

|                       |             |
|-----------------------|-------------|
| C.N.E.A. Biblioteca   |             |
| ARCHIVO PUBLICACIONES |             |
| Nº<br>1               | AÑO<br>1974 |

08.74.10

CNEA/PR - 4/142

REPUBLICA ARGENTINA  
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA  
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

QUEMADO DE COMBUSTIBLES CON URANIO  
DE ALTO ENRIQUECIMIENTO EN REACTORES TERMICOS

por

J. Flegenheimer\* y A.J.G. Maroto\*\*

\* Area Reactores Nucleares

\*\* Prospectiva

BUENOS AIRES

JUNIO 1974

REPUBLICA ARGENTINA  
COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA  
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

QUEMADO DE COMBUSTIBLES CON URANIO  
DE ALTO ENRIQUECIMIENTO EN REACTORES TERMICOS

por

J. Flegenhimer\* y A.J.G. Maroto\*\*

\* Area Reactores Nucleares

\*\* Prospectiva

BUENOS AIRES

JUNIO 1974

## RESUMEN

Se dan las ecuaciones básicas y gráficos para el caso del quemado de combustible de alto enriquecimiento, usando el reactor RA - 3 como ejemplo. Se calcula la formación de neptunio y de isótopos de plutonio. Los procesos que llevan a la formación de  $^{232}\text{U}$  son descritos con sus importancias relativas. Se hace un estudio de la composición del combustible para el caso de reciclaje en el reactor.

## ABSTRACT

Basic burn-up equations and graphs are given for highly enriched fuel and the case of the RA - 3 reactor is used as an example. Production of neptunium and plutonium isotopes are calculated. The ways in which  $^{232}\text{U}$  is formed are described and their relative importance given. A study is made of the composition of the fuel by recycling through the reactor.

## INTRODUCCION

El término "quemado" (burn-up) es un concepto genérico que se utiliza para indicar el grado de agotamiento de una carga. Sin embargo, es generalmente aplicado a la parte fisiónada del combustible nuclear.

El grado de agotamiento de una carga puede expresarse ya sea por la proporción de núcleos fisiónables desaparecidos por fisión en el material o bien por la proporción de núcleos fisiónables desaparecidos en total por cualquier causa. En el caso de que esta distinción tenga importancia se usará el término "fisionado" para el primer caso y el término "consumo" para el segundo.

Desde el punto de vista del reprocesamiento de los elementos combustibles nucleares, el quemado de los mismos es un dato de sumo interés por las siguientes razones:

a. - determina la cantidad y composición isotópica del uranio a reprocesar.

b. - determina la actividad debida a los productos de fisión acompañantes.

c. - determina la cantidad y composición de los elementos trans-uranianos acompañantes.

Si el combustible es uranio de muy alto enriquecimiento, la formación de plutonio durante la operación del reactor puede despreciarse. El calor producido durante la operación es entonces directamente proporcional al consumo de  $^{235}\text{U}$ .

En este trabajo se presentan algunos datos de interés para el reprocesamiento de este tipo de combustibles de reactores térmicos. Se ha tenido especialmente en cuenta su posible aplicación al caso del reactor RA-3, para cuya composición isotópica del combustible sin irradiar <sup>(1)</sup> se han tomado como típicos los valores que se ilustran en la Tabla I

## OPERACION DEL REACTOR A FLUJO CONSTANTE O A POTENCIA CONSTANTE

Durante la operación del reactor, el consumo de  $^{235}\text{U}$  estará dado, en cada instante por :

$$- dN_5/dt = N_5 \phi \sigma_T \quad (1)$$

donde los símbolos tienen el mismo significado que en un trabajo anterior (2).

Para la integración de la ecuación (1) pueden plantearse dos situaciones teóricas diferentes, ambas posibles de existir en la práctica:

a. - la muestra, que contiene  $N_5$  núcleos de  $^{235}\text{U}$  en el instante  $t$ , es irradiada en un flujo  $\phi$  constante. Por ejemplo, mediante el flujo de una fuente exterior a dicha muestra.

b. - la muestra es irradiada de tal manera que permanece constante el número de sus fisiones por unidad de tiempo. Este es el caso de una muestra que forma parte del combustible de un reactor que trabaja a potencia constante sin recambio de combustible.

Dada la suposición a) la integración de la ecuación (1) conduce a :

$$x = 10^2 (N_5^0 - N_5)/N_5^0 = 10^2 (1 - e^{-\sigma_T \phi t}) \quad (2)$$

donde  $x$  es el consumo de  $^{235}\text{U}$ . Para el flujo integrado, que simbolizaremos por  $F$ , se obtiene la siguiente expresión:

$$F = \phi \cdot t = -\frac{1}{\sigma_T} \ln (1 - x \cdot 10^{-2}) = \frac{1}{\sigma_T} \ln (N_5^0 / N_5) \quad (3)$$

La suposición b) lleva la ecuación (1) a la expresión:

$$x = 10^2 (1 - e^{-\sigma_T \int_0^t \phi_t dt}) \quad (4)$$

donde  $\phi_t$  es el flujo en el instante  $t$ . La ecuación (4) es formalmente igual a la ecuación (2). Para este caso puede definirse un flujo medio  $\bar{\phi}$  tal que:

$$\int_0^t \phi_t \cdot dt = \bar{\phi} \cdot t \quad (5)$$

La ecuación (2) o bien la ecuación (4) con la convención de la expresión (5) fue representada en una publicación anterior (2). En la Fig. 1 se graficó nuevamente esta expresión agregando la escala en MWd/T para uranio enriquecido al 90% como composición inicial.

En la irradiación a potencia constante el flujo varía con el consumo de acuerdo a la siguiente expresión:

$$\phi_t = \phi_0 \cdot 100 / (100 - x) = \phi_0 / (1 - \phi_0 \sigma_T t) = \phi_0 e^{\sigma_T \bar{\phi} t} \quad (6)$$

donde  $\phi_0$  es el flujo inicial en el momento  $t = 0$ . El flujo integrado varía según la expresión (3) con  $\phi = \bar{\phi}$ .

Si se compara el caso a) con el b) se puede observar que el mismo grado de quemado es alcanzado al mismo tiempo  $t$  sólo si  $\bar{\phi} = \bar{\phi}$ . En cambio si  $\bar{\phi} = \phi_0$ , el mismo grado de quemado se obtiene en tiempos menores en la situación b). -

En un espectro neutrónico siempre es más fácil la determinación de una sección eficaz práctica relativa que la medición de secciones eficaces absolutas. Por  $\alpha$  se representa la relación entre la sección eficaz de captura ( $n, \gamma$ ) y la de fisión ( $n, f$ ) de  $^{235}\text{U}$ . Este valor ha sido medido con precisión en distintos tipos de espectros. Para espectros térmicos, el valor teórico es de:

$$\alpha = \sigma_c / \sigma_f = 100 \text{ b} / 580 \text{ b} = 0,173.$$

El valor práctico recomendado para reactores tipo MTR, con combustibles altamente enriquecidos, es de  $\alpha = 0,185 \pm 0,008$  (3), valor que se basa en datos experimentales. Para los cálculos futuros se adoptará este valor. No es de extrañar que éste sea mayor que el valor térmico puesto que la sección eficaz de fisión decrece de acuerdo con la ley  $1/v$  mientras que en la sección de captura influyen las resonancias de la zona epitérmica.

La proporción fisionada de  $^{235}\text{U}$  respecto del consumo total es:

$$\% \text{ fisionado} = x \cdot \sigma_f / \sigma_T = x / (1 + \alpha) \quad (7)$$

que para nuestro caso toma el valor de

$$\% \text{ fisionado} = 0,844 \cdot x \quad (8)$$

En lo que sigue se supondrá que el valor de  $\alpha$  es constante durante la operación del reactor.

### PRODUCCION DE $^{236}\text{U}$

El quemado de  $^{235}\text{U}$  puede medirse en base al  $^{236}\text{U}$  formado por captura. Despreciando la pérdida de  $^{236}\text{U}$  por captura de neutrones, la relación entre el consumo del  $^{235}\text{U}$  y la producción del  $^{236}\text{U}$  es:

$$N_5^0 - N_5 = (1 + \alpha) (N_{26}^0 - N_{26}) / \alpha \quad (9)$$

donde  $N_{26}$  es el número de núcleos de  $^{236}\text{U}$  (\*)

En muestras de la planta de reprocesamiento, en especial si el reprocesamiento es por proceso continuo, es más fácil determinar las relaciones entre nucleídos que sus valores absolutos. Para este propósito la ecuación (9) puede transformarse en : (apéndice I)

$$x = 10^2 (N_5^0 - N_5) / N_5^0 = 10^2 \frac{(R_{65}^0 - R_{65}) (1 + \alpha)}{\alpha + (1 + \alpha) R_{65}} \quad (10)$$

Donde  $x$  es el porcentaje de  $^{235}\text{U}$  consumido y  $R_{65}^0$  y  $R_{65}$  son las relaciones entre el  $^{236}\text{U}$  y  $^{235}\text{U}$  antes y después de la operación del reactor respectivamente.

La relación  $R_{65}$  en función del porcentaje de  $^{235}\text{U}$  consumido es:

$$R_{65} = \frac{10^2 R_{65}^0 (1 + \alpha) + \alpha x}{(1 + \alpha)(100 - x)} \quad (11)$$

En la Fig. 2 se ha representado el valor de  $R_{65}$  en función de  $x$  para un valor inicial  $R_{65}^0 = 0,32 \%$ , que corresponde al combustible del RA-3 de la Tabla I.

