



UNIVERSITAT POLITÈCNICA DE CATALUNYA  
BARCELONATECH  
Escola d'Enginyeria de Barcelona Est

TRABAJO FINAL DE GRADO

**Grado en Ingeniería Química**

**ESTUDIO DE LA LOCALIZACIÓN DE RADIONUCLEIDOS EN  
PASTILLAS DE COMBUSTIBLE NUCLEAR GASTADO Y SU  
LIBERACIÓN A LAS AGUAS SUBTERRÁNEAS DE UN  
ALMACENAMIENTO GEOLÓGICO PROFUNDO (AGP)**



**Memoria y Anexos**

**Autor:** Davit Hakobyan Ghazaryan  
**Director:** Francisco Javier Giménez  
**Codirector:** Joan De Pablo Ribas  
**Convocatòria:** Octubre 2022



## Resum

Actualment hi ha una gran demanda energètica, per això la quantitat de residus radioactius produïts augmenta considerablement cada vegada, principalment a causa de la utilització creixent de les centrals nuclears en la generació d'energia elèctrica. Per això és molt important una gestió correcta dels combustibles nuclears gastats (CNG). Avui dia, una de les solucions per a la correcta gestió dels CNG que més viabilitat presenta són els emmagatzematges en formacions geològiques profundes (AGP). Els AGP serien una solució definitiva per als residus nuclears, que consisteixen a isolar i confinar el CNG a formacions geològiques profundes basades en un sistema multibarrera que tenen com a objectiu assegurar que el temps de trànsit fins a l'arribada a la biosfera de qualsevol radionúclid emmagatzemat que pogués alliberar-se sigui prou llarg per a evitar un gran impacte en l'home i el medi ambient. Un dels problemes que més suscita és que la barrera pugui fallar i hi hagi filtracions d'aigües subterrànies i alhora alliberament de radionúclids continguts (RN) en aquest. Per això, per a poder garantir la seguretat cal desenvolupar models que puguin predir el comportament del CNG en contacte amb aigües subterrànies a llarg termini, així com la migració de RN al medi ambient. Aquest treball se concentra en l'estudi i la localització DE RADIONUCLEÏTS A PASTILLES DE COMBUSTIBLE NUCLEAR GASTAT I EL SEU ALLIBERAMENT A LES AIGÜES SUBTERRÀNIES D'UN EMMAGATZEMATGE GEOLÒGIC PROFUND. Es va fer l'estudi de l'alliberament de nou elements (U, Pu, Nd, Cs, Sr, Mo, Tc, Ru i Rh) en diferents tipus de combustibles i mostres. Els valors experimentals són obtinguts d'altres estudis i ens han permès de dur a terme els ajustaments mitjançant un model matemàtic de caràcter semi-empíric anomenat SERNIM que és obtingut a (1). S'han estudiat 6 mostres amb graus de cremat (GC): 42 GWd/tU, 54 GWd/tU i 60 GWd/tU, tipus de combustible (BWR i PWR), totes les mostres són pastilles, per a cada GQ hi ha dues mostres, MID i el FULL, aquestes mostres corresponen a diferents zones de la pastilla i Bicarbonat (BIC) com a lixiviant. Els resultats per al Cs i el Sr són els esperats per a tots els casos estudiats. Per al Ru i el Rh també s'obtenen els resultats esperats, perquè la seva solubilitat no és regida per la matriu del combustible. Amb el Pu s'esperava un millor ajustament i es va observar que en la major part de casos l'ajust era per sobre dels valors experimentals, però malgrat això la evolució del Pu és congruent amb el SERNIM. Finalment, tenim el Nd el Mo i el Tc. S'observa que els 3 RN són congruents amb l'urani per a valors alts de GQ sobretot per a les mostres d'un GQ 60GWd/tU.

