

Quemado de Actínidos en Celdas de Combustible MOX

Eduardo Martínez Caballero¹, José R. Ramírez Sánchez¹, Gustavo Alonso Vargas^{1,2}

¹Instituto Nacional de Investigaciones Nucleares

Carretera México-Toluca S/N, La Marquesa, Ocoyoacac C.P. 52750, México.

eduardo.martinez@inin.gob.mx; ramon.ramirez@inin.gob.mx; gustavo.alonso@inin.gob.mx

²Instituto Politécnico Nacional (IPN)

Escuela Superior de Física y Matemáticas (ESFM)

Av. Instituto Politécnico Nacional s/n, Edificio 9, U.P. Adolfo López Mateos

Col. San Pedro Zacatenco, Del. Gustavo A. Madero,

C.P.07738, México, D.F.

Resumen

El combustible gastado de los reactores nucleares es almacenado temporalmente en repositorios en seco en muchos países del mundo. Sin embargo, lo anterior no resuelve el principal problema del combustible gastado, el cual es su alta radiotoxicidad de los mismos a largo plazo. Se requiere una nueva estrategia para cerrar el ciclo del combustible nuclear y para la sustentabilidad de la generación de energía por medios nucleares, esta estrategia podría ser el reciclado del plutonio para obtener más energía y reciclar los actínidos generados durante la irradiación del combustible para transmutarlos en radionúclidos menos radiactivos. En este trabajo evaluamos las cantidades de actínidos generados en diferentes combustibles y las cantidades de actínidos que se generan después de su reciclado en un reactor térmico. En primer lugar, hacemos un cálculo de referencia con un combustible regular de uranio enriquecido, luego es cambiado por un combustible MOX, variando las concentraciones de plutonio y determinando las cantidades de actínidos generados. Finalmente, se introducen diferentes cantidades de actínidos en un nuevo combustible y se calcula la cantidad de actínidos generados en el final del quemado del combustible, con el fin de determinar la reducción de actínidos menores obtenida. Los resultados muestran que si la concentración de plutonio en el combustible es alta, entonces la producción de actínidos menores también lo es. Los cálculos se realizaron utilizando el código de celdas CASMO-4 y los resultados obtenidos se muestran en la sección 6 de este trabajo.

1. INTRODUCCIÓN

La idea del reciclado del combustible nuclear gastado no es nueva, desde el comienzo de la era nuclear, el reprocesamiento de combustibles ha sido una parte fundamental de la recuperación del plutonio para el uso de armas nucleares, posteriormente el plutonio se ha utilizado para fabricar combustibles de óxidos mixtos denotado como combustibles MOX, este tipo de combustible permite obtener energía adicional a partir de la fisión del plutonio, quemando principalmente los isótopos ^{239}Pu y ^{241}Pu . El reciclaje del plutonio ha dado muy buenos resultados en la industria

nuclear; hoy en día la idea del reciclaje de actínidos como parte del ciclo del combustible nuclear ha tomado auge [1]. El reciclaje de actínidos en un reactor térmico sería viable si las cantidades de actínidos destruidos son significativas, en este trabajo se evalúa la cantidad de actínidos generados por algunos combustibles y el reciclaje de éstos en el mismo reactor que los generó.

El reciclaje se puede hacer mezclando algunos actínidos junto con la matriz de combustible de una manera que llamamos "el concepto aislado", en esta matriz sólo algunas barras de todo el ensamble de combustible contendrán actínidos. En estos casos en particular sólo cuatro barras contienen 6% de actínidos menores (AM) en forma de óxido y se introducen como parte del ensamble de combustible, se simuló siete diferentes celdas de combustible, cuatro para establecer las cantidades de actínidos generados en el combustible fresco y tres incluyendo las concentraciones de AM calculadas en las referencias, como valores iniciales para el nuevo ciclo de combustible.

La estrategia utilizada en este trabajo es la siguiente: en primer lugar, es necesario establecer el material de estudio para la generación de actínidos, este material será el combustible comercial de óxido de uranio (UO_2), para posteriormente diseñar un combustible MOX, lo anterior se hace considerando la razón de material fisil (RMF), que es una relación entre los enriquecimientos de uranio y las concentraciones de plutonio en las barras de combustible, con el fin de obtener el ensamble de combustible MOX [2]. En el combustible anterior, las barras de gadolinio permanecen sin cambios, tal y como se presentan en el caso del ensamble combustible UO_2 . Con todo esto se obtiene una referencia para las celdas de combustible UO_2 y MOX.