(\*) donde  $N_{ab}$  es el número de átomos del nucleído, siendo  $a$  la última cifra del número atómico y  $b$  la última cifra del número de masa (4).

CAMBIO EN EL ENRIQUECIMIENTO DE  $^{235}\text{U}$ 

El quemado puede también medirse por el cambio del enriquecimiento en  $^{235}\text{U}$  durante la irradiación. Para enriquecimientos altos puede suponerse en primera aproximación que sólo el  $^{235}\text{U}$  sufre transformaciones por captura o fisión, mientras que los demás isótopos permanecen constantes. La parte de uranio eliminada por fisión es entonces:

$$N_T^0 - N_T = (N_5^0 - N_5) / (1 + \alpha) \quad (12)$$

Donde  $N_T^0$  y  $N_T$  son el número total de átomos de uranio antes y después de la operación del reactor respectivamente. Si  $E_5^0$  y  $E_5$  son los respectivos enriquecimientos en  $^{235}\text{U}$ , puede deducirse (apéndice II)

$$x = 10^2 \frac{N_5^0 - N_5}{N_5^0} = 10^2 \frac{(E_5^0 - E_5)(1 + \alpha)}{E_5^0 (1 + \alpha - E_5)} \quad (13)$$

De la ecuación (13) se obtiene:

$$E_5 = E_5^0 \frac{(1 + \alpha)(100 - x)}{10^2 (1 + \alpha) - x E_5^0} \quad (14)$$

que ha sido representada en la Fig. 3 para  $\alpha = 0,185$  y el enriquecimiento original en  $^{235}\text{U}$  de la Tabla I.

De manera semejante es posible obtener una ecuación para  $R_{85}$ , la relación entre el  $^{238}\text{U}$  y  $^{235}\text{U}$ , en función del  $^{235}\text{U}$  consumido. Despreciando la pérdida por captura en  $^{238}\text{U}$  se obtiene:

$$x = 10^2 (1 - R_{8/5}^0 / R_{8/5}) \quad (15)$$

Las ecuaciones (10), (13) y (15) son las que se utilizan para determinar los consumos en combustibles de alto enriquecimiento mediante espectrometría de masa <sup>(5)</sup>.

En la Fig.4 se han representado los enriquecimientos del combustible en diferentes isótopos de uranio como función del  $^{235}\text{U}$  consumido. Para la composición del combustible original se tomaron los valores de la Tabla I.

## DISMINUCION DE URANIO TOTAL EN EL COMBUSTIBLE

La ecuación ( 12 ) tambien permite hallar la reducci3n en el n3mero total de 3tomos de uranio en funci3n del quemado. La reducci3n at3mica porcentual, expresada en funci3n del enriquecimiento original de  $^{235}\text{U}$ , est3 dada por :

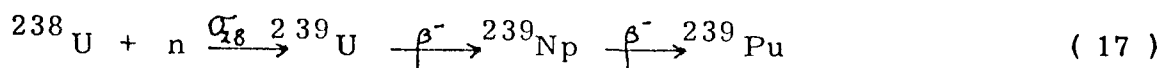
$$10^2 ( N_T^0 - N_T ) / N_T^0 = x \cdot E_5^0 / ( 1 + \alpha ) \quad ( 16 )$$

que es practicamente igual a la reducci3n porcentual en peso.

La funci3n  $10^2 N_T / N_T^0$  versus el porcentaje de  $^{235}\text{U}$  consumido se ha representado en la Fig. 5.

## PRODUCCION DE $^{239}\text{Pu}$ Y DE $^{237}\text{Np}$

Aunque para obtener las ecuaciones anteriores se supuso que s3lo el  $^{235}\text{U}$  captura neutrones, esto es s3lo cierto en una primera aproximaci3n. Los is3topos con n3meros de masa 238 y 236 dan origen a la formaci3n de  $^{239}\text{Pu}$  y  $^{237}\text{Np}$  por medio de las siguientes reacciones:



A partir de la cadena de reacciones ( 17 ) pueden plantearse las siguientes ecuaciones diferenciales:

$$\begin{aligned} dN_{29}/dt &= N_{28} \phi \sigma_{28} - \lambda_{29} N_{29} \\ dN_{39}/dt &= N_{29} \lambda_{29} - N_{39} ( \lambda_{39} + \sigma_{39} \phi ) \end{aligned}$$

$$dN_{49}/dt = N_{39} \lambda_{39} - N_{49} \sigma_{49} \phi \quad (19)$$

La resolución de las ecuaciones (19) conduce a :

$$N_{29} = \frac{N_{28} \phi \sigma_{28}}{\lambda_{29}} (1 - e^{-\lambda_{29} t}) \quad (20)$$

$$N_{39} = N_{28} \phi \sigma_{28} \left( \frac{1}{\Lambda_{39}} - \frac{e^{-\lambda_{29} t}}{\lambda_{39} - \lambda_{29}} + k \cdot e^{-\Lambda_{39} t} \right) \quad (21)$$

donde

$$\Lambda_{39} = \lambda_{39} + \sigma_{39} \cdot \phi$$

$$k = \lambda_{29} / \Lambda_{39} (\Lambda_{39} - \lambda_{29}) .$$

$$N_{49} = N_{28} \phi \sigma_{28} \lambda_{39} \left[ (1 / \Lambda_{39} \sigma_{49} \phi) - \right. \\ \left. - e^{-\lambda_{29} t} / (\Lambda_{39} - \lambda_{29}) (\sigma_{49} \phi - \lambda_{29}) + \right. \\ \left. + k e^{-\Lambda_{39} t} / (\sigma_{49} \phi - \Lambda_{39}) + Q \cdot e^{-\sigma_{49} \phi t} \right] \quad (22)$$

donde

$$Q = -(1 / \Lambda_{39} \sigma_{49} \phi) + (1 / (\Lambda_{39} - \lambda_{29}) (\sigma_{49} \phi - \lambda_{29}) - \\ - k / (\sigma_{49} \phi - \Lambda_{39})$$

La función ( 22 ) es una de las representadas en la Fig. 6, para los valores de la Tabla I.

A partir de la cadena de reacciones ( 18 ) pueden plantearse las ecuaciones:

$$dN_{27}/dt = N_{26} \phi \sigma_{26} - N_{27} ( \sigma_{27} \phi + \lambda_{27} ) \quad ( 23 )$$

$$dN_{37}/dt = N_{27} \lambda_{27} - N_{37} \phi \sigma_{37} \quad ( 24 )$$

donde:

$$N_{26} = N_{26}^0 e^{-\sigma_{26} \phi t} + \frac{\sigma_{25} N_{25}^0}{\sigma_{26} - \sigma_T} ( e^{-\sigma_T \phi t} - e^{-\sigma_{26} \phi t} ) \quad ( 25 )$$

De las ecuaciones anteriores se encuentra que:

$$\frac{N_{37}}{N_{25}^0} = A \cdot e^{-\sigma_T \phi t} + B \cdot e^{-\sigma_{26} \phi t} + C \cdot e^{-\lambda_{27} t} + D \cdot e^{-\sigma_{37} \phi t} \quad ( 26 )$$

donde

$$A = \lambda_{27} \sigma_{26} \sigma_{25} / (\sigma_T - \sigma_{26})(\lambda_{27} - \sigma_T \phi)(\sigma_T - \sigma_{37})$$

$$B = \lambda_{27} \sigma_{26} \left[ \frac{N_{26}^0}{N_{25}^0} + \frac{\sigma_{25}}{\sigma_T - \sigma_{26}} \right] / (\lambda_{27} - \sigma_{26} \phi)(\sigma_{37} - \sigma_{26})$$

$$C = \lambda_{27} \sigma_{26} \phi \left[ \frac{N_{26}^0}{N_{25}^0} - \frac{\sigma_{25} \phi}{\sigma_T \phi - \lambda_{27}} \right] / (\lambda_{27} - \sigma_{26} \phi)(\sigma_{37} \phi - \lambda_{27})$$

$$D = - ( A + B + C )$$

Se ha supuesto aquí que vale la condición:

$$N_{27} \text{ y } N_{37} = 0 \text{ para } t = 0.$$

La función ( 26 ) para los valores de la Tabla I, es una de las representadas en la Fig. 7.

La producción de  $^{239}\text{Pu}$  y  $^{237}\text{Np}$  depende fuertemente de las secciones eficaces efectivas  $\sigma_{28}$  y  $\sigma_{26}$  respectivamente. En ambos casos, debido a capturas resonantes, estas secciones efectivas en un reactor tipo MTR pueden ser mayores que las secciones térmicas ( 6 ).

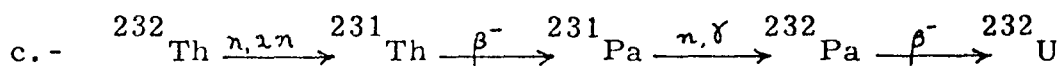
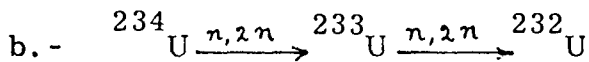
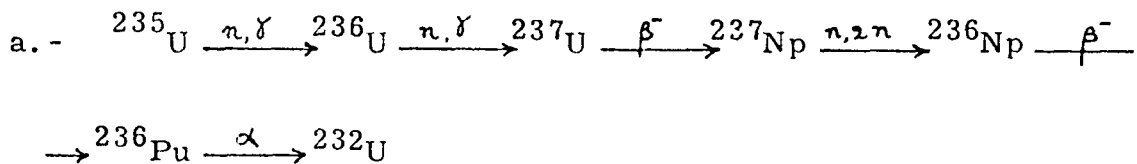
Las secciones efectivas elegidas aquí ( Apéndice IV ) son sólo aproximadas y para cálculos de producción más exactos deberán medirse previamente.