## Resumen

Actualmente existe una gran demanda energética, por eso cada vez la cantidad de residuos radiactivos producidos ha aumentado considerablemente debido, principalmente, a la utilización creciente de las centrales nucleares en la generación de energía eléctrica. Por eso, es muy importante una correcta gestión de los combustibles nucleares gastados (CNG). Hoy en día, una de las soluciones para la correcta gestión de los CNG que mayor viabilidad presenta son los almacenamientos en formaciones geológicas profundas (AGP). Los AGP serían una solución definitiva para los residuos nucleares, que consisten en aislar y confinar el CNG a formaciones geológicas profundas basadas en un sistema multibarrera cuyo objetivo es asegurar que el tiempo de tráfico hasta la llegada a la biosfera de cualquier radionucleido almacenado que pudiera liberarse sea lo suficientemente largo para evitar un gran impacto en el hombre y el medio ambiente. Uno de los problemas que más suscita es que la barrera pueda fallar y existan filtraciones de aguas subterráneas y al mismo tiempo la liberación de los radionucleidos contenidos (RN) en el mismo. Por eso, para poder garantizar la seguridad es necesario desarrollar modelos que puedan predecir el comportamiento del CNG en contacto con aguas subterráneas a largo plazo, así como la migración de RN al medio ambiente. Este trabajo se centra en el estudio y la localización DE RADIONUCLEIDOS EN PASTILLAS DE COMBUSTIBLE NUCLEAR GASTADO Y SU LIBERACIÓN EN LAS AGUAS SUBTERRÁNEAS DE UN ALMACENAMIENTO GEOLÓGICO PROFUNDO. Se realizó el estudio de la liberación de nueve elementos (U, Pu, Nd, Cs, Sr, Mo, Tc, Ru y Rh) en diferentes tipos de combustibles y muestras. Los valores experimentales se obtienen de otros estudios y nos han permitido llevar a cabo los ajustes mediante un modelo matemático de carácter semi-empírico llamado SERNIM que se obtiene en (1). Se han estudiado 6 muestras con grados de quemado (GQ): 42 GWd/tU, 54 GWd/tU y 60 GWd/tU, tipos de combustible (BWR y PWR), todas las muestras son pastillas, para cada GQ hay dos muestras, MID y FULL, estas muestras corresponden a diferentes zonas de la pastilla y Bicarbonato (BIC) como lixivante. Los resultados para Cs y Sr son los esperados para todos los casos estudiados. Para Ru y Rh también se obtienen los resultados esperados, ya que su solubilidad no está regida por la matriz del combustible. Con el Pu se esperaba un mejor ajuste y se observó que en la mayoría de los casos el ajuste estaba por encima de los valores experimentales, pero aun así la evolución del Pu es congruente con el SERNIM. Por último, tenemos el Nd el Mo y el Tc. Se observa que los 3 RN son congruentes con el uranio para valores altos de GQ sobre todo para las muestras de un GQ 60GWd/tU.

## **Abstract**

There is currently a great energy demand, which is why the amount of radioactive waste produced has increased considerably, mainly due to the growing use of nuclear power plants in the generation of electrical energy. That is why proper management of spent nuclear fuels (SNF) is very important. Today, one of the most viable solutions for the correct management of SNF is storage in deep geological formations (DGF), DGF would be a definitive solution for nuclear waste, which consists of isolating and confining the SNF to deep geological formations based on a multi-barrier system whose objective is to ensure that the traffic time until the arrival in the biosphere of any stored radionuclide that could be released is long enough to avoid a major impact on man and the environment. One of the problems that most arises are the fact that the barrier can fail and that there could be leaks of groundwater and at the same time release of radionuclides (RN) contained in it. Therefore, to guarantee safety, it is necessary to develop models that can predict the long-term behavior of SNF in contact with groundwater, as well as the migration of NR into the environment. This work focuses on the study and location of RADIONUCLIDES IN SPENT NUCLEAR FUEL PILLS AND THEIR RELEASE IN GROUNDWATER FROM DEEP GEOLOGICAL STORAGE. The study of the release of nine elements (U, Pu, Nd, Cs, Sr, Mo, Tc, Ru and Rh) in different types of fuels and samples was carried out. The experimental values are obtained from other studies and have allowed us to carry out the adjustments using a semi-empirical mathematical model called SERNIM, which is obtained in (1). 6 samples have been studied with burn-up degrees (GC): 42 GWd/tU, 54 GWd/tU and 60 GWd/tU), types of fuel (BWR and PWR), all samples being pellets, two samples for each GQ, MID and FULL, these samples corresponding to different areas of the tablet, and bicarbonate (BIC) as lixiviant. The results for Cs and Sr are as expected for all the cases studied. For Ru and Rh the expected results are also obtained since their solubility is not governed by the fuel matrix. A better fit was expected for Pu, and it was observed that in most cases the fit was above the experimental values, but even so, the evolution of Pu is consistent with SERNIM. Finally, with the Nd, the Mo, and the Tc, it is observed that the 3 RN are congruent with the uranium for high BU values, especially for the samples of a BU 60GWd/tU.

