas formadas en el combustible, las actividades de distintas especies del uranio y la de los productos de fisión mencionados.

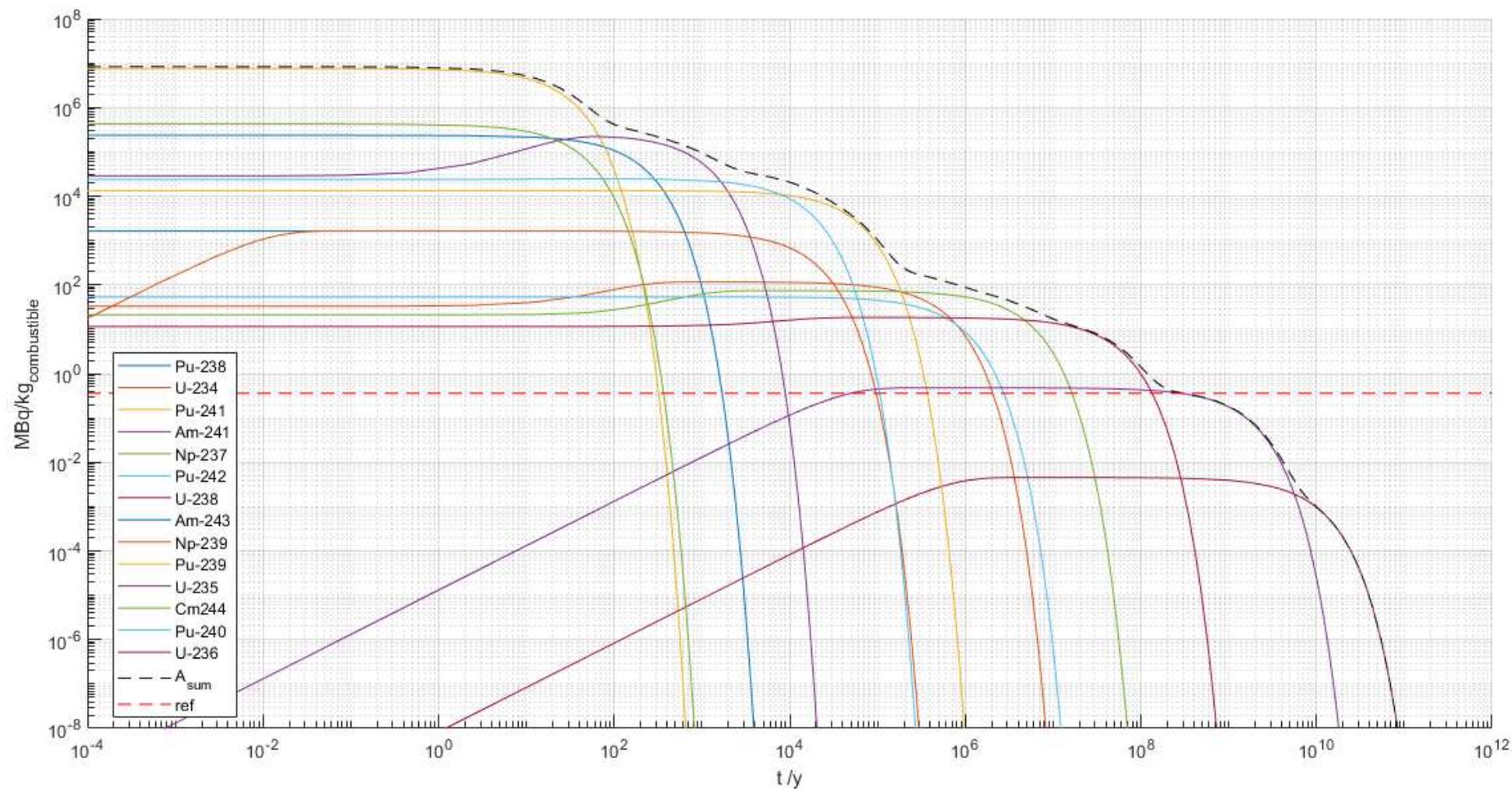


Figura 26. Evolución temporal de las actividades de los actínidos seleccionados y sus sucesores en el combustible nuclear gastado. La recta horizontal roja es la radiactividad natural de un kilogramo del mineral de uranio natural.