#### FORMACION DE $^{232}\text{U}$ y $^{233}\text{U}$

Si un combustible de alto enriquecimiento necesita pasar por una planta de difusión para volver a enriquecerse, deberá cumplir con las especificaciones fijadas. Entre las que ha establecido la USAEC para sus plantas, se limita el contenido en  $^{232}\text{U}$  y  $^{233}\text{U}$  en relación al  $^{235}\text{U}$  en 0,11 ppm y 500 ppm respectivamente ( 7 ).

Algunos reactores de potencia no cumplen con la restricción del  $^{232}\text{U}$  para quemados altos ( 8 ).

En el caso de combustible altamente enriquecido, el  $^{232}\text{U}$  puede producirse por los siguientes procesos :



Debido a estos procesos, para poder establecer hasta donde puede permitirse el quemado es necesario la medición del  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ , impurezas de torio y protactinio y  $^{232}\text{U}$  en el material original antes de

su irradiación. La contaminación de torio es importante en reactores de potencia : para un reactor BWR típico ( con uranio levemente enriquecido) los datos de Rider ( 8 ) indican que la cantidad de torio no debe pasar de 2 ppm en el material inicial para poder alcanzar un quemado de 15 GWd/T. Un método de medición de  $^{232}\text{U}$ , en material irradiado, ha sido descrito por Braun y Moy ( 9 ).

En la Fig. 8 se ha representado el crecimiento de  $^{232}\text{U}$  para los procesos a) y b) en función del quemado en un combustible con la composición indicada en la Tabla I , con un flujo de  $3 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ .

La Fig. 9 muestra la formación del  $^{232}\text{U}$  a partir de  $^{233}\text{U}$  y torio presentes originalmente en el combustible.

Para los cálculos se han utilizado las secciones eficaces disponibles en la literatura ( 4 ) ( 5 ) ( 6 ) ( 8 ) ( 10 ) ( 11 ) ( 12 ) ( 13 ) ( 14 ) que no corresponden exactamente a las secciones efectivas en un reactor como el RA-3 cuyo espectro de neutrones es relativamente duro, por lo cual la formación real de  $^{232}\text{U}$  puede ser apreciablemente mayor.

De estas figuras se deduce que para la composición inicial indicada y en ausencia de torio y  $^{233}\text{U}$  la cantidad de  $^{232}\text{U}$  producida, aún con altos quemados queda por debajo de la especificación de la USAEC.

Para quemados altos, 10 ppm de torio producen aproximadamente la misma cantidad de  $^{232}\text{U}$  que el proceso a) para esa composición inicial, mientras que la contribución de  $^{233}\text{U}$  es del mismo orden. La presencia de torio durante la irradiación aumentará por otra parte el contenido en  $^{233}\text{U}$  por captura directa. El hecho de estacionar elementos combustibles, antes o después de su irradiación, favorece la formación de  $^{232}\text{U}$  : antes de la irradiación por desintegración natural del  $^{235}\text{U}$  con formación de protactinio, el que forma parte del proceso c) , a razón de aproximadamente 1 ppb por año ; después de la irradiación por la desintegración de  $^{236}\text{Pu}$ , cuyo período es de sólo 2,85 años en  $^{232}\text{U}$ .

La formación de  $^{236}\text{Pu}$  se ha indicado en la Fig. 6 para la composición de la Tabla I . En esta figura se puede apreciar que la formación del  $^{236}\text{Pu}$  es el factor principal en la producción de  $^{232}\text{U}$ . Por año de enfriamiento aproximadamente el 22 % de  $^{236}\text{Pu}$  desintegra en  $^{232}\text{U}$ .

## RECICLAJE DEL COMBUSTIBLE

El reprocesamiento y reciclaje del combustible irradiado en el reactor sin una etapa previa de re-enriquecimiento favorece el incremento en  $^{232}\text{U}$ . Esto se debe principalmente al fuerte aumento que se produce en  $^{236}\text{U}$  ( Figs 2 y 4 ) el cual no es separable químicamente. En la Tabla II se han indicado las composiciones correspondientes al combustible original de la Tabla I con cuatro etapas de reciclaje, reprocesamientos intermedios y un consumo en  $^{235}\text{U}$  de 25 %.

En la Fig. 10 se han representado los valores generalizados de las relaciones entre  $^{236}\text{U}$  y  $^{235}\text{U}$  antes y después de un ciclo para diferentes valores de consumo.

El crecimiento de  $^{232}\text{U}$  que se produce al reciclar combustible, se ha calculado mediante la expresión indicada en el Apéndice III. La Fig. 11 representa los valores respectivos en función de las concentraciones iniciales  $R_6^0/5$  y el tiempo de irradiación.

## AUMENTO DE LA PRODUCCION DE NEPTUNIO POR RECICLAJE

La producción de neptunio depende principalmente del contenido en  $^{236}\text{U}$  inicialmente contenido en el combustible ( ecuación 26 ) por lo tanto reciclar el combustible con etapas intermedias de reprocesamiento tiene como consecuencia un aumento en la producción de neptunio en un reactor como el RA-3. La formación de  $^{237}\text{Np}$  durante los distintos ciclos con los supuestos anteriores esta representada en la Fig. 7.

# APENDICES

I. -

La ecuación ( 9 ) se obtiene de:

$$\begin{aligned}
 dN_5/dt &= - N_5 \phi \sigma_T \\
 dN_{26}/dt &= N_5 \phi \sigma_c \quad (\text{Aquí se desprecian capturas en } ^{236}\text{U}) \\
 dN_{26}/dN_5 &= - \sigma_c / \sigma_T = - \alpha / (1 + \alpha) \\
 \int_{N_{26}^0}^{N_{26}} dN_{26} &= - \frac{\alpha}{1 + \alpha} \int_{N_5^0}^{N_5} dN_5 \\
 N_{26} - N_{26}^0 &= - \alpha ( N_5^0 - N_5 ) / ( 1 + \alpha ) \quad ( 9 )
 \end{aligned}$$

De esta última expresión se obtiene la ecuación ( 10 )

$$\begin{aligned}
 \alpha N_5^0 + ( 1 + \alpha ) N_{26}^0 &= ( 1 + \alpha ) N_{26} + \alpha N_5 \\
 \frac{1}{N_5} \left[ \alpha N_5^0 + ( 1 + \alpha ) N_{26}^0 \right] &= ( 1 + \alpha ) R_{65} + \alpha \\
 N_5 &= \frac{\alpha N_5^0 + ( 1 + \alpha ) N_6^0}{\alpha + ( 1 + \alpha ) R_{65}} \\
 N_5^0 - N_5 &= \frac{N_5^0 \left[ \alpha + ( 1 + \alpha ) R_{65} \right] - \alpha N_5^0 - ( 1 + \alpha ) N_6^0}{\alpha + ( 1 + \alpha ) R_{65}} \\
 &= \frac{( N_5^0 R_{65} - N_{26}^0 ) ( 1 + \alpha )}{\alpha + ( 1 + \alpha ) R_{65}} \\
 ( N_5^0 - N_5 ) / N_5^0 &= \frac{( R_{65} - R_{65}^0 ) ( 1 + \alpha )}{\alpha + ( 1 + \alpha ) R_{65}} \quad ( 10 )
 \end{aligned}$$

II. -

De la ecuación ( 12 ) se obtiene:

$$\begin{aligned}
 (N_T^0 - N_T)(1 + \alpha) &= N_5^0 - N_5 \\
 (N_T^0 - N_T)(1 + \alpha - E_5) &= N_5^0 - N_T^0 E_5 - N_5 - N_T E_5 \\
 &= N_T^0 (E_5^0 - E_5) = N_5^0 (E_5^0 - E_5) / E_5^0
 \end{aligned}$$

$$(N_T^0 - N_T) / N_5^0 = (E_5^0 - E_5) / E_5^0 (1 + \alpha - E_5)$$

$$(N_5^0 - N_5) / N_5^0 = (E_5^0 - E_5)(1 + \alpha) / E_5^0 (1 + \alpha - E_5) \quad (13)$$

III. -

La formación de  $^{232}\text{U}$  por el proceso a) partiendo de  $^{235}\text{U}$ , puede expresarse mediante la ecuación general :

$$\begin{aligned}
 N_{22} / N_{25}^0 &= A \left[ C_0 \cdot e^{-\sigma_T \phi t} + C_1 \cdot e^{-\sigma_{26} \phi t} + C_2 \cdot e^{-\lambda_{27} t} + \right. \\
 &\quad \left. + C_3 \cdot e^{-\sigma_{37} \phi t} + C_4 \cdot e^{-\sigma_{36} t} + C_5 \cdot e^{-\lambda_{46} t} + \right. \\
 &\quad \left. + C_6 \cdot e^{-\lambda_{22} t} \right] + R_{6/5}^0 \cdot B \left[ C_0 \cdot e^{-\sigma_{26} \phi t} + C_1 \cdot e^{-\lambda_{27} t} \right. \\
 &\quad \left. + C_2 \cdot e^{-\sigma_{37} \phi t} + C_3 \cdot e^{-\lambda_{36} t} + C_4 \cdot e^{-\lambda_{46} t} + C_5 \cdot e^{-\lambda_{22} t} \right]
 \end{aligned}$$

Donde las constantes A, B y los valores de  $C_i$  y  $C_i$  se hallan de la manera indicada en la referencia ( 15 ).