## Agradecimiento

Ante todo, me gustaría agradecer a mis dos tutores Francisco Javier Giménez y Joan De Pablo Ribas por haberme dado la oportunidad de realizar este trabajo, por haberme ayudado en lo que hacía falta. He aprendido mucho durante estos meses sobre un tema tan complejo y fascinante como es la energía nuclear y espero seguir aprendiendo más a lo largo de mi vida.

También me gustaría agradecer a mis familiares, sobre todo a mis padres por haberme dado las facilidades de estar hoy aquí por haber luchado por mí y brindarme esta maravillosa oportunidad.

A mis amigos que me han dado apoyo y a mi pareja por creer en mí y darme apoyo cada día que pasaba horas y horas delante del ordenador realizando el trabajo.



## Glosario

**AGP:** Almacenamiento geológico profundo

**ATC:** Almacén Temporal Centralizado

**ATI:** Almacén Temporal individualizados

**BU:** Burn up

**BWR:** Bowlling water reactor

**CN:** Combustible nuclear

**CNG:** Combustible nuclear gastado

**DGF:** Deep geological formations

**DIW:** Agua desionizada, (Deionised Water)

**GB:** Grain boundaries

**GQ:** Grado de quemado

**IRF:** Fracción de liberación instantánea

**LWR:** Light water reactor

**PF:** Productos de fisión

**PWR:** Power water reactor

**RN:** Radio nucleidos

**RRF:** Rapid release fraction

**SERNIM:** Modelo de identificación y cuantificación de radionúclidos segregados

**SGW:** Agua granítica sintética (Synthetic Granite Water)

**SNF:** Spent nuclear fuels

**UTS:** Unidades de trabajo de separación





## Lista de Ilustraciones

<b>ILUSTRACIÓN 1.1:</b> CONSUMO Y SUBMINISTRO ENERGÉTICO EN ESPAÑA EN EL AÑO 2020. <b>FUENTE:</b> HTTPS://WWW.INE.ES .....	2
<b>ILUSTRACIÓN 2.1:</b> REACTORES EN EUROPA, DATOS A 31 DE DICIEMBRE DE 2020. <b>FUENTE:</b> PRIS-OIEA Y FORO NUCLEAR .....	3
<b>ILUSTRACIÓN 2.2:</b> CENTRALES NUCLEARES EN ESPAÑA. <b>FUENTE:</b> (2). .....	4
<b>ILUSTRACIÓN 2.3:</b> UBICACIÓN DE LAS RESERVAS DE URANIO METÁLICO POR EL MUNDO. <b>FUENTE:</b> (12). .....	5
<b>ILUSTRACIÓN 2.4:</b> ESQUEMA DE LOS CICLOS DEL COMBUSTIBLE NUCLEAR (ABIERTO Y CERRADO). <b>FUENTE:</b> (13) .....	6
<b>ILUSTRACIÓN 2.5:</b> PROCESO DE ENRIQUECIMIENTO DEL 1235U. <b>FUENTE:</b> (15). .....	7
<b>ILUSTRACIÓN 2.6:</b> COMPOSICIÓN DEL CN. <b>FUENTE:</b> (12). .....	8
<b>ILUSTRACIÓN 2.7:</b> REPRESENTACIÓN PROCESO PRE-REACTOR. <b>FUENTE:</b> (14). .....	8
<b>ILUSTRACIÓN 2.8:</b> REPRESENTACIÓN DE UN REACTOR NUCLEAR Y SUS PARTES PRINCIPALES. <b>FUENTE:</b> (3) .....	9
<b>ILUSTRACIÓN 2.9:</b> CICLO ABIERTO. <b>FUENTE:</b> (3) .....	10