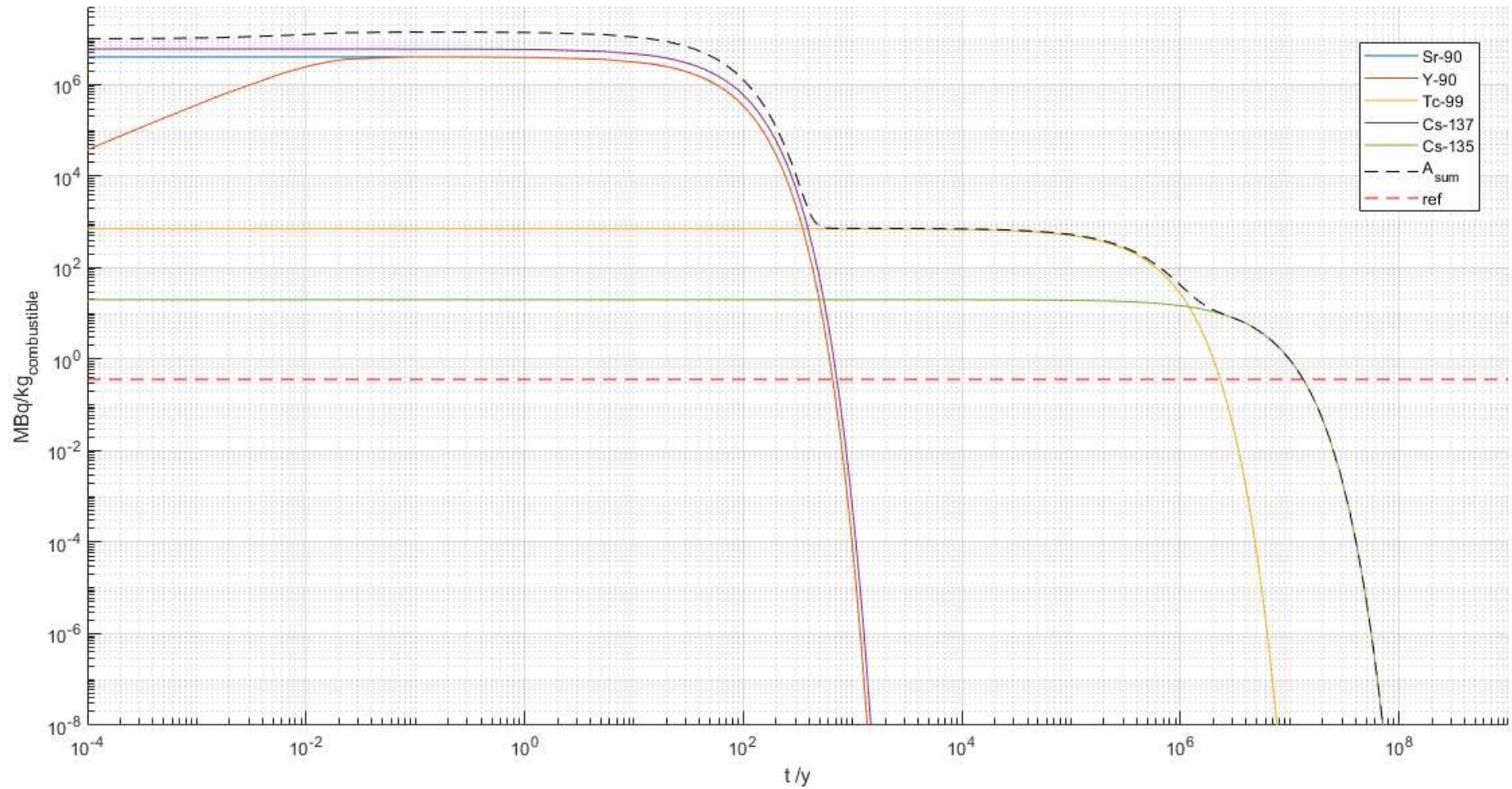


Figura 27. Evolución temporal de las actividades de los productos de fisión seleccionados.

