

# Eliminación de los actínidos de los desechos mediante su reciclado en reactores nucleares

por H.A.C. McKay\*

Después de algunos siglos de desintegración radiactiva, los actínidos de largo período de desintegración, es decir, los elementos de números atómicos 89 a 103, pueden constituir, entre todos los desechos nucleares, el principal peligro radiológico potencial para el hombre. Ello se debe a que todos los demás productos de fisión, con muy pocas excepciones (principalmente el tecnecio-99 y el yodo-129), se habrán desintegrado entonces hasta alcanzar niveles insignificantes, quedando los actínidos como los principales elementos peligrosos. Por lo tanto, a primera vista, parece interesante la idea de reciclar los actínidos en reactores nucleares a fin de eliminarlos mediante la fisión nuclear.

Los cálculos de física nuclear indican que el proceso se desarrollaría a una tasa suficiente y que la economía neutrónica del reactor no sería afectada desfavorablemente por la presencia de actínidos adicionales en los elementos combustibles. Por ello, existen buenas razones para examinar con todo detalle la idea, sobre la que se han realizado estudios en ciertos países. Recientemente, estos estudios han culminado en conferencias internacionales en el Centro europeo de investigaciones conjuntas, de Ispra (Italia) [1] y en Austin, Texas (Estados Unidos de América) [2], así como en la publicación de un informe técnico del OIEA titulado *An Evaluation of Actinide Partitioning and Transmutation*, resultado de un programa de investigaciones coordinadas del OIEA de cuatro años de duración [2a] en el que se basa el present artículo. El término "partitioning" se refiere a la separación de los actínidos de los desechos del ciclo del combustible nuclear, lo que constituye una etapa preliminar necesaria para su introducción en los reactores para su transmutación mediante fisión nuclear. El procedimiento completo se conocerá como P-T, es decir "partición-transmutación".

Los principales actínidos en cuestión son el neptunio, el americio y el curio, que constituyen el 0,1% aproximadamente del combustible nuclear típico descargado del reactor. (En el ciclo del combustible del torio, que no tomaremos en consideración en esta breve exposición, el protactinio también se halla presente.) Estas especies pasan a las corrientes de desechos cuando se reelabora el combustible. Pueden, por consiguiente, denominarse actínidos de los *desechos*, mientras que el plutonio y el uranio pueden describirse como actínidos del *combustible*.

No tendría apenas sentido llevar a cabo la P-T de los actínidos de los desechos si las cantidades mucho mayores de plutonio presentes en el ciclo del combustible se almacenaran indefinidamente. Por lo tanto el reciclado de

los actínidos de los desechos debe considerarse como consecuencia del reciclado del plutonio para su utilización como combustible, sea en reactores de agua ligera o en reactores reproductores rápidos.

Este plan debe abarcar todas las corrientes de desechos que contengan actínidos. Los más importantes son los desechos de alta actividad (DAA) procedentes de la reelaboración, que contienen la mayor parte de los productos de fisión y de los actínidos de los desechos, aunque otras corrientes contienen también cantidades apreciables de actínidos, como, por ejemplo, las vainas de combustible desechadas y el material eliminado en la fabricación del combustible. En realidad, se está tratando de descontaminar todas estas últimas corrientes, tanto de actínidos del combustible como de actínidos de los desechos y de reincorporar los actínidos recuperados en puntos apropiados del ciclo del combustible. Esta tarea continuará, tanto si los actínidos de los desechos se reciclan en reactores para su transmutación como si no, dejando los DAA como única corriente de desechos con un contenido de actínidos de los desechos. El método de P-T requerirá entonces una nueva etapa de partición de los desechos de alta actividad.

## Descripción del plan

Las etapas necesarias para alcanzar la P-T de los actínidos de los desechos son las siguientes:

- Partición de los desechos nucleares para separar los actínidos de los desechos en forma suficientemente pura.
- Fabricación de elementos combustibles del reactor que contengan actínidos de los desechos. En principio, los actínidos de los desechos pudieran incorporarse uniformemente en todo el combustible (reciclado homogéneo), o bien concentrarse en ciertos elementos blancos especiales (reciclado heterogéneo), aunque esto último puede representar dificultades casi insuperables, como se expone más adelante.
- Introducción de elementos combustibles que contengan actínidos de los desechos en reactores para su irradiación. Probablemente podría utilizarse cualquiera de los tipos principales de reactores de potencia. La escala de operación es tal que sería necesario emplear gran número de reactores.
- Reelaboración de elementos combustibles irradiados y reciclado repetido de los actínidos de los desechos a lo largo de la serie completa de operaciones.