IV. -

$$\sigma_{11} = 200 \text{ b}$$

$$\sigma_{22} = 155 \text{ b}$$

$$\sigma_{23} = 576 \text{ b}$$

$$\sigma_{\text{T}} = 687 \text{ b}$$

$$\sigma_{25} = 107 \text{ b}$$

$$\sigma_{26} = 30 \text{ b}$$

$$\sigma_{27} = 374 \text{ b}$$

$$\sigma_{28} = 9,8 \text{ b}$$

$$\sigma_{37} = 170 \text{ b}$$

$$\sigma_{39} = 60 \text{ b}$$

$$\sigma_{46} = 170 \text{ b}$$

$$\sigma_{49} = 1000 \text{ b}$$

$$\sigma_{02}^{2n} = 16 \text{ mb}$$

$$\sigma_{23}^{2n} = 0,33 \text{ mb}$$

$$\sigma_{24}^{2n} = 7,2 \text{ mb}$$

$$\sigma_{37}^{2n} = 1,3 \text{ mb}$$

$$T_{22} = 71,7 \text{ a}$$

$$T_{27} = 6,75 \text{ d}$$

$$T_{29} = 23,5 \text{ m}$$

$$T_{36} = 22 \text{ h}$$

$$T_{39} = 2,35 \text{ d}$$

$$T_{46} = 2,85 \text{ a}$$

TABLA I (1)

Composición isotópica original del uranio utilizado para una parte de la primera carga del RA-3

|                  |         |
|------------------|---------|
| $^{234}\text{U}$ | 0,84 %  |
| $^{235}\text{U}$ | 89,91 % |
| $^{236}\text{U}$ | 0,29 %  |
| $^{238}\text{U}$ | 8,96 %  |

TABLA II

Composiciones de uranio enriquecido al fin de 4 etapas con un consumo de 25 % en  $^{235}\text{U}$  por etapa.

| Original                 | Ciclos |       |       |       |
|--------------------------|--------|-------|-------|-------|
|                          | 1º     | 2º    | 3º    | 4º    |
| $^{234}\text{U}$ % 0,84  | 1,03   | 1,26  | 1,50  | 1,75  |
| $^{235}\text{U}$ % 89,91 | 83,22  | 75,70 | 67,57 | 59,10 |
| $^{236}\text{U}$ % 0,29  | 4,69   | 9,63  | 14,97 | 20,54 |
| $^{238}\text{U}$ % 8,96  | 11,06  | 13,41 | 15,96 | 18,61 |
| Peso Total g 100         | 81,03  | 66,81 | 56,14 | 48,13 |

## BIBLIOGRAFIA

1. - Rapoport H. "Contaminación superficial de los elementos combustibles del RAEP " Programa de reactores CNEA , 1966
2. -Flegenhimer J. "Quemados bajos de combustibles con uranio en reactores térmicos" CNEA/EN - 20/53 (1971)
3. - Tingey F.H. , Hansen L.B. IDO- 16925, Apéndice A, p. 160 (1963)
4. - Rider B.F. et al GEAP- 4893, p. 9 (1965)
5. - Bokelund H. ETR-265 (1970)
6. - Seelmann-Eggebert W. et al Chart of the Nuclides, 3a edición (1968)
7. - Federal Register p. 14821, nov. 30, (1965)
8. - Rider B.F. et al GEAP-5060 (1965)
9. - Braun H. y Moy T. KFK-1128 (1970)
10. - Arnold E.D. Transactions ANS 9 , 294 (1966)
11. - Pearlstein S. BNL-897, p. 22 (1964)
12. - Rein J. E. y Metz C. F. Analytical Chemistry of Nuclear Fuels, IAEA p. 145 (1972)
13. - Pearlstein S. BNL- 982 ( 1966 )
14. - Nodvik R.J., WCAP- 6086 ( 1969)
15. - Seelmann-Eggebert W. et al.KFK- 117 (1962)

## AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen al Sr K. Toth la colaboración brindada en este trabajo. -

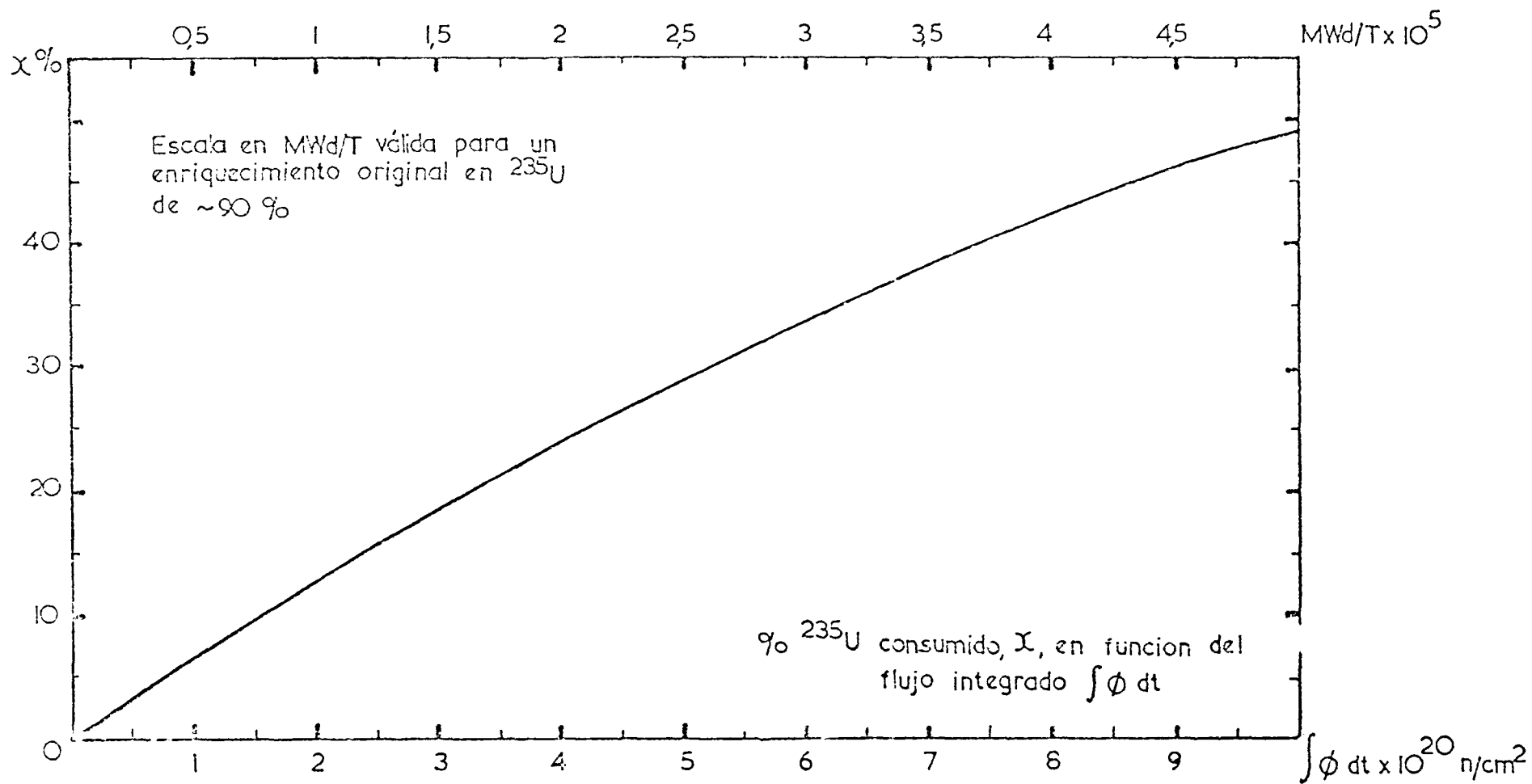


Figura 1 Consumo de  $^{235}\text{U}$  en función del flujo integrado y del quemado en MWd/T.