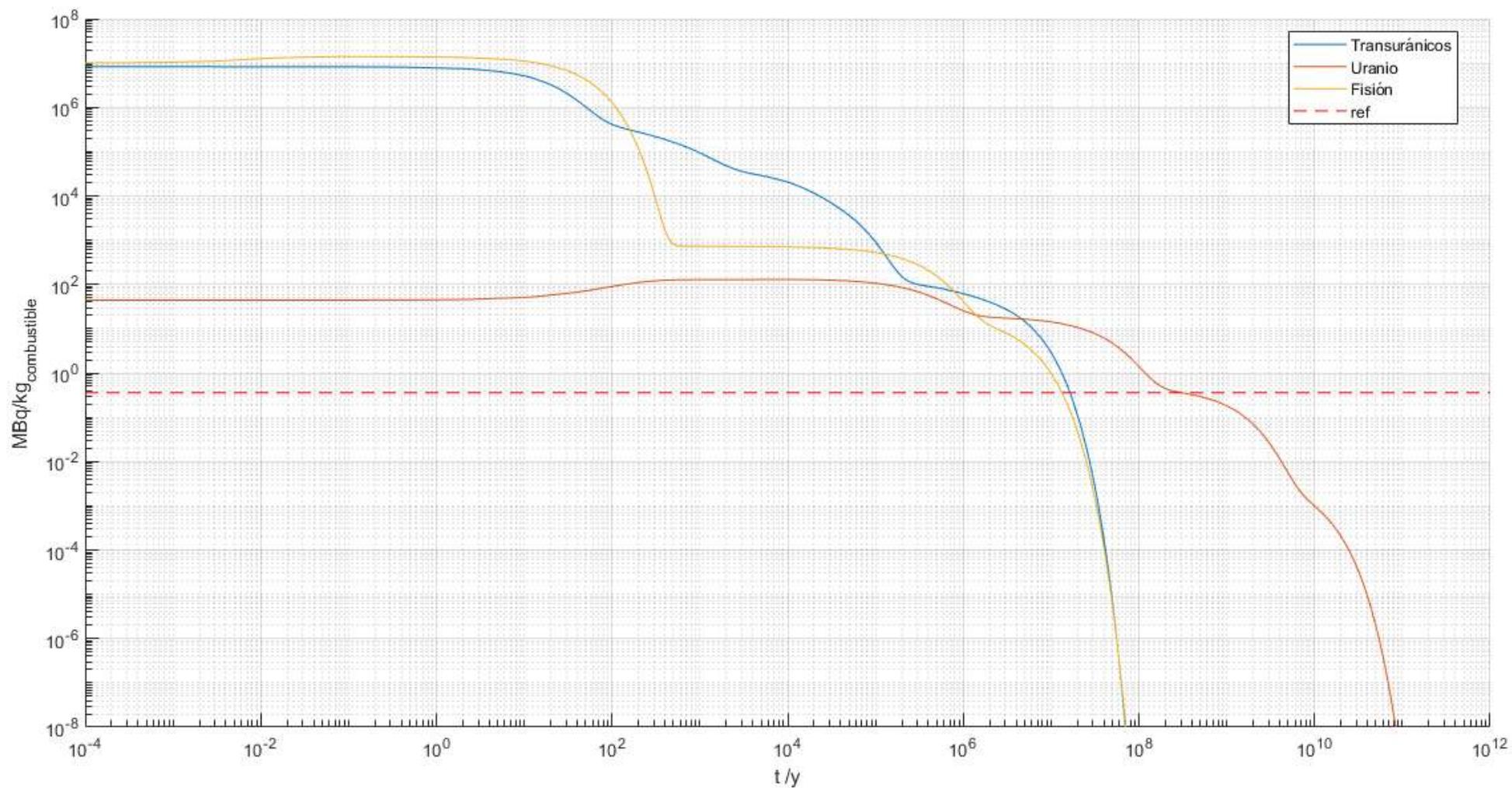


Figura 28. Actividades acumuladas de los productos transuránicos, las especies del uranio y los productos de fisión, frente al nivel de actividad referencia de un kilogramo de mineral de uranio.

6 IMPLICACIONES

La radiactividad de 1kg de mineral utilizado para producir el combustible nuclear se comparó con la actividad total de 1kg de dicho combustible gastado. Se observó que el número de años que deben pasar para que la actividad de los residuos igualase a la natural es de $2 \cdot 10^8$ años.

Esta actividad está dominada prácticamente por los actínidos, a partir de aproximadamente cuatrocientos años en adelante.

El combustible nuclear gastado forma parte de los residuos de alta actividad y son especialmente peligrosos porque producen dosis fatales de radiación durante cortos períodos de exposición directa. Por ejemplo, a los 10 años de la extracción de los elementos combustibles del reactor, la tasa de dosis superficial para un conjunto típico excede los 100 Sv/ hora, varios órdenes de magnitud superior a la dosis fatal para el cuerpo humano, de aproximadamente 5Sv recibida en una sola dosis. Como dato, la dosis media en España debida a la radiación gama ambiental, dependiente de los elementos radiactivos de los suelos y rocas, es e 1mSv/año.

Como nota aclaratoria, el *sievert* (Sv) es la unidad de dosis equivalente, es decir, la dosis absorbida (medida en *gray* Gy) por un tejido ponderada según el tipo de radiación. En el SI se mide en J/kg. Para el caso de la radiación alfa, el factor de ponderación es el más elevado.

Hasta aproximadamente los cuatrocientos años desde la retirada del combustible nuclear gastado, la radiación dominante procede es la radiación beta, procedente tanto de los productos de fisión como de la actividad del Pu-241.

Durante estos años, el almacenamiento de los residuos, tras la extracción de la piscina del combustible, se realiza en seco, en los conocidos almacenes temporales individuales (ATI), destinados a almacenar los residuos de una misma central, generalmente en el mismo emplazamiento; o almacenes temporales centralizados (ATC), que albergan los residuos de todas o varias de las centrales nucleares de un país. A pesar de que durante estos años se dé la mayor actividad de los residuos, generalmente se sitúan en la superficie, perfectamente acondicionados para que no se produzcan fugas y se refrigeren por convección natural a la espera de ser gestionados y destinados a un almacenamiento permanente, los almacenamientos geológicos profundos (AGP).

Se almacenan principalmente en recipientes de acero blindado con recubrimiento de hormigón, que para la poca penetración de la radiación alfa y la importante atenuación de la radiación gamma que es ofrece, proporcionan un almacenamiento seguro.



Figura 29. ATI en la central nuclear de Ascó. Por cortesía de IDOM.

En la figura 25 se muestra cómo el modo de desintegración predominante para el largo plazo es el alfa, experimentado por los actínidos (transuránicos y especies del uranio junto a la actividad de sus series). Y los niveles de radiación no llegan a disminuir considerablemente hasta aproximadamente 10^6 años.

Por ello debe asegurarse un aislamiento absoluto de estos residuos desde el momento de la descarga hasta el AGP, puesto que, si las especies de estos residuos se introdujeran en aguas subterráneas o ríos, podrían llegar a formar parte de toda la red trófica, y aunque la dosis producida a través de esta exposición indirecta sería mucho menor que una dosis de exposición directa, precisamente por producirse la irradiación interna se vuelve muy peligrosa y de acción muy prolongada.

En la figura 25 se muestra cómo el modo de desintegración predominante para el largo plazo es el alfa, experimentado por los actínidos (transuránicos y especies del uranio junto a la actividad de sus series). Y los niveles de radiación no llegan a disminuir considerablemente hasta aproximadamente 10^6 años.

Por ello debe asegurarse un aislamiento absoluto de estos residuos desde el momento de la descarga hasta el AGP, puesto que, si las especies de estos residuos se introdujeran en aguas subterráneas o ríos, podrían llegar a formar parte de toda la red trófica, y aunque la dosis producida a través de esta exposición indirecta sería mucho menor que una dosis de exposición directa, precisamente por producirse la irradiación interna se vuelve muy peligrosa y de acción muy prolongada.

Las implicaciones se intuyen precisamente en el punto 5.1.

Para poder hacer inaccesibles estos productos para las personas y el medio ambiente durante tanto tiempo, el sistema de almacenamiento debe estar formado por las siguientes barreras:

- El combustible se inserta en recipientes resistentes a la corrosión con un refuerzo de acero que proporciona resistencia mecánica.
- Dichos recipientes se rodean, a su vez, de una capa de arcilla de bentonita que protege mecánicamente el recipiente ante la actividad sísmica y evita además que las sustancias corrosivas entren en el recipiente. Esta arcilla también absorbe eficazmente cualquier sustancia radioactiva que se libera si resultara dañado el recipiente
- El conjunto anterior se instala a una profundidad de 500 m en la roca de fondo, donde se aseguran unas condiciones estables tanto mecánicas como químicas a largo plazo.