Las etapas principales del plan P-T se indican en el diagrama, en el cual se señalan también las principales diferencias con respecto al ciclo normal del combustible. Puede mencionarse inmediatamente una consecuencia

\* Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Didcot, Oxon, OX11 0RA, (Reino Unido).

del plan. Como en todos los casos de reciclado, la reintroducción continua en el sistema de especies recicladas conduce a la acumulación de ciclo a ciclo, de cantidades de estas especies. Por lo general, las cantidades tienden a nivelarse después de cierto número de ciclos. En el caso actual, esto sucede después de 5 a 10 ciclos, cuando las proporciones de neptunio y americio se han doblado aproximadamente y las del curio (con tasas diferentes de producción y destrucción) se han elevado a una cifra unas diez veces mayor.

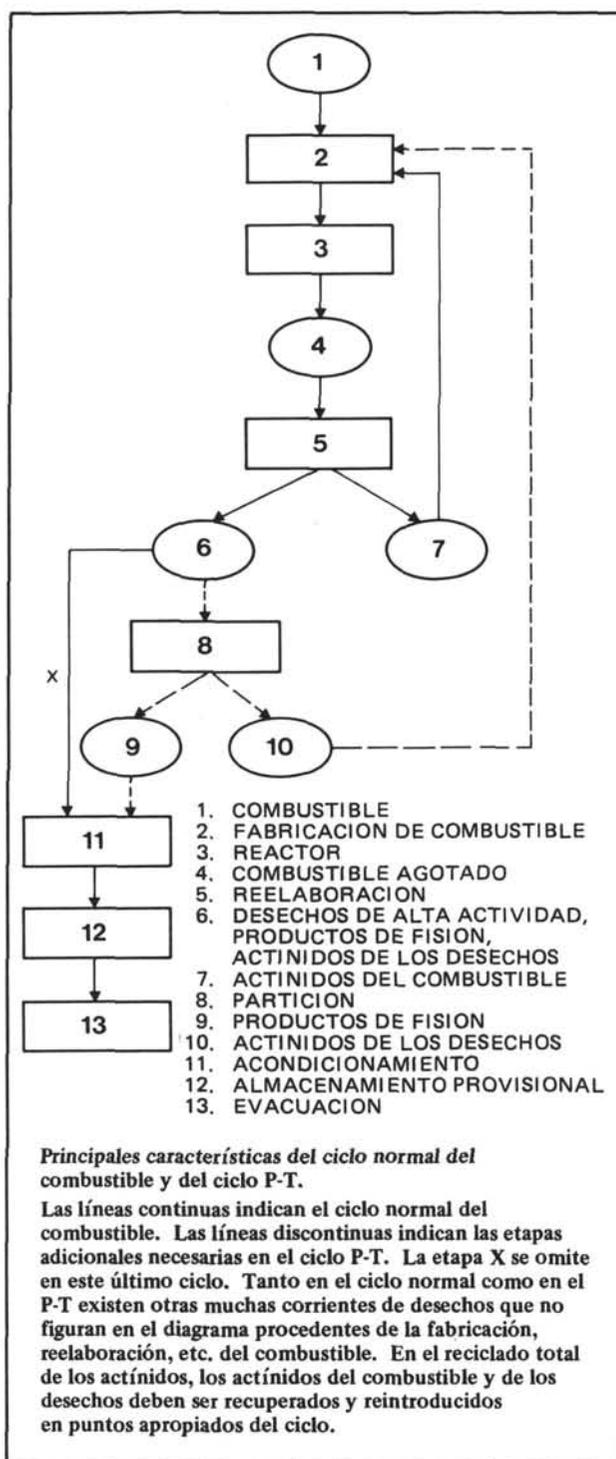
Las propiedades de algunos de los actínidos de los desechos hacen difícil su manipulación. Los problemas principales se deben a su elevada emisión de calor y de neutrones. Comparados con el combustible nuclear agotado, que es también, por supuesto, un material de difícil manipulación, la emisión de calor de aquéllos debida a la desintegración radiactiva es unas 30 veces mayor y la de neutrones es unas 10 000 veces mayor. Esta última requiere un blindaje considerable así como operación por control remoto de todos los procesos en que están presentes dichos actínidos. La disipación del calor de la desintegración radiactiva puede constituir un problema muy grave cuando esos actínidos están presentes en masa en forma concentrada.

