

Determinación del inventario radiactivo de un elemento combustible en un núcleo de diseño de U_3O_8 mediante el código ORIGEN 2.1

José Castro^{1,*}, Braulio Ticona², Marcelo Madariaga³

¹ Departamento de Garantía de Calidad, Instituto Peruano de Energía Nuclear, Av. Canadá 1470, Lima 41, Perú

² Departamento de CASE, Instituto Peruano de Energía Nuclear, Av. Canadá 1470, Lima 41, Perú

³ Autoridad Regulatoria Nacional, Buenos Aires, Argentina

Resumen

Presentamos la metodología para determinar el inventario radiactivo de un elemento combustible perteneciente al núcleo de diseño del reactor RP-10, inicialmente propuesto en el año 1988, empleando el código de cálculo ORIGEN 2.1, que permite determinar la actividad de los 52 productos de fisión más característicos, su crecimiento en actividad durante la operación del reactor según las condiciones del diseño y la evolución del decaimiento de los productos de fisión, luego de 4 horas después de la parada del reactor, donde conservadoramente, un elemento combustible representa una fracción promedio de la potencia considerada en la evaluación del inventario radiactivo.

Determination of the radioactive inventory of a fuel assembly from a U_3O_8 design core, using ORIGEN 2.1 code

Abstract

This paper shows a methodology to determine the radioactive inventory of a fuel assembly of the RP-10 design core, which was proposed in 1988, using the ORIGEN 2.1 code, which allows to determine the activity of the 52 most characteristic fission products, its growth in activity during reactor operation under the terms of the design and evolution of decay of the fission products after 4 hours after the reactor shutdown, which conservatively, a fuel element represents an average fraction of the considered power in the radioactive inventory assessment.

1. Introducción

El inventario radiactivo del núcleo se refiere a la actividad de los elementos radiactivos, presentes en los elementos combustibles del núcleo del reactor, los cuales se determinan en Ci o Bq mediante códigos de computación como el ORIGEN 2.1, para determinar un listado de la actividad para cada uno de los radionucleídos en el tiempo, teniendo como conocimiento previo su historial de potencia.

La mayor parte del inventario está dado por los productos de fisión que se originan de la fisión de U-235 y en menor medida por los productos de activación, también se encuentran los actínidos que debido a la absorción se convierten en otros núcleos pesados radiactivos, que a su vez por decaimiento generan otros radionucleídos denominadas hijas. Para el caso de los radionucleídos de vida media larga, la actividad es proporcional a la energía generada, para los de vida media muy corta es proporcional a la potencia.

Como algunos radioisótopos decaen generando otros, se crea una dependencia entre ellos que ocasionan dificultades para su cálculo; por eso, se emplean códigos de computación, como el ORIGEN, para resolverlos. Además hay que tener en cuenta, que algunos productos de fisión son considerados absorbentes de neutrones, como el xenón y el samario y que se forman durante la operación de un reactor nuclear.

Para el caso de un reactor nuclear de investigación como el RP-10, que opera a una determinada potencia durante un tiempo, el inventario radiactivo originado estará dado por la actividad de los productos de fisión, los productos de activación, los actínidos y sus hijas.

El código ORIGEN 2.1 permite calcular la formación de más de 1700 radionucleídos; sin embargo en la determinación del inventario radiactivo, el término "inventario radiactivo" es considerado como término

* Correspondencia autor: jcastro@ipen.gob.pe

fuelle para el caso de un accidente severo postulado en el reactor RP-10 (accidente de diseño); se han empleado solamente 52 radionucleídos, que son considerados en los estudios de seguridad de reactores [1].

Esta consideración permite hacer la evaluación más conservadora en cuestión de seguridad, en donde estudios posteriores sobre el término fuente pueden considerar menor cantidad de radionucleídos de acuerdo con la tipología del accidente y las medidas de seguridad que se implementen. Se considera como *término fuente* al *inventario radiactivo* que es capaz de liberarse de la contención y llegar al medioambiente.

Los productos de fisión y activación que se forman en el proceso de fisión, pueden agruparse en un pequeño conjunto de categorías de elementos con comportamientos físicos y químicos similares [1,2].