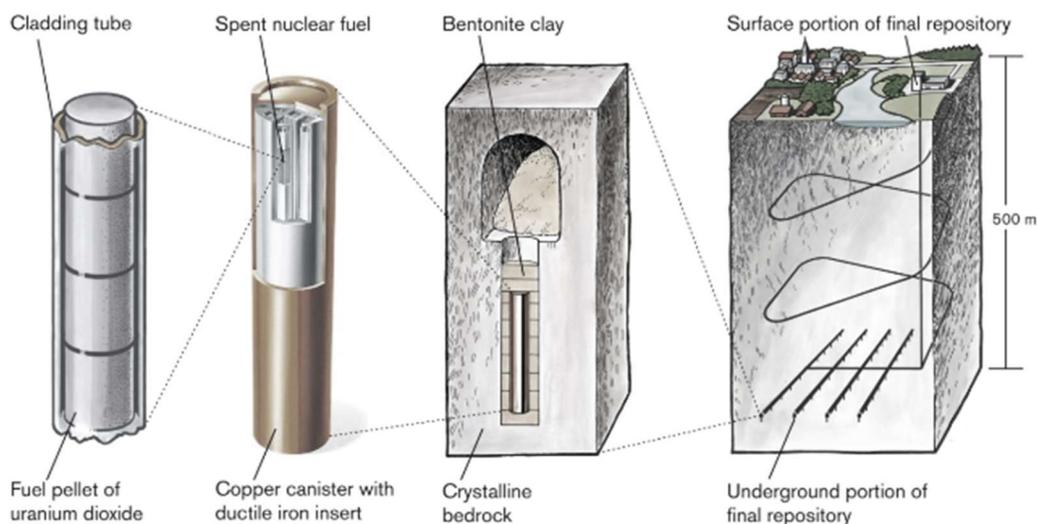


Figura 30. Esquema sobre el método de almacenamiento del combustible nuclear gastado KBS-3. Imagen por cortesía de la empresa SKB (Suecia), que tiene proyectado construir un centro AGP para cubrir toda la producción de residuos sueca, bajo estas premisas.

En la tabla 8 se observa que los radionúclidos poseen baja solubilidad en agua, lo que limita en gran medida el transporte de estos desde su depósito a la superficie.

Tabla 8

Solubilidad de selección representativa de núclidos

Isótopo	Tiempo de semivida (y)	Solubilidad en agua (g/l)	Volumen para disolver 1Sv (l)
Sr-90	28.1	100	$7 \cdot 10^{-8}$
Cs-137	30	100	10^{-7}
Am-241	458	$2 \cdot 10^{-6}$	5
Pu-239	24400	$2 \cdot 10^{-6}$	370
Pu-241	13.2	$2 \cdot 10^{-6}$	11

Nota: Volumen de la disolución saturada para el que, ingerido, se produce la dosis de 1Sv.

Así, juntando tanto estas propiedades como las barreras, se constituye un sistema potente que aísla estos residuos. Dicho sistema es redundante y diversificado, por lo que el aislamiento es lo suficientemente seguro, incluso si una de las barreras resulta defectuosa. Este es el concepto de barrera múltiple, mencionado en el punto 5.1.

El AGP está diseñado para aislar el combustible gastado durante tanto tiempo que su radiactividad disminuirá a niveles inferiores al de la cantidad de mineral que se extrajo para producir el combustible.

7 CONCLUSIÓN

En el presente trabajo se ha tratado de ilustrar el modelo de la dinámica de poblaciones radiactivas en el combustible nuclear gastado de una central PWR, partiendo de unas mediciones tomadas en una planta real. Con los resultados, se ha justificado la importancia del almacenamiento a corto plazo, como sucede en las piscinas de refrigeración, y a largo plazo, en emplazamientos geológicos.

Para ello, se ha ofrecido una revisión bibliográfica en la que se expone, por un lado, los procesos que suceden dentro del reactor, la composición del combustible y los productos de la irradiación de este, sean productos de fisión, transmutación a especies más pesadas o activación de elementos; y por otro los fundamentos de la desintegración radiactiva, para dar pie al problema matemático formalizado por H. Bateman.

Descrito el problema, se describieron distintos enfoques para la resolución del sistema de EDOs. Se presentó en primer lugar, el proporcionado por Bateman, mediante aplicación de la transformada de Laplace. En segundo lugar, se contempló la posibilidad de resolver el sistema de forma numérica, aunque por la complejidad del problema abordado no se hizo necesario. En tercer lugar, un enfoque empleando la potente herramienta de la exponenciación de matrices. Se decidió abordar la solución mediante este último, ofreciendo por un lado un cálculo manual mediante un enfoque algebraico para calcular la matriz exponenciada; y por otro, mediante la función *expm()* que trae MATLAB implementada, siendo esta la opción escogida por ser computacionalmente la más eficiente de las planteadas.

Presentado el modelo y su solución, se realizó la aplicación solo sobre cierta selección de radionúclidos, dado que la cantidad de especies en el combustible nuclear irradiado es muy elevada. Se escogieron con un período de semivida superior al de la estancia de los residuos en las piscinas del combustible, además de con una composición másica relativa significativa. De las especies procedentes de la fisión, se tuvo en cuenta además aquellos con mayor probabilidad de producción. Por otro lado, no se consideraron los productos de activación, por no poseer un aporte significativo a la actividad de estos residuos.

Se obtuvieron gráficas separadas para la actividad de los actínidos y los productos de fisión; además se compararon las actividades acumuladas de los transuránicos, especies del uranio y productos de fisión.

Mediante dichas gráficas, en escala logarítmica tanto para el tiempo (para visualizar períodos de tiempos muy largos) como para las actividades (debido a la elevada disparidad en órdenes de magnitud entre las distintas actividades), se observó la importancia de mantener aislado el combustible nuclear gastado durante períodos de más de 100.000 años, para proteger tanto al ser humano como al medio ambiente.