### Partición

Como se ha observado antes, puede suponerse que la práctica futura será eliminar actínidos de todos los desechos que no sean DAA, a fin de reducir al mínimo los problemas de evacuación. La siguiente etapa que requiere la P-T consiste en eliminarlos de los DAA. No existe ninguna dificultad especial para ello en el caso del uranio, neptunio y plutonio, cuya química posee características únicas que pueden aprovecharse para separarlos de otras especies. Sin embargo, el americio y el curio (y actínidos superiores) son químicamente demasiado similares a ciertos productos de fisión, como los lantánidos (elementos de números atómicos 57-71). La separación es muy difícil de conseguir y el elevado nivel de actividad de los DAA aumenta grandemente esa dificultad.

Por lo general, se considera que la recuperación de los actínidos de los desechos comienza con la recuperación de los actínidos y del neptunio de los combustibles residuales, seguida de la separación de una fracción de una combinación de americio/curio/lantánidos. Estas etapas pueden desarrollarse en gran medida de la misma forma que las operaciones corrientes de reelaboración. Existen algunos métodos alternativos, algunos de los cuales se han ensayado a fondo en el laboratorio y, en cierta medida, a escala de la planta [3]. La viabilidad de esta parte del plan P-T ha quedado bien establecida.

La etapa final es la separación del americio y del curio de los lantánidos. Prácticamente solo se ha encontrado un reactivo apropiado para esta labor, se trata de un complicado compuesto orgánico conocido con el nombre de ácido dietilenotriaminopentaacético. Este compuesto puede utilizarse junto con una extracción con disolvente o bien mediante intercambio catiónico. Por ejemplo, si se añade a una fase acuosa de la extracción mediante un disolvente apropiado, retendrá el americio y el curio en el fase acuosa pero permitirá la extracción de los lantánidos en la fase del disolvente, efectuándose así una



separación de las especies pertinentes. Se posee experiencia en gran escala con respecto al uso del ácido dietilenotriaminopentaacético, junta con el intercambio de cationes (aunque no precisamente para la P-T de actínidos), lo que se considera suficiente para establecer su fiabilidad técnica [4].

Sin embargo, el proceso sería muy difícil de realizar por tratarse de lantánidos y actínidos presentes en desechos de elevada concentración. Sus radiaciones causarían un desprendimiento de gases, daños a los lechos de intercambio de iones y autocalentamiento de las soluciones y de esos lechos, dando lugar a un diseño y

## Ciclo del combustible nuclear

un funcionamiento complicados de la planta de separación y, como consecuencia, a un elevado volumen de trabajo de mantenimiento y a considerable exposición de los trabajadores a las radiaciones. Es dudoso que el proceso pueda llevarse a cabo en la forma rutinaria propia de las plantas industriales.

### Fabricación de combustibles

Hasta muy recientemente no se había prestado gran atención a los problemas de la fabricación de combustible y de elementos combustibles que contienen actínidos de desecho [5, 6]. En el reciclado homogéneo se ha considerado que no se plantean grandes problemas, ya que el combustible agotado tolera alrededor de 0,1% de actínidos de los desechos y el aumento previsto en la P-T es solamente del 0,5% por ejemplo. No obstante, un programa amplio requeriría desarrollar métodos de fabricación de combustible y diseñar y ensayar especialmente los elementos combustibles.

En el reciclado heterogéneo, cuando los actínidos de los desechos están concentrados en elementos combustibles blanco especiales, que están distribuidos entre los elementos combustibles normales en el reactor, los problemas son mucho más graves. El calor y la radiación emitida por los actínidos de los desechos concentrados interferiría en todas las operaciones, desde la preparación de la forma química deseada (probablemente óxido) hasta la reunión de elementos combustibles en un conjunto a partir de agujas combustibles individuales. Los problemas se facilitarían en cierto modo por la necesidad de diluir los actínidos de los desechos con, por ejemplo, magnesia, por las razones que se mencionan más adelante, pero seguirían siendo graves. En realidad pudiera no ser viable en absoluto llevar a cabo la operación de ensamblaje de los elementos combustibles blanco para reactores reproductores rápidos; por lo que puede preverse, el proceso habría de llevarse a cabo mediante control remoto en un baño de sodio líquido para proporcionar la refrigeración necesaria, lo cual parece una condición casi imposible. En el caso de los reactores de agua ligera, con un alto grado de dilución y refrigeración por agua en vez de sodio, los problemas serían más abordables, aunque todavía quedarían fuera del alcance de la tecnología hoy existente.