En la celda de combustible MOX, se sustituyeron ocho barras de combustible por posiciones de agua para aumentar la relación combustible-moderador y determinar la producción de actínidos, los resultados obtenidos se muestran en la sección 6.

2. CELDA DE COMBUSTIBLE UO_2

El reactor térmico propuesto para la irradiación es un reactor BWR con una potencia térmica de 2027 MWt y una longitud de ciclo de combustible de 18 meses, a un quemado de combustible promedio de 47.5 GWd/TU durante cuatro ciclos.

Como se muestra en la Tabla I, el combustible está compuesto por 25 nodos (6 pulgadas cada uno), que se dividen en 6 zonas, la zona 1 es uranio natural utilizado como reflector (6 pulgadas), la zona 2 es uranio enriquecido al 4.11% (84 pulgadas), la zona 3 es uranio con un 4.00% de enriquecimiento (12 pulgadas), la zona 4 consta de 6 nodos (36 pulgadas) con un 4.00% de enriquecimiento y las zonas 5 y 6 corresponden al uranio natural utilizado como reflector (12 pulgadas).

Tabla I. Combustible UO_2 con enriquecimiento promedio de 3.7%

Material	Nodo #	UO_2 Celda	Enriquecimiento %	Longitud Pulgadas	Zona #
Reflector	25	Tipo 6	0.71	6	6
Reflector	24	Tipo 5	0.71	6	5

Continuación Tabla I

Material	Nodo #	UO ₂ Celda	Enriquecimiento %	Longitud Pulgadas	Zona #
Combustible	23	Tipo 4	4.00	36	4
	22				
	21				
	20				
	19				
	18				
	17	Tipo 3	4.00	12	3
	16				
	15	Tipo 2	4.11	84	2
	14				
	13				
	12				
	11				
	10				
	9				
	8				
	7				
	6				
5					
4					
3					
2					
Reflector	1	Tipo 1	0.71	6	1

2.00	2.80	3.60	4.40	4.40	4.40	3.95	3.60	2.80	2.00
2.80	4.40	3.95	4.90	3.95	3.95	4.90	3.95	4.40	2.80
3.60	3.95	4.4g5	3.95	4.4g5	4.90	4.40	4.4g4	3.95	3.95
4.40	4.90	3.95	4.4g4	4.90	W	W	4.40	4.90	4.40
4.40	3.95	4.4g5	4.90	4.40	W	W	4.4g5	4.40	4.40
4.40	3.95	4.90	W	W	4.40	4.40	4.40	4.4g4	4.40
3.95	4.90	4.40	W	W	4.40	4.40	4.4g4	4.90	4.40
3.60	3.95	4.4g4	4.40	4.4g5	4.40	4.4g4	4.40	3.95g4	3.95
2.80	4.40	3.95	4.90	4.40	4.4g4	4.90	3.95g4	4.40	3.60
2.00	2.80	3.95	4.40	4.40	4.40	4.40	3.95	3.60	2.00

W Barra de agua g5 Barra con 5% de Gd₂O₃
g4 Barra con 4% de Gd₂O₃

Figura 1. Celda de combustible UO₂ utilizada como referencia (celda Tipo 2) en la generación de actínidos

Se realizó un cálculo de celda de referencia (celda Tipo 2) utilizando el código CASMO-4 [3], la longitud axial de esta celda es de 84 pulgadas compuesta de uranio enriquecido como combustible, como se muestra en la Figura 1. La cantidad de metales pesados que se obtiene como resultado en la celda Tipo 2 fue: 131.75 Kg.

El cálculo de celda fue realizado para una quemado de 47.5 GWd/TU, obteniendo una cantidad total de 6.63×10^{-2} % de AM con respecto al total de los metales pesados en la celda, lo que significa alrededor de 87.32 g de AM, los actínidos de nuestro interés son principalmente Np, Am y Cm. Estos actínidos son generados durante el ciclo de quemado normal, y con ellos se obtiene el vector que es utilizado en el cálculo de las nuevas celdas que contienen AM incorporados en el ensamble y se procede al cálculo de las nuevas celdas para al final determinar el inventario.