Los radionucleídos de interés en los cálculos del término fuente son gaseosos, volátiles y nucleídos semivolátiles, ya que son los más propensos a ser liberados a partir de los elementos combustibles sobrecalentados. Una forma de clasificación es la siguiente:

- Elementos gaseosos: isótopos de gases nobles de kriptón y xenón.
- Elementos volátiles: iodo, cesio y el grupo telurio, excepto antimonio.
- Elementos semivolátiles en orden decreciente de volatilidad, rutenio, antimonio, bario, estroncio, cerio y lantano.
- Elementos disueltos en el combustible: que tienen puntos más altos de ebullición, como las tierras raras y actínidos.

En la Tabla 1 se muestra una clasificación propuesta por el IAEA [1].

Tabla 1. Clasificación de radionucleídos usado en los estudios de seguridad de reactores.

Clase	Radionucleídos relevantes
Gases nobles	Xe, Kr
Halógenos	I, Br
Metales alcalinos	Cs, Rb
Grupo de telurios	Te, Se, Sb
Tierras alcalinas	Sr, Ba
Metales de transición	Ru, Mo, Pd, Rh, Tc
Tierras raras / Lantánidos y actínidos	La, Nd, Eu, Y, Ce, Pr, Pm, Sm, Np, Pu, Zr, Nb

En el presente trabajo se determinará la actividad de cada uno de los 52 radionucleídos para un elemento combustible, que pertenece al núcleo de diseño compuesto por 36 elementos combustible de U_3O_8 . Para el estudio se considera que el reactor es operado a 10 MW durante 340 días continuos y luego de una parada se obtiene el decaimiento de los 52 radionucleídos en un tiempo de 4 horas, en donde observamos –a través de las gráficas- el comportamiento de cada uno de los radionucleídos durante el tiempo de operación y tras una parada de 4 horas.

2. Metodología

Para poder obtener los datos de radionucleídos de un elemento combustible del núcleo de diseño, se deben tener los datos del elemento combustible, como la composición isotópica, densidad del *meat* (que se obtiene de las especificaciones

técnicas), información sobre la potencia a que será sometido el elemento combustible, que se obtiene mediante un cálculo neutrónico del núcleo del reactor, para eso en el núcleo de diseño se considera que la distribución de potencia es homogénea y que todos los elementos combustibles tienen las mismas características, lo que supone distribuir la potencia de 10 MW entre los 36 elementos combustibles que conforman el grupo, luego se obtiene la potencia que le correspondería a un elemento combustible, que representa un dato para la obtención de todos los productos de fisión, productos de activación y actínidos en el elemento combustible; posteriormente, se hace una selección de los productos de fisión y actínidos de interés señalados en la Tabla 1.

2.1 Obtención de los datos del elemento combustible

En los estudios de seguridad realizados en el

año 1988 se considera el combustible de U_3O_8 con uranio de bajo enriquecimiento. Los elementos combustibles tienen 16 placas con combustible nuclear tipo MTR. Para las condiciones de operación se ha tomado información del IAS capítulo N° 16 [3], donde se formula la hipótesis de que el reactor funciona durante 340 días con 36 elementos combustibles a 10 MW de potencia, generando un quemado de 3400 MWD, lo que nos da una potencia para un elemento combustible de 277.8 kW.

Datos del combustible:

Combustible: U_3O_8

Densidad U: 2.296 g/cm^3

Densidad meat: 4.3577 g/cm^3

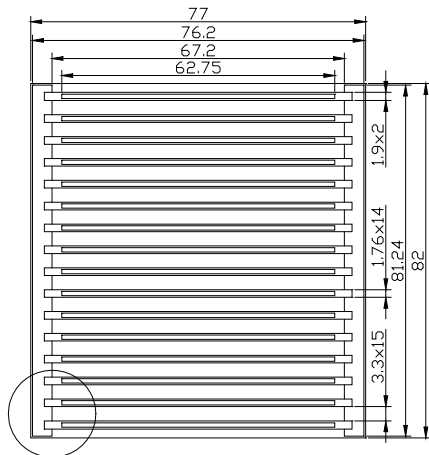


Figura 1. Diagrama de un elemento combustible U_3O_8 de 16 placas tipo MTR.