### Transmutación

Parece probable que la etapa de transmutación podría llevarse a cabo en reactores rápidos, puesto que quizá sean los únicos reactores existentes en número suficiente en el momento en que pueda aplicarse el método P-T en escala suficiente dentro de varios decenios. Esa elección se hace tanto más acertada debido a consideraciones técnicas detalladas que indican que dichos reactores son probablemente superiores a los reactores de agua ligera a estos efectos [4, 7].

Las tasas de transmutación, que, por supuesto, difieren de actínido a actínido y de reactor a reactor, corresponden típicamente a la transmutación de la mitad de la cantidad de actínidos presentes en 2 a 3 años; pero ese período de tiempo pudiera llegar a ser el doble si se toman en cuenta los factores de carga del reactor, tiempo fuera del reactor, etc. Para reducir la cantidad de actínidos de los

desechos a una cantidad 1000 veces menor, lo que necesitaría unas diez particiones sucesivas en dos partes serían necesarios unos 50 años. Esto significa que en todo plan P-T los actínidos de los desechos deben recircularse en los reactores un gran número de veces, ya que los elementos combustibles solo pueden permanecer en el reactor unos dos años antes de que comiencen a deteriorarse y deban descargarse.

Existe además otra consecuencia que guarda relación con las pérdidas de actínidos [7]. En el ciclo del combustible normal los actínidos de los desechos pasan a través del ciclo solamente una vez y se producen pequeñas pérdidas en corrientes de desechos distintas de los DAA. Se intentará reducir esas pérdidas, pero algunas de ellas son inevitables en la práctica. En el ciclo del combustible del proceso P-T, los actínidos de los desechos pasan repetidamente a través del ciclo, con pérdidas en cada pase, y la pérdida total es varias veces la del ciclo normal. En realidad, sería difícil evitar los 1 al 2% de pérdidas de actínidos de los desechos en un plan P-T.

Parece, pues, que la presencia de actínidos de los desechos sería realmente ventajosa para la economía neutrónica de un reactor rápido y representaría muy escasa diferencia en un reactor de agua ligera.

Solo se han estudiado de forma preliminar aspectos tales como la compatibilidad combustible/vaina y la posibilidad de que la temperatura central de las agujas de combustible se eleve por encima del punto de fusión del combustible. Las conclusiones provisionales [5, 6] son tranquilizadoras pero sería necesario proseguir los estudios antes de que pueda ponerse en práctica el método P-T, especialmente en el caso del reciclado heterogéneo. Además, en este tipo de reciclado sería necesario ajustar la producción de energía de los elementos combustibles blanco a los normales. Esto puede alcanzarse probablemente mezclando los actínidos de los desechos con un diluyente neutrónicamente inerte, como la magnesia [5]; el factor de dilución necesario sería aproximadamente 2 en reactores rápidos y aproximadamente 7 en un reactor de agua ligera.

### Evaluación de riesgos

La finalidad del proceso P-T es reducir los riesgos radiológicos potenciales a largo plazo de los desechos de alta actividad eliminando los actínidos. Esto se consigue a expensas de un incremento de otros posibles riesgos y de la complejidad del ciclo del combustible. Es difícil lograr un equilibrio, en parte porque las ventajas potenciales son ventajas a largo plazo que afectan a la población en general, mientras que los efectos desventajosos son principalmente efectos a corto plazo, que solo afectan a los operadores de las centrales nucleares.

Los estudios efectuados sobre las consecuencias radiológicas de diferentes métodos de evacuación no han puesto de relieve ninguna objeción insuperable para la evacuación de desechos sólidos que contengan actínidos, sea enterrándolos en formaciones geológicas o depositándolos en las profundidades oceánicas [4, 8, 9, 10]. Cuando se utilizan los valores más recientes recomendados por la CIPR [11] para fijar los límites anuales los citados

estudios indican que el neptunio es el actínido más importante, con gran diferencia por lo general, por lo que recurrir al método P-T para eliminar esta especie y sus precursores solo proporcionaría una ventaja limitada. Además, tal ventaja podría normalmente obtenerse de forma mucho más sencilla y económica modificando el método o las condiciones de evacuación. En algunos casos, los productos de fisión de período muy largo de desintegración (tecnecio-99 y yodo-129) pueden contribuir apreciablemente a los riesgos potenciales y pueden limitar las ventajas del método P-T.