3. CELDA DE COMBUSTIBLE MOX

Tomando como referencia el combustible UO_2 , el concepto MOX fue diseñado cambiando el material fisil del combustible UO_2 , conservando la geometría y estructura del ensamble. Una manera de hacerlo es escalar el enriquecimiento de uranio fisil por concentraciones de plutonio grado reactor. Para realizar este proceso, varias RMF del material fisionable fueron realizadas, obteniendo el valor de RMF = 1.8 como el óptimo para determinar la cantidad de material fisil en las barras de combustible, excepto las barras que contienen gadolinio, que permanecen con su enriquecimiento inicial de uranio [4].

Tomando como referencia un ensamble de combustible común para reactores BWR, se ha diseñado un nuevo tipo de combustible MOX mostrado en la Figura 2, con el objetivo de incorporar barras de combustible con AM y calcular cuál es la cantidad de actínidos destruidos o transmutados durante la irradiación en un reactor térmico. En primer lugar, es importante evaluar las cantidades de actínidos generados durante la irradiación del combustible MOX. Esto nos permitirá determinar la cantidad de AM que se pueden reutilizar para ser incorporado en el nuevo diseño de celdas de combustible MOX [5].

3.60	5.04	6.48	7.92	7.92	7.92	7.11	6.48	5.04	3.60
5.04	7.92	7.11	8.82	7.11	7.11	8.82	7.11	7.92	5.04
6.48	7.11	4.40	7.11	4.40	8.82	7.92	4.40	7.11	7.11
7.92	8.82	7.11	4.40	8.82	W	W	7.92	8.82	7.92
7.92	7.11	4.40	8.82	7.92	W	W	4.40	7.92	7.92
7.92	7.11	8.82	W	W	7.92	7.92	7.92	4.40	7.92
7.11	8.82	7.92	W	W	7.92	7.92	4.40	8.82	7.92
6.48	7.11	4.40	7.92	4.40	7.92	4.40	7.92	3.95	7.11
5.04	7.92	7.11	8.82	7.92	4.40	8.82	3.95	7.92	6.48
3.60	5.04	7.11	7.92	7.92	7.92	7.92	7.11	6.48	3.60

W	Barra de agua	g5	Barra con 5% de Gd_2O_3
g4	Barra con 4% de Gd_2O_3		

Figura 2. Celda MOX para un ensamble de combustible

3.1. El concepto MOX-AM

Tomando como base la celda de combustible anterior, se incorporan cuatro barras que contienen 6% de AM, principalmente: ^{237}Np , ^{241}Am y ^{244}Cm en una matriz de uranio empobrecido con colas de enriquecimiento de 0.25% de ^{235}U [6, 7]. El vector de AM utilizado para introducir los AM en las barras de combustible se muestra en la Tabla II:

Tabla II. Vector de AM

Isótopo	^{237}Np	^{241}Am	^{244}Cm
% w	79.8045	8.3830	11.8125

Con estos materiales tenemos la nueva celda de combustible MOX-AM. Podemos ver en la Figura 3 que esta nueva celda de combustible contiene cuatro barras con 6% de AM las cuales reemplazan barras de combustible.

3.60	5.04	6.48	7.92	7.92	7.92	7.11	6.48	5.04	3.60
5.04	7.92	AM	8.82	7.11	7.11	8.82	7.11	7.92	5.04
6.48	AM	4.40	7.11	4.40	8.82	7.92	4.40	7.11	7.11
7.92	8.82	7.11	4.40	8.82	W	W	7.92	8.82	7.92
7.92	7.11	4.40	8.82	7.92	W	W	4.40	7.92	7.92
7.92	7.11	8.82	W	W	7.92	7.92	7.92	4.40	7.92
7.11	8.82	7.92	W	W	7.92	7.92	4.40	8.82	7.92
6.48	7.11	4.40	7.92	4.40	7.92	4.40	7.92	3.95	AM
5.04	7.92	7.11	8.82	7.92	4.40	8.82	3.95	7.92	6.48
3.60	5.04	7.11	7.92	7.92	7.92	7.92	AM	6.48	3.60

W	Barra de agua	g5	Barra con 5% de Gd_2O_3
g4	Barra con 4% de Gd_2O_3	AM	Barra con 6% de AM

Figura 3. Nueva celda de combustible MOX-AM

Los objetivos principales de estos cálculos son determinar las cantidades de AM generados en un combustible MOX. Este combustible fue simulado en las mismas condiciones que el combustible UO_2 de referencia.