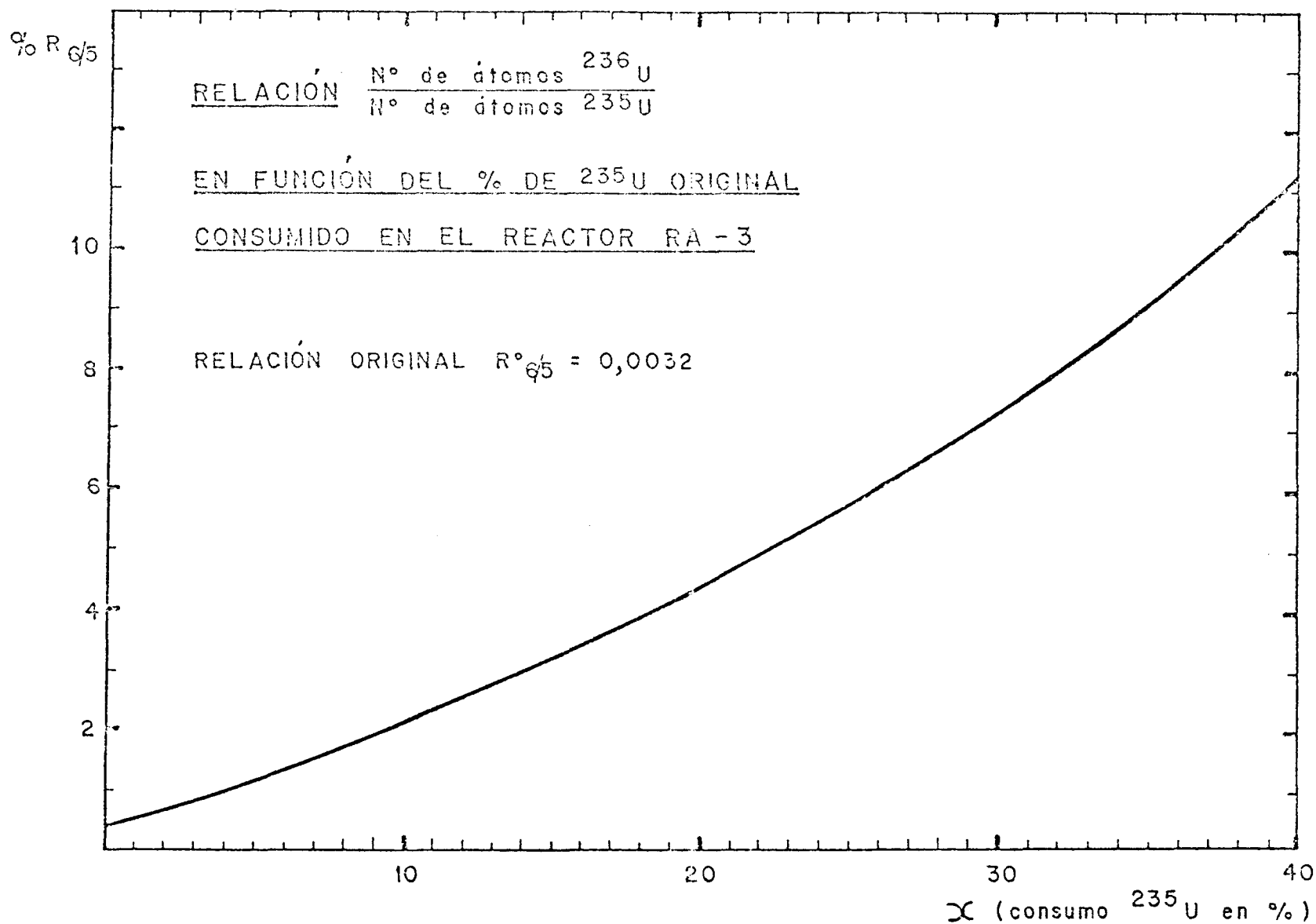


Figura 2  $R_{6/5}$  en función del consumo.

$E_5 (\%)$

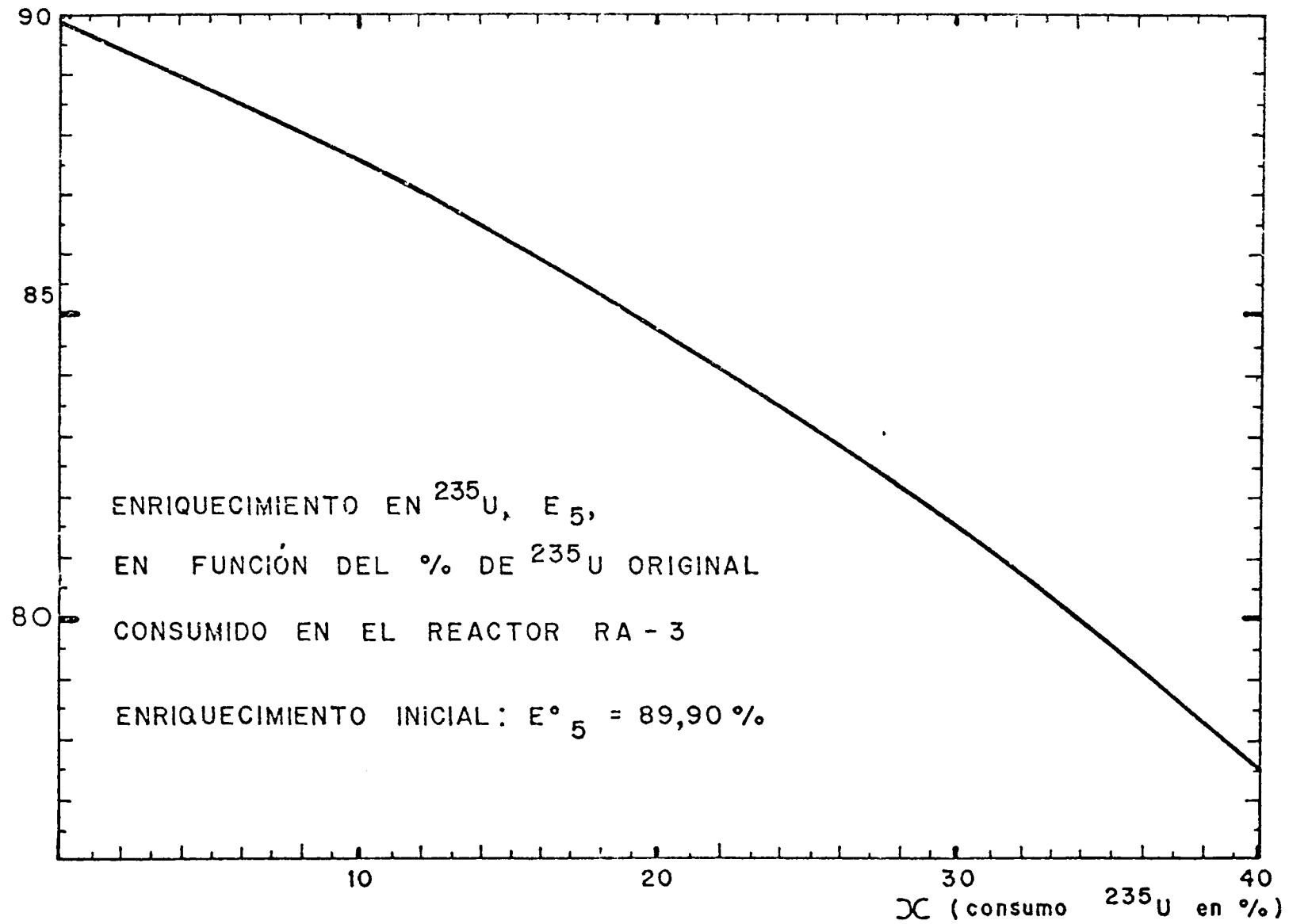


Figura 3  $E_5$  en función del consumo.

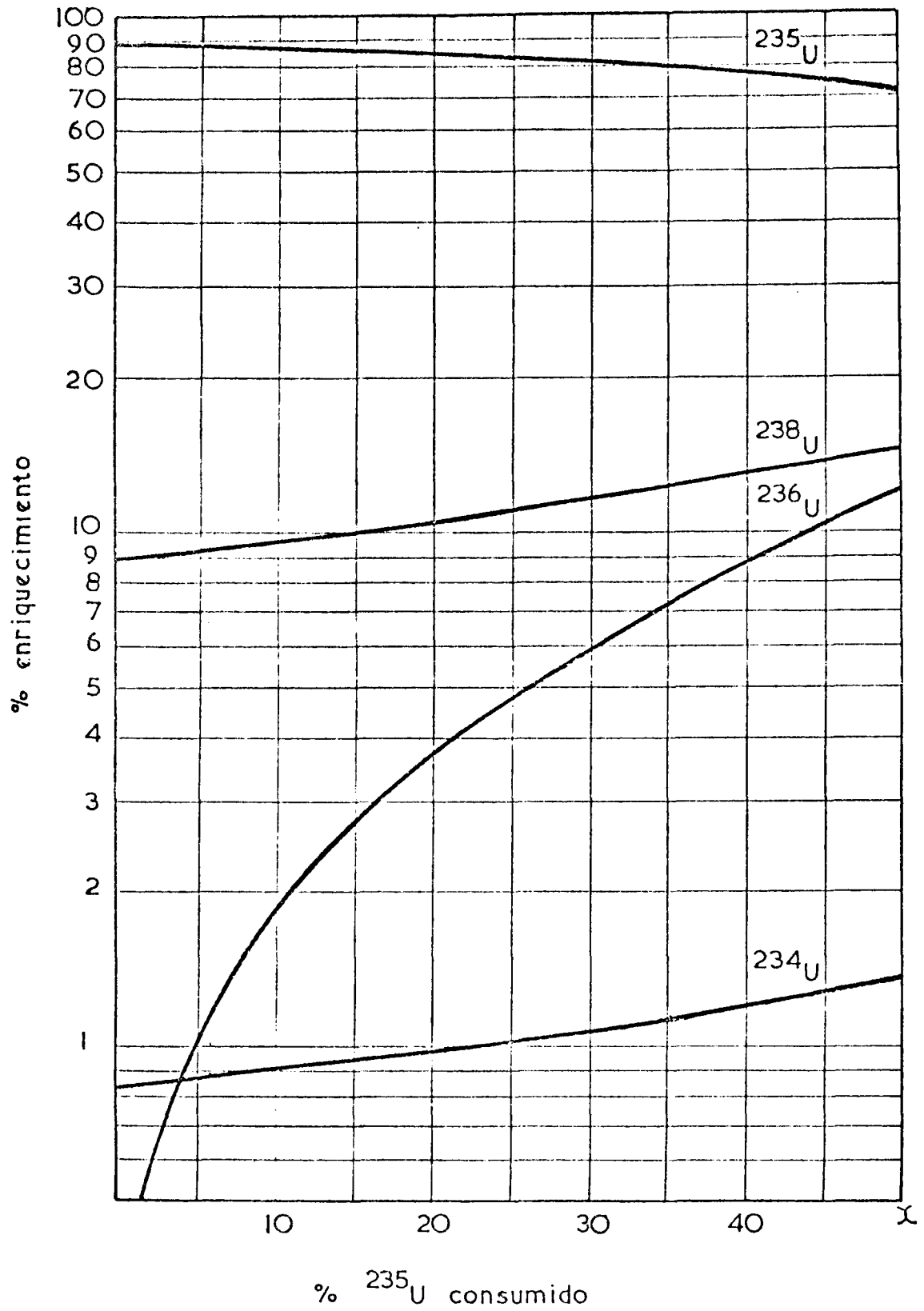


Figura 4 Enriquecimiento de isótopos de uranio en función del consumo. (La composición original es la de la Tabla I.)