A medida que se disponga de nuevos datos es de esperar una mejora continuada de la fiabilidad de estas evaluaciones de riesgos. Mientras tanto, las conclusiones son generalmente tranquilizadoras e indican que la aplicación del método P-T de los actínidos aportaría ventajas muy reducidas o nulas.

### Costos

Las cifras provisionales relativas a los costos del método P-T solo pueden ser aproximadas en la actual etapa de desarrollo. No obstante, parece que las opiniones coinciden [4, 12] en que supondrían hasta un 5% aproximadamente de los costos totales del ciclo del combustible, lo que ciertamente no es prohibitivo. Sin embargo, las posibles reducciones de las dosis colectivas a largo plazo serían comparativamente pequeñas, y todo parece indicar que, en la actualidad, es muy poco probable que el método P-T resulte eficaz en comparación con su costo.

Los diversos estudios sobre dicho método P-T parecen indicar una confluencia de opiniones respecto de:

- El método sería técnicamente viable, aunque es dudoso que pudieran llevarse a cabo las separaciones químicas necesarias de forma rutinaria en condiciones industriales.
- Serían necesarios grandes y largos trabajos de perfeccionamiento.
- Sería posible iniciar la aplicación a principios del próximo siglo; difícilmente podría esperarse una aplicación general hasta bastante avanzado el siglo XXI.
- La transmutación de los actínidos de los desechos debería realizarse en gran parte de los reactores nucleares de un país.

- Tendría poca utilidad transmutar los actínidos de los desechos a menos que se reciclase también el plutonio en los reactores y que se quemase como combustible nuclear.
- El plan P-T no sería demasiado caro, pero probablemente no sería tampoco eficaz en función de su costo.
- Las ventajas radiológicas a largo plazo serían limitadas y muy posiblemente superadas por las desventajas a corto plazo que entrañarían las operaciones que exige el método P-T.

### Referencias

- [1] Actas de la segunda reunión técnica sobre la transmutación nuclear de los actínidos celebrada en Ispra (Italia) en abril de 1980 (CCE, Luxemburgo 1980).
- [2] Conferencia internacional sobre la transmutación de desechos nucleares Austin, Texas, (Estados Unidos de América), julio 1980.
- [2a] E.R. Irish, *Waste Actinide Partitioning / Transmutation, An Assessment* IAEA-SM-246/63, Viena (Austria) (1981).
- [3] Véase, por ejemplo, *An Evaluation of Actinide Partitioning and Transmutation*, Appendix C, Informe técnico que será publicado por el OIEA.
- [4] A.G. Croff, J.P. Blomeke, B.C. Finney, *Actinide partitioning-transmutation programme, final report. I. Overall Assessment*, ORNL-5566 (1980).
- [5] E. Zamorani, J. Cametti, C. Ponti, E. Schmidt, F. Caligara, A. Moreno, *Design of fuel pins containing by-product actinides for irradiation in LWR and FBR power plants* EUR-6817 EN (1980).
- [6] A.G. Facchini, S. Gallone, E. Zamorani, *Considerations on a sol-gel type process as a fuel fabrication route for the actinide recycle* ref. [1], p.331.
- [7] H.A.C. McKay, M.G. Sowerby, M. Bustraan, J. Montizaan, A. van Dalen, B. Verkerk, *The separation and recycling of actinides — a review of the state of the art* EUR 5801e (1977).
- [8] Apéndices E, F y G de la referencia [3].
- [9] W.C. Camplin, P.D. Grimwood, I.F. White, *The effects of actinide separation on the radiological consequences of disposal of high-level radioactive waste on the ocean bed* NRPB-R94 (1980).
- [10] M.D. Hill, I.F. White, A.B. Fleishman, *The effect of actinide separation on the radiological consequences of geologic disposal of high-level waste*. NRPB-R95 (1980).
- [11] CIPR: publicaciones 26 (1977) y 30 (1979).
- [12] E. Schmidt, *Possible recycle strategies for by-product actinides in a reference scenario of installed nuclear generating capacity in the EC and their valuation* ref. [1], p.471.