4. CELDAS MOX CON UNA RAZÓN MAYOR DE COMBUSTIBLE-MODERADOR Y UNA RMF = 1.3

Estudios previos sobre el cambio de la relación de combustible-moderador en un ensamble de combustible MOX dieron como resultado que: si la cantidad de agua en el ensamble de combustible se incrementa, es posible aumentar el número límite de ensambles de combustible

MOX en el núcleo conservando el margen de apagado del reactor y también nos permite disminuir la RMF de 1.8 a 1.3 [2, 4].

Esta celda de combustible contiene 8 posiciones de barras llenas de agua, además de las trampas de agua comunes, por lo que tiene un total de 16 posiciones sin combustible. Esta celda de combustible tiene sólo barras de combustible MOX sin AM, pero hay 16 posiciones de agua. Entonces definimos esta celda de combustible como MOXm y es mostrada en la Figura 4.

2.60	3.64	4.68	5.72	5.72	5.72	5.14	4.68	3.64	2.60
3.64	5.72	5.14	6.37	W	5.14	6.37	W	5.72	3.64
4.68	5.14	4.40	5.14	4.40	6.37	5.72	4.40	W	5.14
5.72	6.37	5.14	4.40	6.37	W	W	5.72	6.37	5.72
5.72	W	4.40	6.37	5.72	W	W	4.40	W	5.72
5.72	5.14	6.37	W	W	5.72	5.72	5.72	4.40	5.72
5.14	6.37	5.72	W	W	5.72	5.72	4.40	6.37	5.72
4.68	W	4.40	5.72	4.40	5.72	4.40	5.72	3.95	5.14
3.64	5.72	W	6.37	W	4.40	6.37	3.95	5.72	4.68
2.60	3.64	5.14	5.72	5.72	5.72	5.72	5.14	4.68	2.60

W	Barra de agua	g5	Barra con 5% de Gd ₂ O ₃
g4	Barra con 4% de Gd ₂ O ₃		

Figura 4. Celda de combustible MOXm con 16 barras de agua y una RMF = 1.3

2.60	3.64	4.68	5.72	5.72	5.72	5.14	4.68	3.64	2.60
3.64	5.72	AM	6.37	W	5.14	6.37	W	5.72	3.64
4.68	AM	4.40	5.14	4.40	6.37	5.72	4.40	W	5.14
5.72	6.37	5.14	4.40	6.37	W	W	5.72	6.37	5.72
5.72	W	4.40	6.37	5.72	W	W	4.40	W	5.72
5.72	5.14	6.37	W	W	5.72	5.72	5.72	4.40	5.72
5.14	6.37	5.72	W	W	5.72	5.72	4.40	6.37	5.72
4.68	W	4.40	5.72	4.40	5.72	4.40	5.72	3.95	AM
3.64	5.72	W	6.37	W	4.40	6.37	3.95	5.72	4.68
2.60	3.64	5.14	5.72	5.72	5.72	5.72	AM	4.68	2.60

W	Barra de agua	g5	Barra con 5% de Gd ₂ O ₃
g4	Barra con 4% de Gd ₂ O ₃	AM	Barra con 6% de AM

Figura 5. Celda de combustible MOXm-AM con 16 barras de agua y una RMF = 1.3

En la Figura 5 se muestra una celda de combustible similar a la anterior, pero aquí tenemos cuatro barras que contienen 6% de AM en una matriz de uranio empobrecido, estas reemplazan a

las barras de combustible MOX, las cuales contenían 5.14% de plutonio como material fisil. Con lo anterior podemos definir una nueva celda de combustible que nombraremos MOXm-AM.

5. CELDAS MOXm CON UNA RMF = 1.45

En la Figura 6 se muestra el diseño de celda MOXm con la modificación de una mayor proporción de material fisil respecto a la anterior, el cual es de RMF = 1.4. La relación combustible-moderador se conservo de la misma forma que en nuestro caso anterior, es decir 16 barras de agua. Todo lo anterior es realizado con el fin de comparar las cantidades de actínidos producidos durante la irradiación con nuestro caso de referencia.