Para el estudio de las actividades, no se consideraron todos los tipos de desintegración, como podría ser mediante emisión de otro tipo de partículas o rayos gama. No se hizo, además, distinción entre las actividades, además que las series radiactivas estudiadas fueron seriamente sesgadas para reducir la magnitud del problema de este trabajo, además que no hubiera sido significativo para observar la repercusión en el almacenamiento tanto a corto como a largo plazo.

Un posible futuro desarrollo implicaría hacer un análisis que desglose los tipos de actividades por la naturaleza de la desintegración y las energías implicadas a cada uno de dichos procesos; además de considerar posibles interacciones entre los distintos núcleos produciéndose, por ejemplo, la transmutación de estos o la interacción de los electrones procedentes de la radiación beta con otros elementos.

REFERENCIAS

- [1] Convención Marco de Naciones Unidas sobre Cambio Climático, «¿Qué es el Acuerdo de París?» [En línea]. Available: <https://unfccc.int/es/process-and-meetings/the-paris-agreement/que-es-el-acuerdo-de-paris>. [Último acceso: 3 7 2020].
- [2] International Atomic Energy Agency (IAEA), «Nuclear power and climate change» [En línea]. Available: <https://www.iaea.org/topics/nuclear-power-and-climate-change>. [Último acceso: 2020 3 20].
- [3] IAEA, «Database on Nuclear Power Reactors» [En línea]. Available: <https://pris.iaea.org/PRIS/home.aspx>. [Último acceso: 7 3 2020].
- [4] USNRC Technical Training Center, «Biological Effects of Radiation» de *Reactor Concepts Manual*.
- [5] Greenpeace, «Nuclear Energy issues» [En línea]. Available: <https://www.greenpeace.org/usa/global-warming/issues/nuclear/>. [Último acceso: 19 4 2020].
- [6] Centre National de la recherche scientifique, «Classification of Wastes» [En línea]. Available: https://www.radioactivity.eu.com/site/pages/Waste_Classification.htm. [Último acceso: 21 04 2020].
- [7] Canadian Nuclear Safety Commission, «Low- and intermediate-level radioactive waste» [En línea]. Available: <https://nuclearsafety.gc.ca/eng/waste/low-and-intermediate-waste/index.cfm>. [Último acceso: 21 04 2020].
- [8] IAEA, «Clasificación de desechos radiactivos. Guía de seguridad N°GSG-1», Viena: Organismo Internacional de Energía Atómica, 2015.
- [9] Y. Oka, «Light Water Reactor Design» de *Nuclear Reactor Design*, Tokyo, Japan, Springer, 2014, p. 179.
- [10] «Doppler Broadening - Doppler Effect» [En línea]. Available: <https://www.nuclear-power.net/glossary/doppler-broadening/>. [Último acceso: 24 04 2020].
- [11] World Nuclear Association, «Uranium Enrichment» [En línea]. Available: <https://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/conversion-enrichment-and-fabrication/uranium-enrichment.aspx>. [Último acceso: 18 05 2020].
- [12] Orano, «(Almost) all about uranium at Orano» [En línea]. Available: <https://orano.group/en/unpacking-nuclear/all-about-uranium-at-orano>. [Último acceso: 18 05 2020].
- [13] Japan Atomic Energy Agency, «Graph of fission products yields, U-235» [En línea]. Available: <https://www.ndc.jaea.go.jp/cgi-bin/FPYfig?yld=i&zlog=set&iso=nU235&xpar=a&eng=e1&eng=e2&eng=e3>. [Último acceso: 30 04 2020].
- [14] Japan Atomic Energy Agency, «Graph of fission products yields, Pu-239» [En línea]. Available: <https://www.ndc.jaea.go.jp/cgi-bin/FPYfig?yld=i&zlog=set&iso=nPu239&xpar=a&eng=e1&eng=e2&eng=e3>. [Último acceso: 30 04 2020].