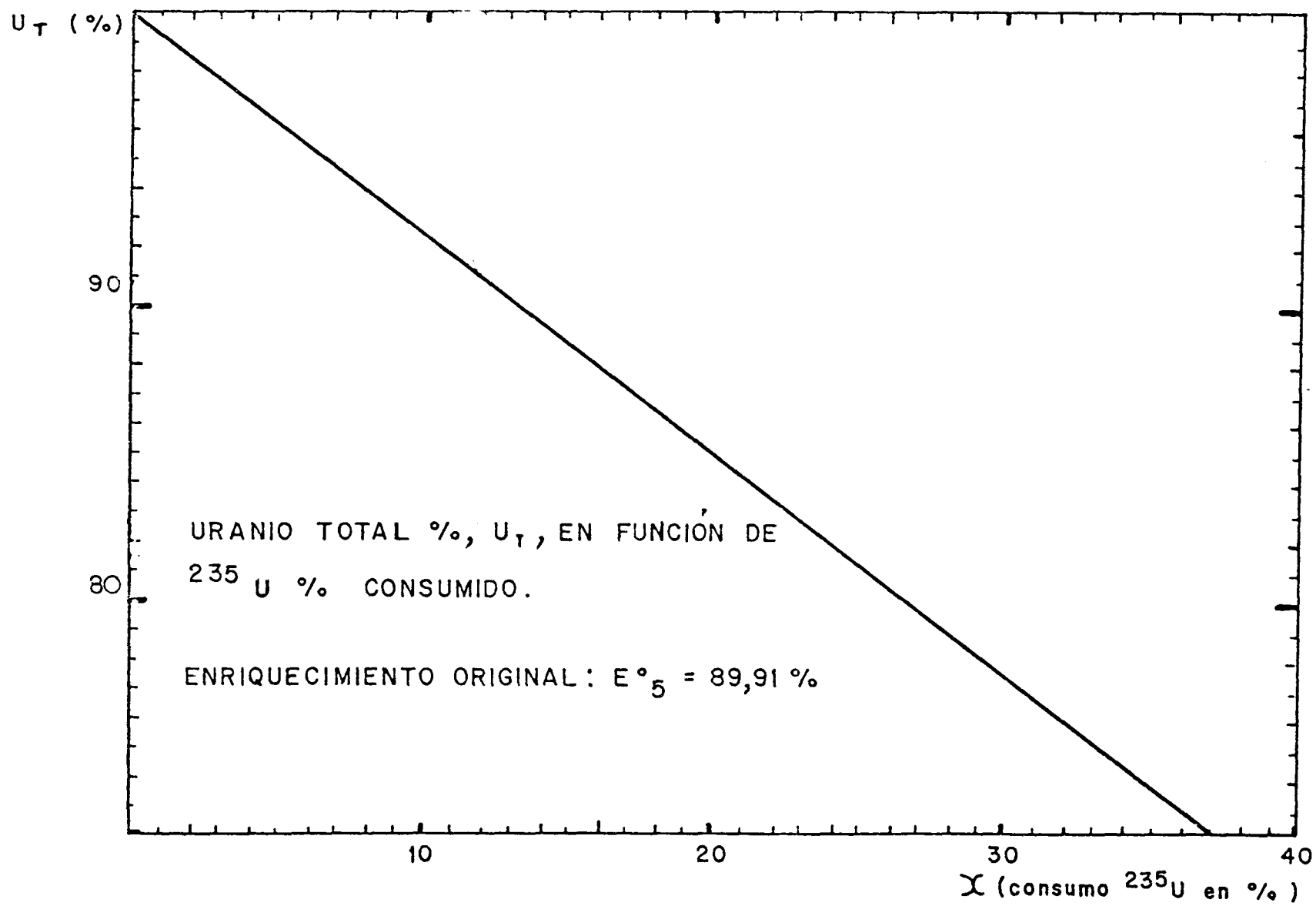


Figura 5 Cantidad de uranio total en función del consumo.

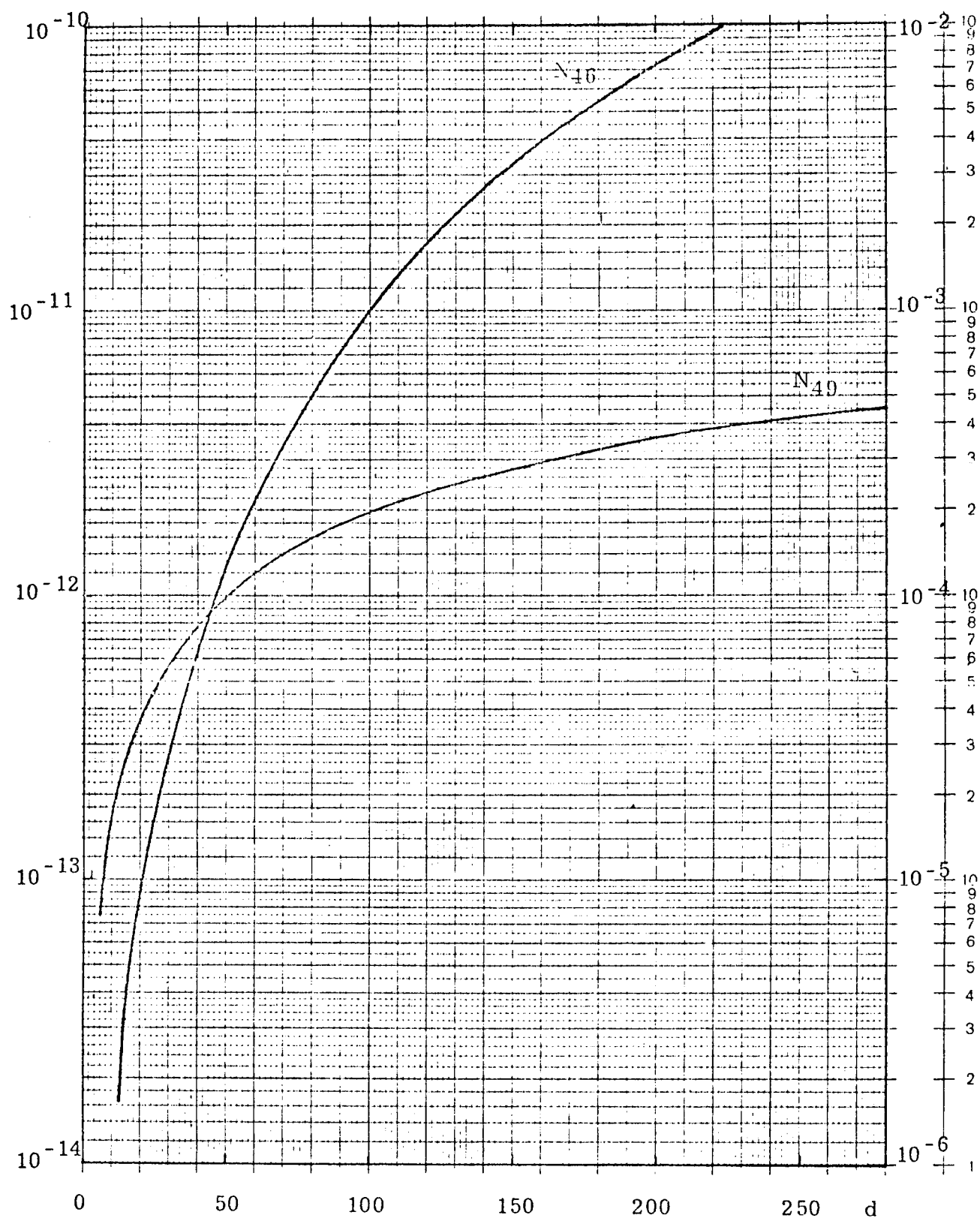
$N_{46}/N_T^0$  $N_{49}/N_T^0$ 

Figura 6 Formación de  $^{239}\text{Pu}$  y  $^{236}\text{Pu}$  en función del tiempo de irradiación.