2.90	4.06	5.22	6.38	6.38	6.38	5.73	5.22	4.06	2.90
4.06	6.38	5.73	7.11	W	5.73	7.11	W	6.38	4.06
5.22	5.73	4.40	5.73	4.40	7.11	6.38	4.40	W	5.73
6.38	7.11	5.73	4.40	7.11	W	W	6.38	7.11	6.38
6.38	W	4.40	7.11	6.38	W	W	4.40	W	6.38
5.73	5.73	7.11	W	W	6.38	6.38	6.38	4.40	6.38
5.22	7.11	6.38	W	W	6.38	6.38	4.40	7.11	6.38
5.22	W	4.40	6.38	4.40	6.38	4.40	6.38	3.95	5.73
4.06	6.38	W	7.11	W	4.40	7.11	3.95	6.38	5.22
2.90	4.06	5.73	6.38	6.38	6.38	6.38	5.73	5.22	2.90

W	Barra de agua	g5	Barra con 5% de Gd ₂ O ₃
g4	Barra con 4% de Gd ₂ O ₃		

Figura 6. Celda de combustible MOXm con una RMF = 1.45

2.90	4.06	5.22	6.38	6.38	6.38	5.73	5.22	4.06	2.90
4.06	6.38	AM	7.11	W	5.73	7.11	W	6.38	4.06
5.22	AM	4.40	5.73	4.40	7.11	6.38	4.40	W	5.73
6.38	7.11	5.73	4.40	7.11	W	W	6.38	7.11	6.38
6.38	W	4.40	7.11	6.38	W	W	4.40	W	6.38
5.73	5.73	7.11	W	W	6.38	6.38	6.38	4.40	6.38
5.22	7.11	6.38	W	W	6.38	6.38	4.40	7.11	6.38
5.22	W	4.40	6.38	4.40	6.38	4.40	6.38	3.95	AM
4.06	6.38	W	7.11	W	4.40	7.11	3.95	6.38	5.22
2.90	4.06	5.73	6.38	6.38	6.38	6.38	AM	5.22	2.90

W	Barra de agua	g5	Barra con 5% de Gd ₂ O ₃
g4	Barra con 4% de Gd ₂ O ₃	AM	Barra con 6% de AM

Figura 7. Celda de combustible MOXm-AM con una RMF = 1.45

La celda de combustible MOXm-AM (Figura 7) se realizó reemplazando cuatro barras de combustible MOX que contiene 5.73% de plutonio por cuatro barras que contienen 6% de AM con el vector previamente especificado en una matriz de uranio empobrecido [8].

Todos estos diferentes diseños de celdas de combustible se simularon con el Software CASMO-4 desde un quemado cero hasta 47.5 GWd / TU. Los resultados se muestran en la siguiente sección.

6. RESULTADOS

La Tabla III muestra un resumen de todos los casos simulados de la generación de actínidos a un quemado cero y de 47.5 GWd/TU.

Tabla III. Producción de actínidos (en gramos) para todos los casos simulados a quemados cero y 47.5 GWd/TU

Actínido	UO ₂		MOX (RMF=1.8)		MOXm (RMF=1.3)		MOXm (RMF=1.45)	
	Quemado cero	47.5 GWD/TU	Quemado cero	47.5 GWD/TU	Quemado cero	47.5 GWD/TU	Quemado cero	47.5 GWD/TU
²³⁴ U	43.26	22.84	8.76	11.39	8.68	9.03	8.65	9.59
²³⁵ U	5407.89	794.18	1095.25	647.85	1085.59	519.04	1081.52	556.80
²³⁶ U	0.00	735.54	0.00	96.64	0.00	110.19	0.00	104.53
²³⁸ U	126298.84	122519.20	118806.88	116007.46	111513.27	108855.44	110631.74	108073.62
²³⁸ Pu	0.00	28.99	177.59	178.09	115.09	110.12	128.37	124.65
²³⁹ Pu	0.00	519.68	7127.13	3109.80	4618.79	1399.87	5151.99	1726.88
²⁴⁰ Pu	0.00	323.16	2900.58	2859.44	1879.74	1760.75	2096.73	2015.35
²⁴¹ Pu	0.00	147.69	1041.84	1190.41	675.17	722.25	753.11	823.66
²⁴² Pu	0.00	102.37	591.96	852.31	383.62	669.98	427.91	702.39
²³⁷ Np	0.00	71.28	0.00	21.88	0.00	20.27	0.00	19.80
²⁴¹ Am	0.00	6.33	0.00	161.57	0.00	83.46	0.00	101.08
²⁴² Cm	0.00	2.61	0.00	20.18	0.00	16.28	0.00	17.03
²⁴⁴ Cm	0.00	7.11	0.00	53.25	0.00	48.73	0.00	47.08