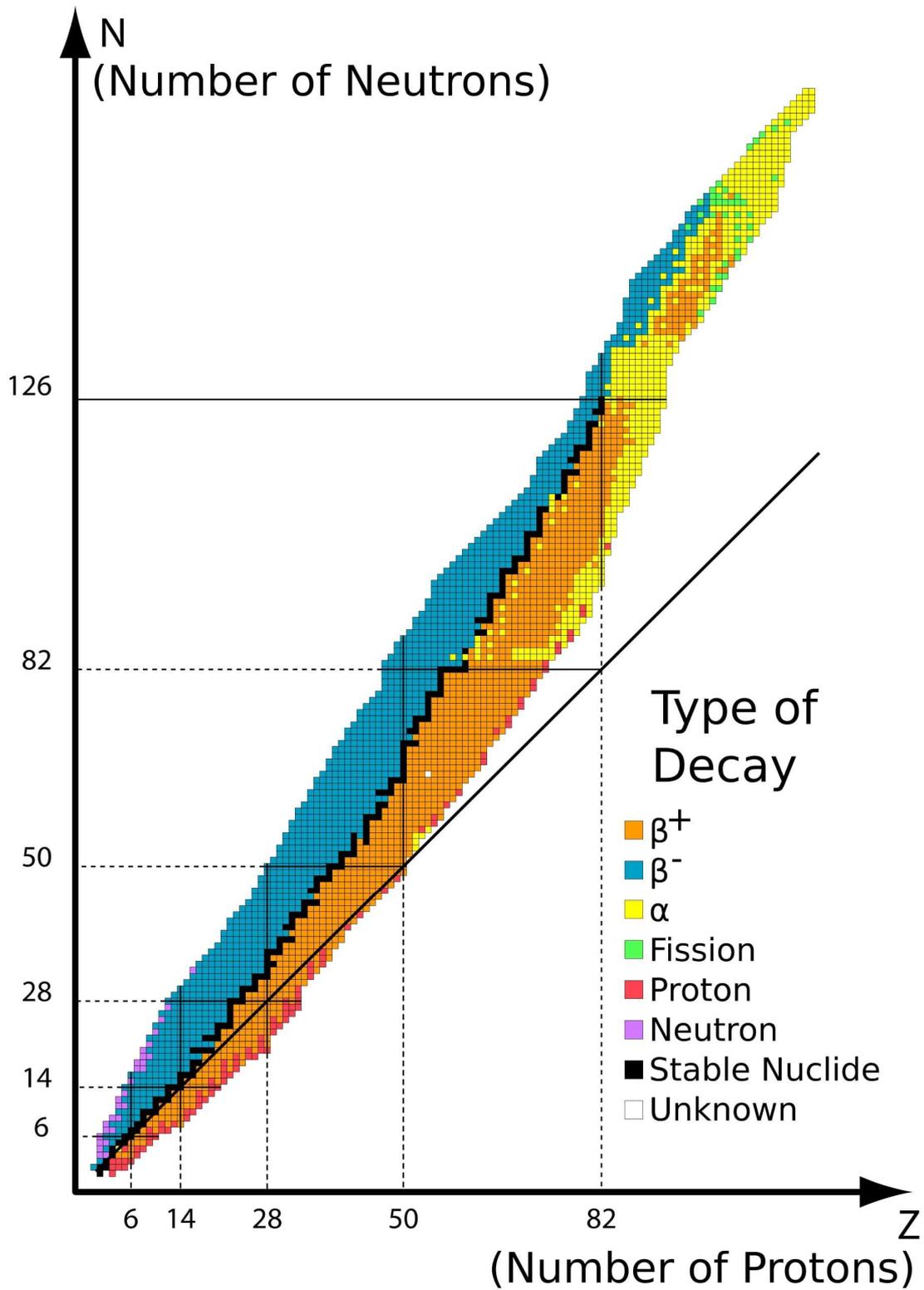
- [15] Center for Nuclear Waste Regulatory Analyses, «Characteristics of Spent Nuclear Fuel and Cladding relevant to High-Level Waste source term», San Antonio, Texas: Nuclear Regulatory Commission Contract, 1993.
- [16] R. C. Ewing, «Nuclear waste forms for actinides», *Proceedings of the National Academy of Sciences*, n° 3432, p. 96, 1999.
- [17] National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, «NuDat 2.8 - Interactive Chart of Nuclides» [En línea]. Available: <https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>. [Último acceso: 07 05 2020].
- [18] B. S. R. O. G. Jia, «Determination of uranium isotopes in environmental samples by alpha-spectrometry» *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 253, n° 3, pp. 395-406, 2002.
- [19] Wikiwand, «Beta decay,» [En línea]. Available: https://www.wikiwand.com/en/Beta_decay. [Último acceso: 07 05 2020].
- [20] C. Willis, «A little bit of Fission, Special Nuclear Material» [En línea]. Available: <https://carllwillis.wordpress.com/tag/uranium/>. [Último acceso: 07 05 2020].
- [21] E. Rutherford, «Radio-activity», Cambridge University Press, 1905.
- [22] H. Bateman, «Solutions of a system of differential equations occurring in the theory of Radioactive transformations» *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society, Mathematical and Physical Sciences*, n° 15, pp. 423-427, 1910.
- [23] C. & L. C. Moler, «Nineteen Dubious Ways to Compute the Exponential of a Matrix, Twenty-Five Years later,» *Society for Industrial and Applied Mathematics*, n° 45, pp. 3-49, 2003.
- [24] L. & P. A. Moral, «Algebraic approach to the radioactive decay equations,» *American Journal of Physics*, n° 71, 2003.
- [25] M. Drury, «How Does A Computer Calculate Eigenvalues?,» [En línea]. Available: <http://madrury.github.io/jekyll/update/statistics/2017/10/04/qr-algorithm.html>. [Último acceso: 1 7 2020].
- [26] A. H. A.-M. a. N. J. Higham, «A New Scaling and Squaring Algorithm for the Matrix Exponential,» *SIAM Journal on Matrix Analysis and Applications*, vol. 31, n° 3, pp. 970-989, 2010.
- [27] US Energy Information Administration, «Nuclear Fuel Cycle,» [En línea]. Available: <https://www.eia.gov/energyexplained/>. [Último acceso: 27 06 2020].
- [28] Svensk Kärnbränslehantering, «The Interim Storage Clab - SKB,» [En línea]. Available: <https://www.skb.com/our-operations/clab/>. [Último acceso: 27 06 2020].
- [29] Wikipedia, «Gösgen Nuclear Power Plant,» [En línea]. Available: https://en.wikipedia.org/wiki/G%C3%B6sgen_Nuclear_Power_Plant. [Último acceso: 3 07 2020].
- [30] USNRC - Office of Nuclear Regulatory Research, «Analysis of Experimental Data for High Burnup PWR Spent Fuel Isotopic Validation (UO2 Fuel) », 2010.
- [31] IAEA, Nuclear Fuel Cycle Simulation System (VISTA), Viena: IAEA, 2007.