$$N_{37} / N_{25}^0$$

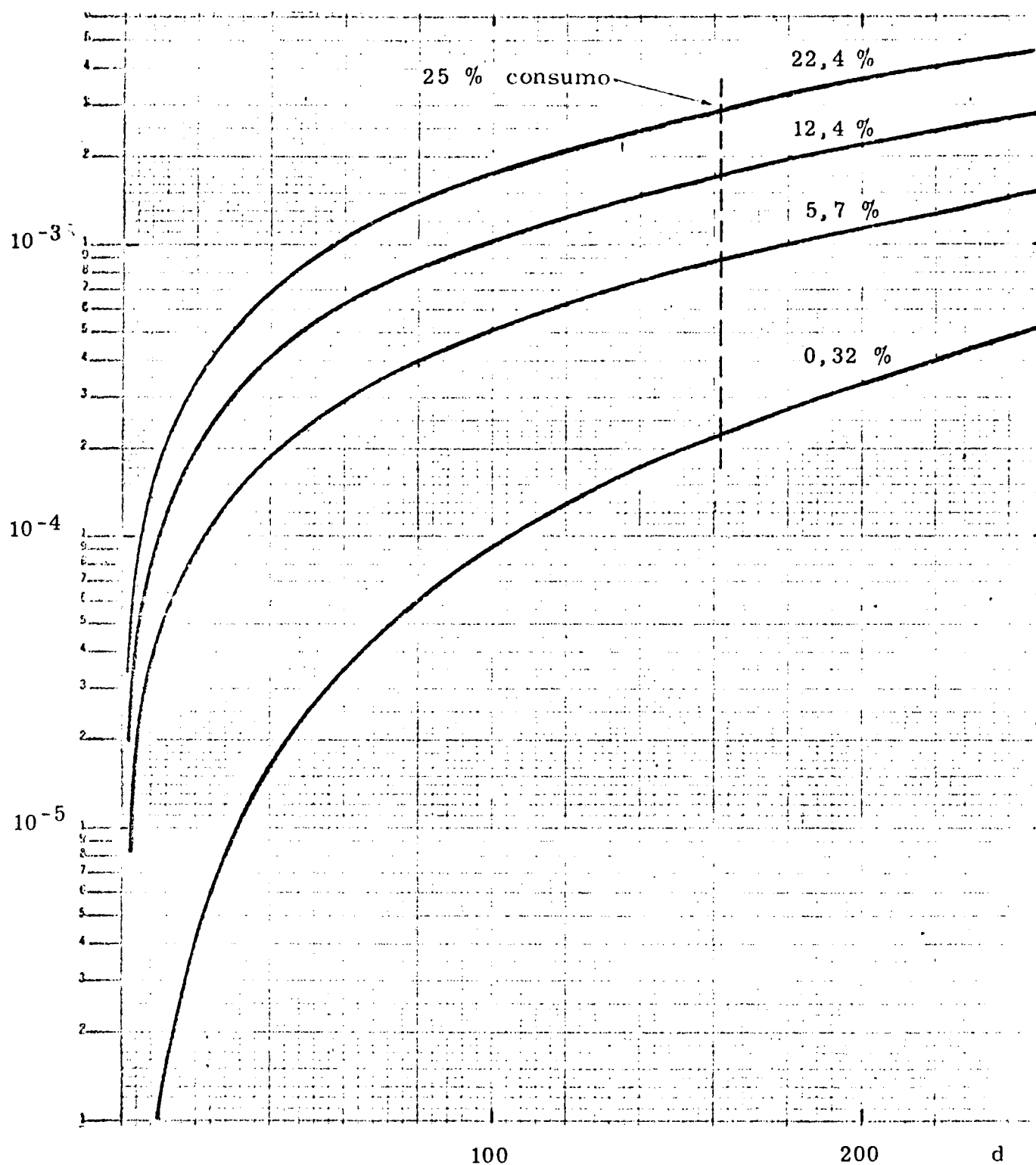


Figura 7 Formación de Neptunio - 237 a partir de combustibles con distintas relaciones iniciales  $R_{6/5}^0$ .

$$N_{22} / N_T^0$$

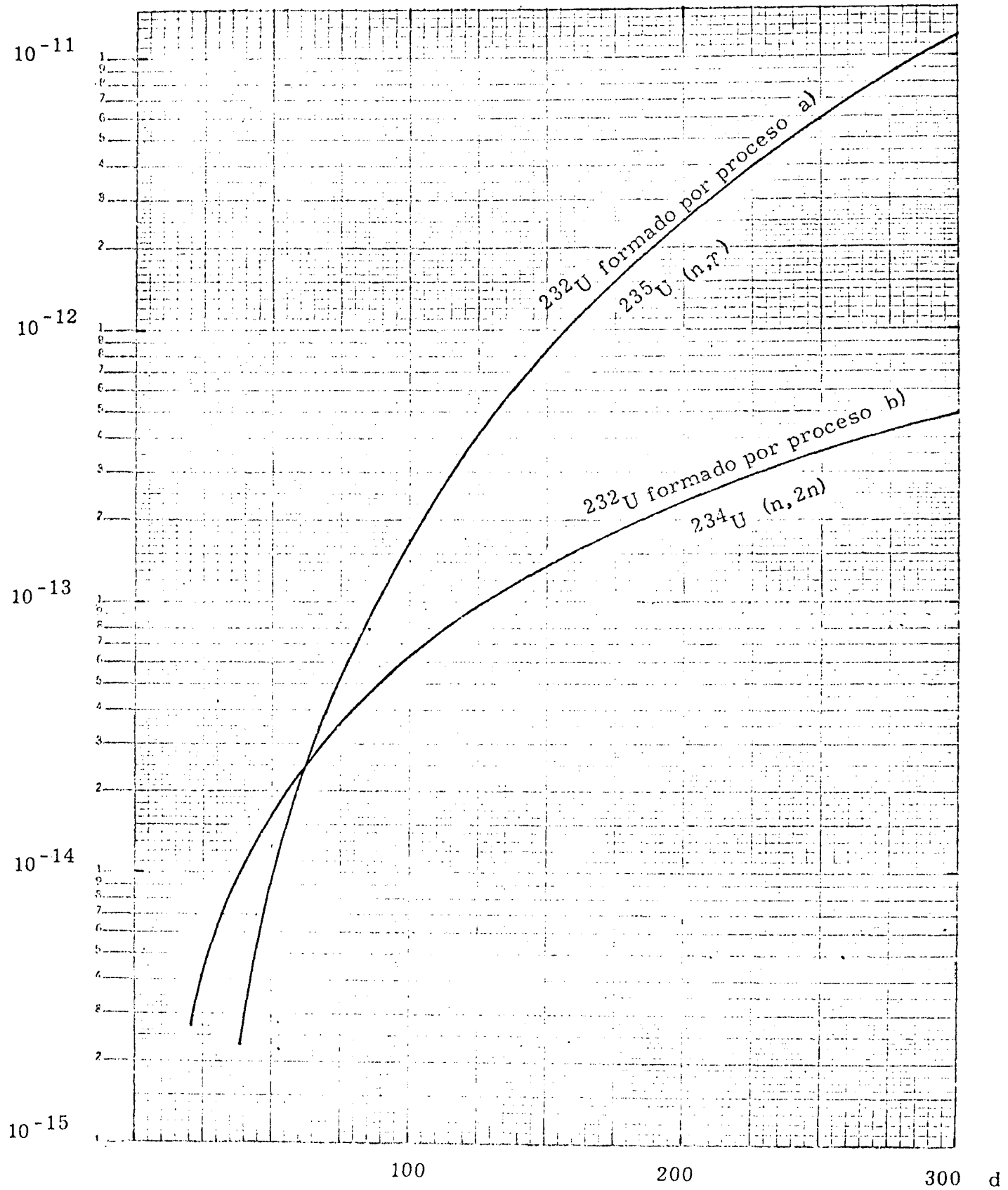


Figura 8 Formación de  $^{232}\text{U}$  en función del tiempo de irradiación por procesos a) y b).