$$dX_i/dt = \sum_{j=1,N} I_{ij} \lambda_j X_j + \phi \sum_{k=1,N} f_{ik} \sigma_k X_k - (\lambda_i + \phi \sigma_i) X_i, \quad i = 1, \dots, N \quad (1)$$

Donde:

X_i = densidad atómica del nucleído i ;

N = número de nucleídos;

I_{ij} = fracción de desintegración radiactiva del nucleído j que contribuye a la formación del nucleído i ;

λ_i = constante de decaimiento radiactivo;

ϕ = flujo neutrónico medio promediado en espacio y energía;

f_{ik} = fracción de absorción neutrónica del nucleído k que contribuye a la formación del nucleído i ;

σ_k = sección eficaz neutrónica de absorción promediada en el espectro energético del nucleído k ;

Como se consideran N nucleídos, hay N ecuaciones de la misma forma, una para cada

Tabla 2. Composición isotópica del meat.

Elementos	gramos
$^{92}U235$	279.17
$^{92}U238$	1139.31
$^{80}O16$	258.31
$^{13}Al27$	3730.74
$^{14}Si29$	3.54
$^{24}Cr52$	0.03
$^{29}Cu63$	0.05

2.2 Desarrollo del cálculo con el código ORIGEN 2.1

El código ORIGEN es un código computacional de cálculo de inventario de radionucleídos en función del tiempo (producción y decaimiento) de una mezcla de nucleídos iniciales y opcionalmente a un nivel de potencia o flujo neutrónicos dados, realiza un cálculo neutrónico simple a un grupo de energía, usando el método de matriz exponencial para resolver un sistema grande de ecuaciones diferenciales acopadas, lineales, de primer orden con coeficientes constantes, el ritmo al cual la cantidad de nucleído "i" cambia en función del tiempo. Es descrita por la siguiente ecuación diferencial ordinaria de primer orden no-homogénea:

nucleído. La solución de este conjunto de ecuaciones diferenciales simultáneas da como resultado las cantidades de cada nucleído presentes al final de cada paso temporal (intervalo de integración) [4].

2.3 Cálculo de ORIGEN 2.1 para un elemento combustible de U_3O_8

El código ORIGEN requiere –como datos de entrada– el nivel de potencia, el nivel de quemado, la composición isotópica inicial, el tiempo de irradiación, el tiempo de decaimiento, datos de la biblioteca de radionucleídos que el código debe considerar y la forma de presentar la salida de los resultados.

3. Resultados y Discusión

Se realizó una serie de iteraciones para intervalos de tiempo de 40 días, siendo el primero de solo 10 días y para los decaimientos de 0,5, 1, 2 y 4 horas. La actividad total luego de 340 días de irradiación es de 3.46×10^5 curies o 1.28×10^{16} Bequerelios.

Tabla 3. Resultado de la irradiación de un elemento combustible de U_3O_8 por 340 días a 277.8 kW.

ítem	Radionucleído		Ci en 340 días
1	Kr	85	3.60E+01
2	Kr	85M	2.78E+03
3	Kr	87	5.59E+03
4	Kr	88	7.91E+03
5	Xe	133	1.472E+04
6	Xe	135	3.116E+03
7	I	131	6.760E+03
8	I	132	1.004E+04
9	I	133	1.535E+04
10	I	134	1.729E+04
11	I	135	1.429E+04
12	Rb	86	7.031E+00
13	Cs	134	2.364E+02
14	Cs	136	1.275E+02
15	Cs	137	3.022E+02
16	Te	127	4.314E+02
17	Te	127M	5.174E+01
18	Te	129	1.692E+03
19	Te	129M	2.539E+02
20	Te	131	6.05E+03
21	Te	132	9.97E+03
22	Sb	127	4.406E+02
23	Sb	129	1.712E+03
24	Sr	89	1.057E+04
25	Sr	90	2.839E+02
26	Sr	91	1.28E+04
27	Ba	140	1.419E+04
28	Mo	99	1.379E+04
29	Tc	99M	1.208E+04
30	Ru	103	7.790E+03
31	Ru	105	3.109E+03
32	Ru	106	6.36E+02
33	Rh	105	2.841E+03
34	Y	90	2.938E+02
35	Y	91	1.283E+04
36	Zr	95	1.426E+04
37	Zr	97	1.332E+04
38	Nb	95	1.386E+04
39	La	140	1.510E+04
40	Ce	141	1.347E+04
41	Ce	143	1.321E+04
42	Ce	144	6.99E+03
43	Pr	143	1.284E+04
44	Nd	147	5.201E+03
45	Np	239	2.727E+04
46	Pu	238	1.191E+00
47	Pu	239	2.952E-01
48	Pu	240	2.75E-01
49	Pu	241	3.38E+01
50	Am	241	1.079E-02
51	Cm	242	1.798E+00
52	Cm	244	1.631E-02
Act. Total en Ci:			3.46E+05