APÉNDICE I

	1																	18	
1	H ¹ 1.00795 u Hidrógeno																		He ² 4.00260 u Helio
2	Li ³ 6.941(2) u Litio	Be ⁴ 9.01218 u Berilio																	
3	Na ¹¹ 22.9898 u Sodio	Mg ¹² 24.3051 u Magnesio																	
4	K ¹⁹ 39.0983 u Potasio	Ca ²⁰ 40.078(4) u Calcio	Sc ²¹ 44.9559 u Escandio	Ti ²² 47.867(1) u Titanio	V ²³ 50.9415 u Vanadio	Cr ²⁴ 51.9962 u Cromo	Mn ²⁵ 54.93804 u Manganeso	Fe ²⁶ 55.845(2) u Hierro	Co ²⁷ 58.9332 u Cobalto	Ni ²⁸ 58.6934 u Níquel	Cu ²⁹ 63.546(3) u Cobre	Zn ³⁰ 65.39(2) u Zinc	Ga ³¹ 69.723(1) u Galio	Ge ³² 72.64(1) u Germanio	As ³³ 74.9216 u Arsénico	Se ³⁴ 78.96(3) u Selenio	Br ³⁵ 79.904(1) u Bromo	Kr ³⁶ 83.798(2) u Kriptón	
5	Rb ³⁷ 85.4678 u Rubidio	Sr ³⁸ 87.62(1) u Estroncio	Y ³⁹ 88.9058(5) u Itrio	Zr ⁴⁰ 91.224(2) u Zirconio	Nb ⁴¹ 92.9063 u Niobio	Mo ⁴² 95.96(2) u Molibdeno	Tc ⁴³ [98.0] u Tecnecio	Ru ⁴⁴ 101.07(2) u Rutenio	Rh ⁴⁵ 102.9655 u Rodio	Pd ⁴⁶ 106.42(1) u Paladio	Ag ⁴⁷ 107.8682 u Plata	Cd ⁴⁸ 112.411(8) u Cadmio	In ⁴⁹ 114.818(3) u Indio	Sn ⁵⁰ 118.710(7) u Estaño	Sb ⁵¹ 121.760(1) u Antimonio	Te ⁵² 127.60(3) u Telurio	I ⁵³ 126.9045 u Yodo	Xe ⁵⁴ 131.293(6) u Xenón	
6	Cs ⁵⁵ 132.90545 u Cesio	Ba ⁵⁶ 137.327(7) u Bario		Hf ⁷² 178.49(2) u Hafnio	Ta ⁷³ 180.9479 u Talio	W ⁷⁴ 183.84(1) u Voframio	Re ⁷⁵ 186.207(1) u Renio	Os ⁷⁶ 190.23(3) u Osmio	Ir ⁷⁷ 192.217(3) u Iridio	Pt ⁷⁸ 195.084(9) u Platino	Au ⁷⁹ 196.96657 u Oro	Hg ⁸⁰ 200.59(2) u Mercurio	Tl ⁸¹ 204.3833 u Talio	Pb ⁸² 207.2(1) u Plomo	Bi ⁸³ 208.9804 u Bismuto	Po ⁸⁴ [209.0] u Polonio	At ⁸⁵ [210.0] u Astatio	Rn ⁸⁶ [222.0] u Radón	
7	Fr ⁸⁷ [223.0] u Francio	Ra ⁸⁸ [226.0] u Radio		Rf ¹⁰⁴ [261] u Rutherfordio	Db ¹⁰⁵ [262] u Dubnio	Sg ¹⁰⁶ [266] u Seaborgio	Bh ¹⁰⁷ [264] u Bohrio	Hs ¹⁰⁸ [267] u Hassio	Mt ¹⁰⁹ [268] u Meitnerio	Ds ¹¹⁰ [271] u Darmstadtio	Rg ¹¹¹ [272] u Roentgenio	Cn ¹¹² [285] u Copernicio	Nh ¹¹³ [284] u Nihonio	Fl ¹¹⁴ [289] u Flerovio	Mc ¹¹⁵ [288] u Moscovio	Lv ¹¹⁶ [292] u Livermorio	Ts ¹¹⁷ [295] u Tennesino	Og ¹¹⁸ [294] u Oganesso	

Tabla periódica con los productos de fisión coloreados. Abarcan una amplia variedad de elementos, desde metales alcalinos y de transición hasta halógenos e incluso gases nobles. La escala de azules está relacionada con el logaritmo de la probabilidad de producción por fisión, de un núcleo de U-235 o Pu-241.

La ⁵⁷ 138.9055 u Lántano	Ce ⁵⁸ 140.116(1) u Cerio	Pr ⁵⁹ 140.90765 u Praseodimio	Nd ⁶⁰ 144.242(3) u Neodimio	Pm ⁶¹ [145.0] u Prometio	Sm ⁶² 150.36(2) u Samario	Eu ⁶³ 151.964(1) u Europio	Gd ⁶⁴ 157.25(3) u Gadolinio	Tb ⁶⁵ 158.92535 u Terbio	Dy ⁶⁶ 162.500(1) u Disprobio	Ho ⁶⁷ 164.9303 u Holmio	Er ⁶⁸ 167.259(3) u Erbio	Tm ⁶⁹ 168.9342 u Tulio	Yb ⁷⁰ 173.054(5) u Iterbio	Lu ⁷¹ 174.9668 u Lutecio
Ac ⁸⁹ [227.0] u Actinio	Th ⁹⁰ [232.03806] u Torio	Pa ⁹¹ [231.0359] u Protactinio	U ⁹² [238.02891] u Uranio	Np ⁹³ [237] u Neptunio	Pu ⁹⁴ [244] u Plutonio	Am ⁹⁵ [243] u Americio	Cm ⁹⁶ [247] u Curio	Bk ⁹⁷ [247] u Berkelio	Cf ⁹⁸ [251] u Californio	Es ⁹⁹ [252] u Einstenio	Fm ¹⁰⁰ [257] u Fermio	Md ¹⁰¹ [258] u Mendelevio	No ¹⁰² [259] u Nobelio	Lr ¹⁰³ [262] u Laurencio



Carta de Segré donde se distinguen los modos de desintegración.