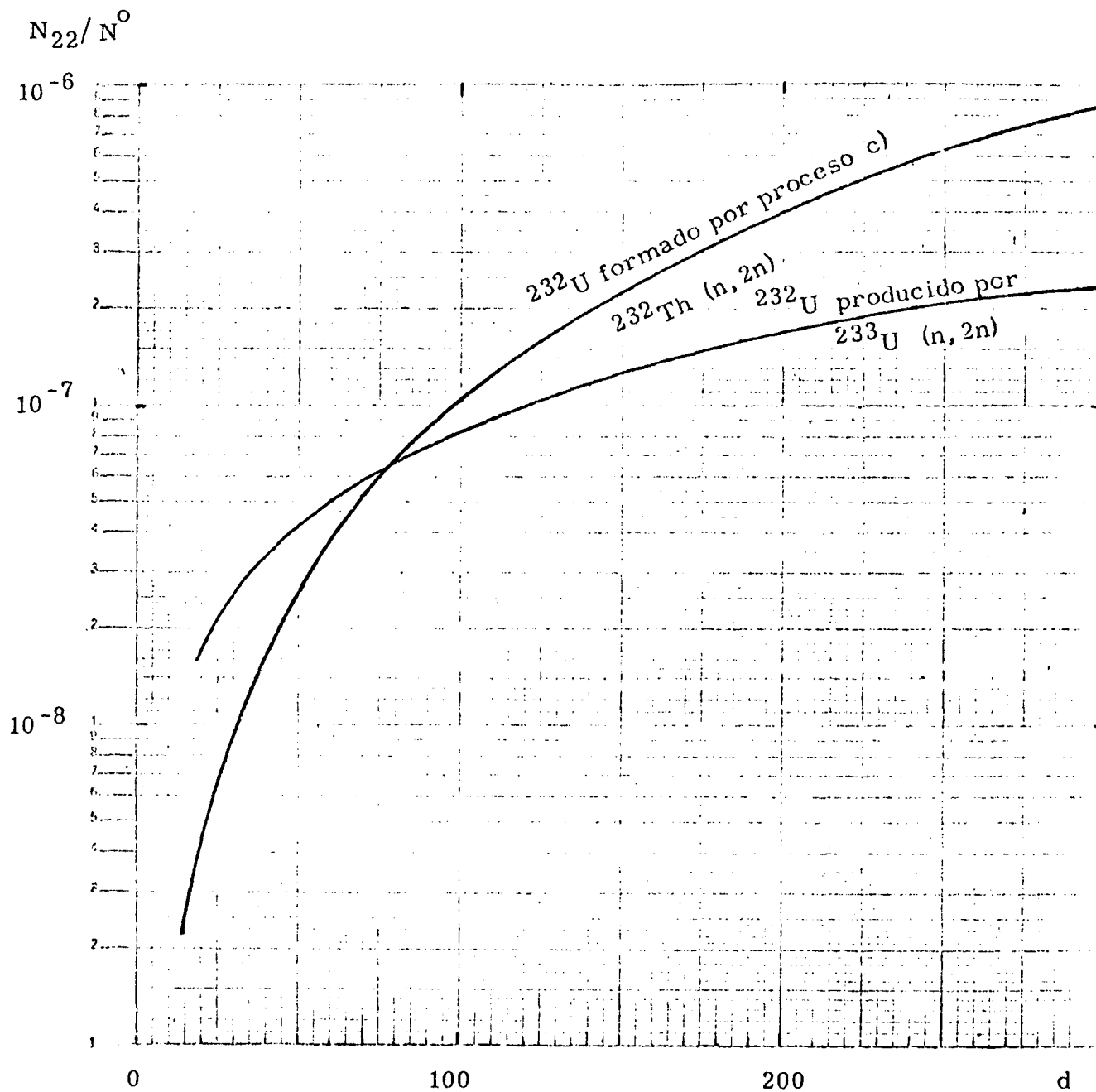


Figura 9 Formación de  $^{232}\text{U}$  en función del tiempo de irradiación por proceso c) (Th) y a partir de  $^{233}\text{U}$ .

$N^0$  representa la cantidad inicial de Th o de  $^{233}\text{U}$ .

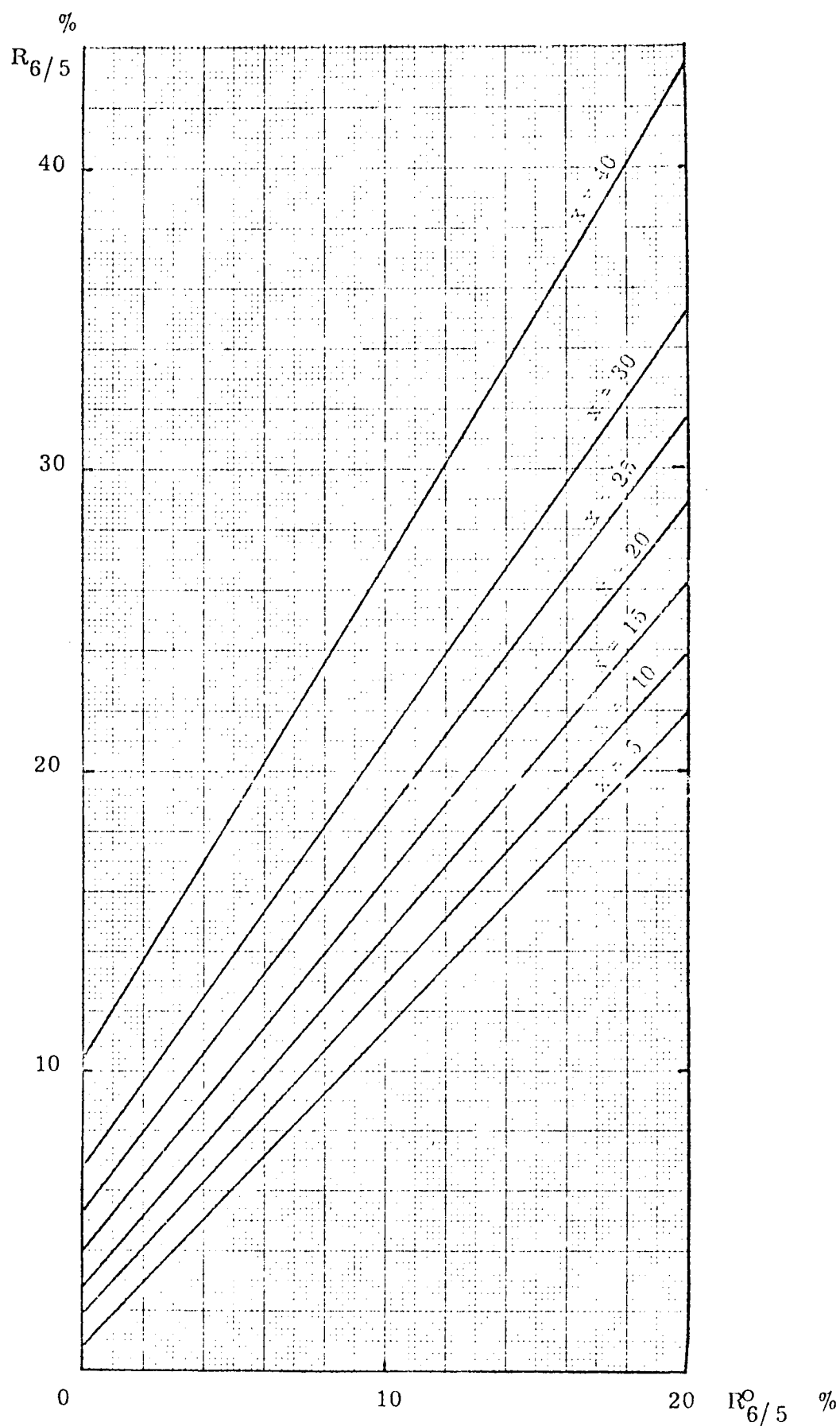


Figura 10 Relación entre  $R_{6/5}$  y  $R_{6/5}^o$  en un ciclo de irradiación para diferentes valores de consumo en  $^{235}\text{U}$ .

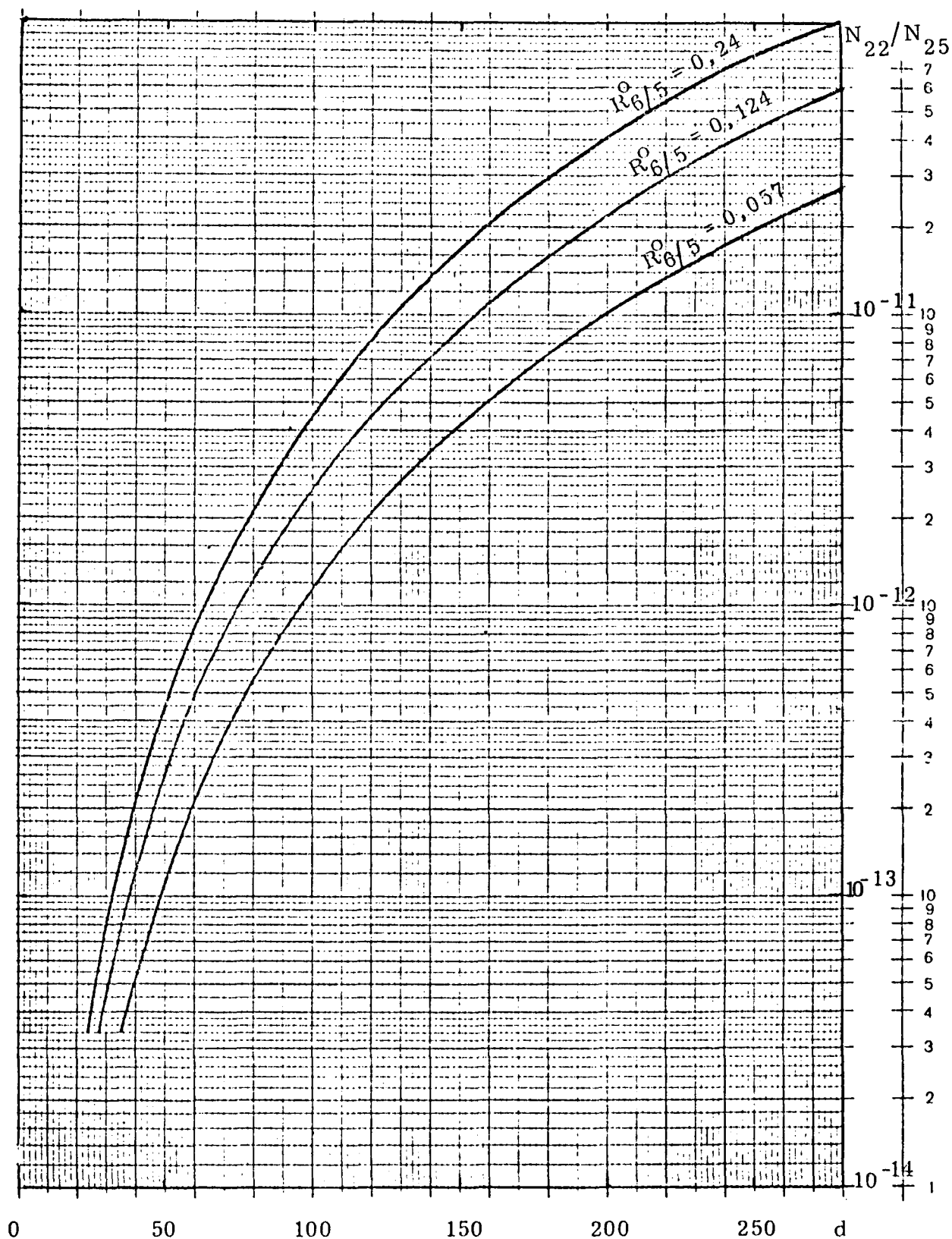


Figura 11 Formación de  $^{232}\text{U}$  por el proceso a) en distintos ciclos usando el mismo combustible con un consumo de 25 % en  $^{235}\text{U}$  por ciclo.