En los casos 1, 2, 3 y 4 las barras con AM no se incluyeron en la simulación de celdas de combustible, es notable que las cantidades de actínidos generados sean diferentes para cada caso, como referencia el combustible UO₂ genera sólo 72.6 g de actínidos para un quemado final de 47.5 GWd/TU, en comparación el combustible MOX produce hasta tres veces la cantidad del combustible de referencia, esto se debe principalmente a las capturas neutrónicas de los isótopos del plutonio que se transmutan a actínidos más pesados, por lo que si las concentraciones de

plutonio en el ensamble combustible son altas, la cantidad de actínidos generados será mayor, lo anterior es mostrado en la Tabla IV.

Tabla IV. Resumen de los resultados de las diferentes celdas simuladas

Celdas simuladas (en gramos)					
Caso	RMF	Celda	Fresco (0 GWd/TU)	Quemado (47.5 GWd/TU)	Diferencia
1	Ref.	UO ₂	0	87.32	
2	1.8	MOX	0	256.27	
3	1.3	MOXm	0	168.73	
4	1.45	MOXm	0	184.97	
5	1.8	MOX-MA	330.86	386.46	-55.60
6	1.3	MOXm-MA	329.82	303.24	26.58
7	1.45	MOXm-MA	362.23	354.01	8.22

7. CONCLUSIONES

Las cantidades de actínidos en el combustible común de uranio para una quemado a la descarga de 47.5 GWd/TU fue de 87.32 g, se realizó el concepto de combustible MOX, relacionando los enriquecimientos de uranio con las concentraciones de plutonio utilizando la RMF, con el fin de obtener las nuevas celdas de combustible que incluyen barras con AM. Sin embargo, si se cambia la relación entre el combustible-moderador en el combustible MOX, es posible reducir las cantidades de generación de actínidos como se muestra en los cálculos realizados en este trabajo.

REFERENCIAS

1. GEN IV International Forum, "Global Actinide Cycle International Demonstration (GACID) Project", *Annual Report 2015*, pp90, September 2016.
2. J. Ramon Ramirez S, "Utilización de Plutonio en Reactores de Agua Ligera y su Comportamiento Neutrónico", *Tesis Doctoral, Universidad Autónoma del Estado de México*, México, Febrero 2009.
3. Studsvik Scandpower, "CASMO-4 a Fuel Assembly Burnup Program", *SSP-01/400 e Rev 4*, 2004.
4. J. Ramon Ramirez, Gustavo Alonso, Robert T. Perry and Javier Ortiz-Villafuerte, "Assessment of a MOX Fuel Assembly Design for a BWR Mixed Reload", *Nuclear Technology*, **Vol. 156**, Dec. 2006.
5. Eduardo Martínez Caballero, "Análisis de Reducción de Radiotoxicidad Basada en el Reciclado de Actínidos", *Tesis Doctoral, Escuela Superior de Física y Matemáticas, IPN*, México, Diciembre 2015.
6. Eduardo Martínez C., J. Ramón Ramirez, Gustavo Alonso, "Actinides recycling assessment in a thermal reactor", *Annals of Nuclear Energy*, **Vol. 79** pp. 51 – 60, 2015.
7. GEN International Forum, "Proceedings GIF Symposium", pp 233, Paris, France, 9-10 September 2009.

8. J. Ramon Ramirez, Gustavo Alonso, Eduardo Martinez, Rogelio Castillo , Javier C. Palacios, “Analysis of actinide recycling in a Boiling Water Reactor using CASMO-4/SIMULATE-3”, *Progress in Nuclear Energy*, **Vol. 89** pp. 26 – 38, 2016.