En la Tabla 3 se muestra la actividad de los 52 radionucleídos después de una irradiación de 340 días, en ella podemos observar la contribución de cada radionucleído a la actividad total mencionada.

Tabla 4. Resultado del decaimiento total de los productos de fisión de un elemento combustible de U_3O_8 después de 4 horas, el cual fue sometido a una irradiación de 277.8 kW por 340 días.

ítem	Radionucleído		Ci decae 4 h
1	Kr	85	3.60E+01
2	Kr	85M	1.52E+03
3	Kr	87	6.39E+02
4	Kr	88	2.98E+03
5	Xe	133	1.472E+04
6	Xe	135	5.357E+03
7	I	131	6.699E+03
8	I	132	9.847E+03
9	I	133	1.378E+04
10	I	134	2.100E+03
11	I	135	9.401E+03
12	Rb	86	6.987E+00
13	Cs	134	2.364E+02
14	Cs	136	1.264E+02
15	Cs	137	3.022E+02
16	Te	127	4.301E+02
17	Te	127M	5.175E+01
18	Te	129	1.202E+03
19	Te	129M	2.536E+02
20	Te	131	2.25E+02
21	Te	132	9.63E+03
22	Sb	127	4.322E+02
23	Sb	129	9.143E+02
24	Sr	89	1.055E+04
25	Sr	90	0.000E+00
26	Sr	91	9.55E+03
27	Ba	140	1.406E+04
28	Mo	99	1.323E+04
29	Tc	99M	1.198E+04
30	Ru	103	7.767E+03
31	Ru	105	1.722E+03
32	Ru	106	6.36E+02
33	Rh	105	2.806E+03
34	Y	90	2.933E+02
35	Y	91	1.283E+04
36	Zr	95	1.423E+04
37	Zr	97	1.130E+04
38	Nb	95	1.386E+04
39	La	140	1.503E+04
40	Ce	141	1.346E+04
41	Ce	143	1.224E+04
42	Ce	144	6.99E+03
43	Pr	143	1.284E+04
44	Nd	147	5.152E+03
45	Np	239	2.615E+04
46	Pu	238	1.194E+00
47	Pu	239	2.955E-01
48	Pu	240	2.75E-01
49	Pu	241	3.38E+01
50	Am	241	1.082E-02
51	Cm	242	1.802E+00
52	Cm	244	1.632E-02
Act. Total en Ci:			2.98E+05

En la Tabla 4 se muestra los resultados de la actividad alcanzada por cada uno de los

radionucleídos después de un decaimiento de 4 horas, luego de la parada del reactor siendo el total de la actividad alcanzada de 2.98×10^5 curies o 1.10×10^{16} .

La metodología empleada sigue el siguiente flujograma, donde luego de insertar los datos al código *ORIGEN* se sigue una serie de

requerimientos dados por el programador, como es la selección de la librería a utilizar, para este caso la categoría de isótopos que se desea obtener a la salida, los datos de irradiación e intervalos de decaimiento y la forma de cómo se deben presentar los resultados a la salida del código.