Table 3.3 Experimental results (g/g $U_{initial}$) for Gösgen (ARIANE) samples

Sample ID	GU1		GU3		GU4	
Burnup ^a	59.7		52.5		29.1	
Enrichment (wt% ²³⁵ U)	3.5		4.1		4.1	
Measuring lab	SCK/CEN		SCK/CEN & ITU		ITU	
Nuclide ID	g/g $U_{initial}$	RSD ^b (%)	g/g $U_{initial}$	RSD (%)	g/g $U_{initial}$	RSD (%)
U-234	1.20E-04	2.51	1.43E-04	0.01	1.95E-04	0.01
U-235	2.11E-03	1.03	6.05E-03	0.32	1.45E-02	0.45
U-236	4.83E-03	0.34	5.65E-03	0.31	4.59E-03	0.45
U-238	9.20E-01	0.23	9.27E-01	0.01	9.44E-01	0.01
Pu-238	4.54E-04	1.53	3.72E-04	0.28	1.11E-04	1.08
Pu-239	4.89E-03	0.29	5.81E-03	0.19	5.16E-03	0.24
Pu-240	3.18E-03	0.29	2.84E-03	0.15	1.84E-03	0.26
Pu-241	1.44E-03	0.29	1.82E-03	0.28	9.87E-04	1.70
Pu-242	1.55E-03	0.29	1.02E-03	0.02	3.10E-04	0.28
Np-237			8.11E-04	3.00	5.25E-04	2.41
Am-241	2.48E-04	1.78	2.28E-04	0.79	1.47E-04	5.94
Am-242m	6.85E-07	5.30	9.30E-07	5.29		
Am-243	4.03E-04	1.78	2.38E-04	1.74	4.38E-05	6.65
Cm-242	3.09E-07	3.61	2.76E-05	2.02		
Cm-243	3.38E-07	36.75	6.24E-07	9.61		
Cm-244	2.44E-04	1.51	1.41E-04	1.57	1.24E-05	1.57
Cm-245	1.75E-05	2.95	1.10E-05	1.43	5.74E-07	10.15
Cm-246	5.29E-06	10.12	1.44E-06	5.26		
Cs-133	1.72E-03	2.46	1.63E-03	0.94	1.08E-03	1.64
Cs-134	1.08E-04	2.47	2.51E-04	1.44	4.14E-05	1.27
Cs-135	5.16E-04	2.46	4.69E-04	1.12	3.73E-04	1.21
Cs-137	2.03E-03	2.45	1.87E-03	0.52	9.95E-04	1.50
Ce-144	3.37E-05	3.92	4.41E-04	1.01	3.63E-05	2.75
Nd-142	6.77E-05	5.01	4.23E-05	5.01	1.20E-05	5.09
Nd-143	9.33E-04	0.29	1.07E-03	0.28	8.62E-04	6.16
Nd-144	2.63E-03	0.29	2.14E-03	0.28	1.23E-03	5.95
Nd-145	1.04E-03	0.29	9.89E-04	0.28	6.76E-04	6.89
Nd-146	1.33E-03	0.29	1.15E-03	0.28	6.50E-04	7.37
Nd-148	6.66E-04	0.30	5.87E-04	0.29	3.47E-04	6.70
Nd-150	3.39E-04	0.30	2.86E-04	0.29	1.58E-04	6.78
Pm-147	1.37E-04	5.13	1.93E-04	9.01	2.02E-04	
Sm-147	2.22E-04	0.32	1.96E-04	0.32	1.61E-04	10.57
Sm-148	3.24E-04	0.32	2.54E-04	0.32	1.11E-04	4.01
Sm-149	3.28E-06	1.05	3.36E-06	1.05	3.02E-06	5.88
Sm-150	5.08E-04	0.32	4.46E-04	0.32	2.43E-04	3.44
Sm-151	1.30E-05	0.40	1.47E-05	0.41	1.13E-05	2.21
Sm-152	1.66E-04	0.32	1.34E-04	0.32	9.46E-05	3.21
Sm-154	8.04E-05	0.33	5.73E-05	0.33	2.64E-05	5.65
Eu-151	7.18E-07	1.05	4.20E-07	1.05		
Eu-153	2.10E-04	0.34	1.84E-04	0.33	9.39E-05	5.49
Eu-154	3.22E-05	1.95	4.30E-05	0.77	1.38E-05	11.87
Eu-155	1.13E-05	2.64	1.53E-05	4.72	4.40E-06	4.64
Gd-155	5.63E-06	2.50	3.93E-06	1.00	2.64E-06	6.81
Sr-90	9.72E-04	7.50	7.75E-04	0.32	5.05E-04	
Mo-95	1.23E-03	3.87	1.18E-03	1.47	7.58E-04	1.56
Tc-99	1.25E-03	6.30	1.12E-03	1.94	5.99E-04	1.18
Ru-101	1.29E-03	4.58	1.21E-03	1.75	7.49E-04	2.00
Ru-106	2.56E-04	2.82	2.90E-04	14.21	1.29E-04	2.69
Rh-103	6.13E-04	4.49	5.40E-04	2.44	4.54E-04	2.36
Ag-109	7.51E-05	5.18	1.19E-04	9.06		
Sb-125	9.29E-06	5.07	7.50E-06	9.43		

^a In GWd/MTU; as reported in *ARIANE International Programme-Final Report*, ORNL/SUB/97-XSV750-1, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee (May 1, 2003).

^b Relative standard deviation.

Tabla 3.3 de [30] en la que se muestran las composiciones másicas relativas de los distintos núclidos encontrados en el combustible nuclear gastado. Se ha trabajado con la columna central: enriquecimiento del 4.1% y burn-up de 52.5GWdía/MT