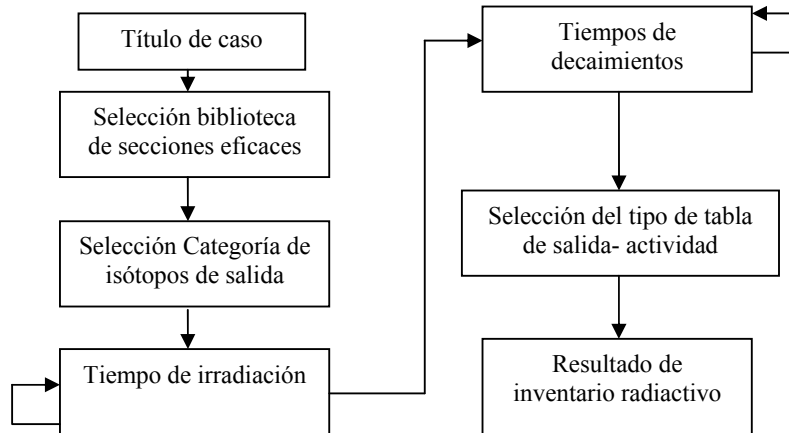


Figura 2. Flujograma básico de ORIGEN 2.1 para cálculo de inventario radiactivo.

En la Figura 3 se muestra la evolución para cada uno de los 52 productos de fisión que son originados por la operación del reactor o por la irradiación de un elemento combustible de uranio U_3O_8 , en ella se puede observar los diversos comportamientos en el crecimiento

de los productos de fisión, los diversos niveles de actividad que alcanzan cada uno de ellos y la rapidez con que llegan a la saturación y en algunos casos aún no alcanzan su punto de saturación en el tiempo fijado de 340 días.

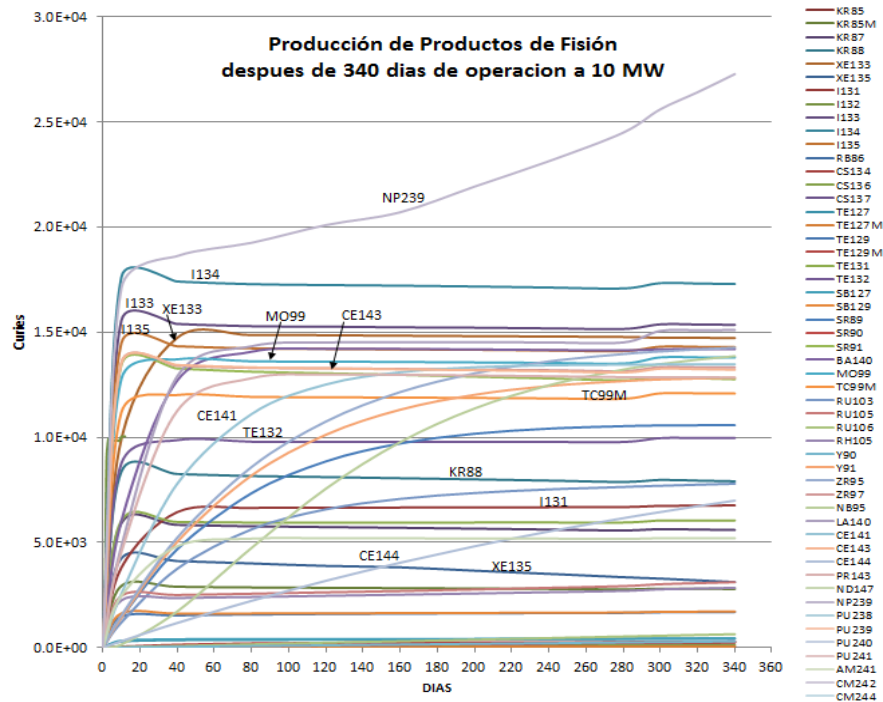


Figura 3. Crecimiento de los productos de fisión luego de una irradiación de 340 días a 277.8 kW.

Se puede notar que hay un crecimiento notorio de Np-239, Ce-141, Zr-95, Y-91, Nb-95 y Sr-89. Los yodos, algún xenón y molibdeno, muestran un rápido crecimiento en los primeros 40 días hasta llegar a su punto de saturación, luego se mantienen constantes. El xenón 135 muestra al inicio un rápido crecimiento y luego con el tiempo muestra un decaimiento debido a captura neutrónica [5], por lo cual es considerado como un veneno porque disminuye la población de neutrones en el núcleo.

La contribución de todos estos productos de fisión da origen a la curva de crecimiento total del inventario radiactivo considerado

para un elemento combustible de U_3O_8 , tal como se puede apreciar en la Figura 4.

De igual forma, se obtienen las curvas detalladas del decaimiento de los 52 productos de fisión en estudio, después de 4 horas del corte del reactor, en la Figura 5 se puede observar el comportamiento para cada uno de ellos, en donde por ejemplo vemos que el Sr-90 cae rápidamente, la lenta caída del I-133, I-135, Sr-91, Te-131, Kr-87 y del Np-239 que es el principal contribuyente en la actividad del decaimiento, también podemos ver el crecimiento del Xe-135, debido al decaimiento del I-135.

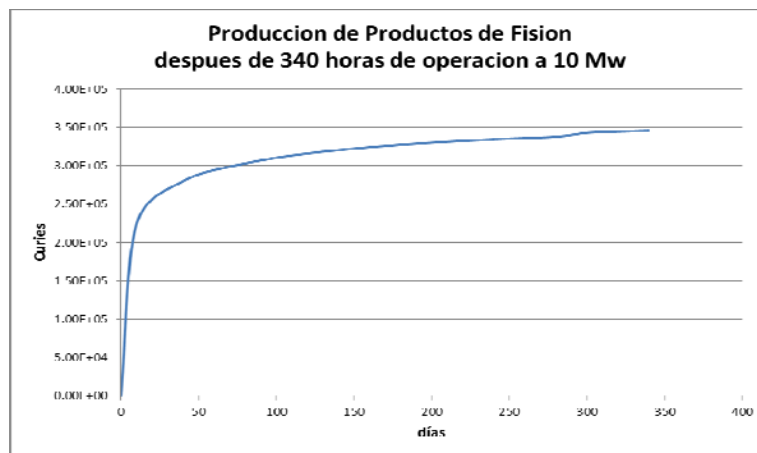


Figura 4. Curva de Inventario radiactivo producido en el reactor para la irradiación de un elemento combustible durante 340 días a 277.8 kW, con un máximo en actividad de 3.46×10^5 curies.

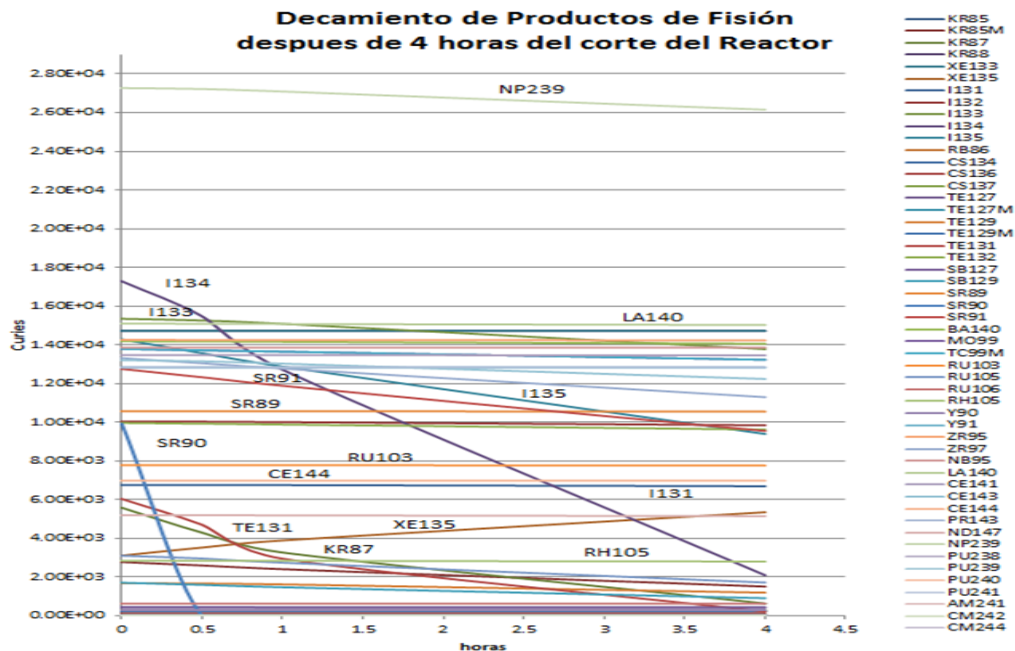


Figura 5. Decaimiento de cada uno de los productos fisión después de 4 h de parada del reactor.

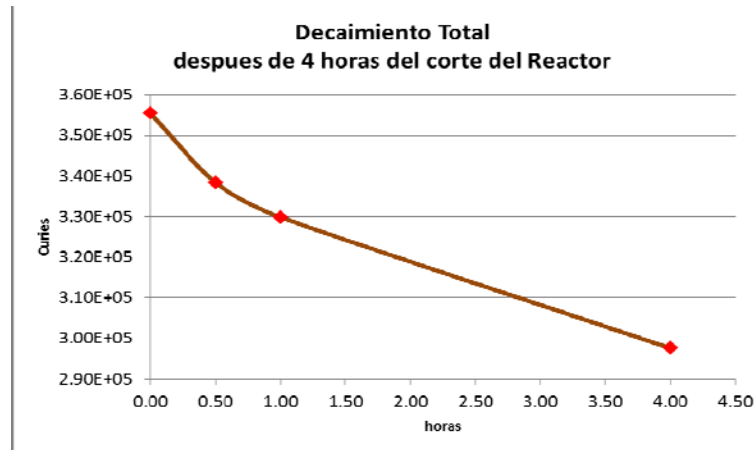


Figura 6. Curva del decaimiento integral después de 4 horas del corte del reactor.

En la Figura 6 se observa que la tendencia del decaimiento total está influenciada por el decaimiento del Np-239, todas las demás aportaciones de los decaimientos de los otros radionucleídos se suman al margen establecido por el Np-239.

Se debe destacar la importancia de ambas gráficas dependiendo el caso de análisis que se quiera establecer, para las consecuencias de un accidente en forma global o para establecer un accidente de acuerdo con el radionucleído de interés, donde frecuentemente son considerados los radioyodos y los gases nobles.

En caso de que se quiera considerar qué productos de fisión se determinarían en tiempos más prolongados de decaimiento, se puede consultar la gráfica de espectros de la referencia [6].

4. Conclusiones

Este estudio ha sido realizado para su posterior uso en casos de accidentes, debido a la fusión de un elemento combustible, con conocimiento de los productos de fisión que se pueden encontrar después de 4 horas del corte del reactor, dando una idea del tipo de radionucleído que se encontrará y la actividad que puede alcanzar en un tiempo corto después de sucedido el accidente. También puede servir para observar la formación de algunos venenos que se forman en el reactor como el caso del Xe-135 o la formación de gases nobles como la familia de kriptón, xenón y las familias de lantánidos (La, Ce, Pr, Nd) y actínidos (Np, Pu, Am, Cm), en donde se puede destacar el gran aporte del

Np-239 en el valor del inventario radiactivo producido en el reactor y que influye notoriamente en el límite inferior en la curva de decaimiento integral con 2.98×10^5 curies (1.10×10^{16} Bequerelios)

5. Agradecimientos

Al personal de Cálculo, Análisis y Seguridad del reactor RP-10 por sus aportes y observaciones a este trabajo.

6. Bibliografía

- [1] IAEA. Derivation of the source term and analysis of the radiological consequences of research reactor accidents. Safety Reports Series N° 53. Vienna: Austria; 2008.
- [2] Rasmussen N. An Assessment of accidents in US Commercial Nuclear Power Plants. Wash-1400, Rep. NUREG-75/014, Appendix VI, section 3 "Radioactive Decay and Deposition", Washington, DC; 1975.
- [3] Instituto Peruano de Energía Nuclear. Informe de análisis de seguridad N° 16. Análisis de Riesgo; 2013. [Informe interno].
- [4] Croff AG. A User's Manual for the ORIGEN 2 Computer Code. Oak Ridge National Laboratory ORNL/TM-7175; 1980.
- [5] Zuñiga A. Medición del tiempo de máximo veneno en una parada intempestiva del reactor nuclear RP-10. Informe Científico Tecnológico. 2006; 6: 129-137.
- [6] Vela M, Gallardo A, Castro J, Terremoto L. Nondestructive burnup measurements by gamma-ray spectroscopy on spent fuel elements of the RP-10 Research Reactor. Progress in Nuclear Energy. 2011; 53(4): 344-353.