<b>ILUSTRACIÓN 2.10:</b> CICLO CERRADO. <b>FUENTE:</b> (3) .....	11
<b>ILUSTRACIÓN 2.11:</b> REPRESENTACIÓN ESQUEMÁTICA DEL CONCEPTO MULTIBARRERA EN UN AGP. <b>FUENTE:</b> FIGURA A: (17); FIGURA B: (19) .....	12
<b>ILUSTRACIÓN 2.12:</b> EVOLUCIÓN DE LAS TASAS DE DOSIS A, B Y EN LA CAPA DE AGUA EN CONTACTO CON CNG CANADIENSE CON ALTO QUEMADO. <b>FUENTE:</b> (24). .....	14
<b>ILUSTRACIÓN 2.13:</b> EXPOSICIÓN AL URANIO. <b>FUENTE:</b> (14). .....	14
<b>ILUSTRACIÓN 2.14:</b> DISTRIBUCIÓN DE LOS RN POR EL CNG. <b>FUENTE:</b> (25) .....	15
<b>ILUSTRACIÓN 3.1:</b> GRÁFICO ESQUEMÁTICO DE LOS PRINCIPALES PROCESOS INVOLUCRADOS EN LA DISOLUCIÓN OXIDATIVA DEL COMBUSTIBLE. <b>FUENTE:</b> (29). .....	16
<b>ILUSTRACIÓN 3.2:</b> ESQUEMA DE LAS REACCIONES PRIMARIAS DE LA RADIOLISIS DEL AGUA PURA POR EL CUAL SE GENERAN, EN UN TIEMPO APROXIMADO DE 10 – 7seg, ESPECIES OXIDANTES Y REDUCTORAS MUY REACTIVAS. <b>FUENTE:</b> (17) .....	17
<b>ILUSTRACIÓN 3.3:</b> DIFERENTES ZONAS DE CORTE. <b>FUENTE:</b> (31) .....	20
<b>ILUSTRACIÓN 3.4:</b> SEGMENTOS REVESTIDOS UTILIZADOS EN LOS EXPERIMENTOS 42MID. <b>FUENTE:</b> (31).....	20
<b>ILUSTRACIÓN 3.5:</b> SECCIÓN DE CORTE LONGITUDINAL PARA DETERMINAR LOS LÍMITES DE LOS GRÁNULOS EN EL COMBUSTIBLE 54BWR Y 42BWR. <b>FUENTE:</b> (31) .....	21
<b>ILUSTRACIÓN 3.6:</b> COMBUSTIBLE MOX. DETALLE DE AGLOMERADOS DE U-PU EN UNA MATRIZ DE UO. <b>FUENTE:</b> (33) .....	26
<b>ILUSTRACIÓN 3.7:</b> VARIACIÓN DE LA CONCENTRACIÓN DE LOS ELEMENTOS MINORITARIOS DEL SIMFUEL EN AGUA GRANITO BENTONÍTICA Y CONDICIONES OXIDANTES. <b>FUENTE:</b> XXXX.....	33
<b>ILUSTRACIÓN 3.8:</b> SECCIÓN TRANSVERSAL DEL CNG DE GQ 54 GWD/TU, UTILIZADA EN EL EXPERIMENTO DE LIXIVIACIÓN. <b>FUENTE:</b> (31) .....	36
<b>ILUSTRACIÓN 3.9:</b> A: CONCENTRACIÓN DE PLUTONIO EXPERIMENTAL (PROCEDENTE DE COMBUSTIBLES UO2YMOXA 0/M DIFERENTES) Y TEÓRICA EN DIW. B: CONCENTRACIÓN DE PLUTONIO EXPERIMENTAL (COMBUSTIBLE UO2) Y TEÓRICA EN SGW. <b>FUENTE:</b> (33). .....	41

**ILUSTRACIÓN 3.10:** CONCENTRACIÓN DE ESTRONCIO EXPERIMENTAL (PROCEDENTE DE COMBUSTIBLES UO<sub>2</sub>YMOXA<sub>0</sub>/M DIFERENTES) Y SOLUBILIDAD CALCULADA PARA ESTRONCIANITA EN DIW. **FUENTE:** (33).52

## Lista de Gráficas

<b>GRÁFICA 3.1:</b> REPRESENTACIÓN DE TODOS LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL U PARA TODOS LOS GQ, ASÍ COMO MID Y FULL .....	25
<b>GRÁFICA 3.2:</b> REPRESENTACIÓN DE TODOS LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL PU PARA TODOS LOS GQ, ASÍ COMO MID Y FULL .....	27
<b>GRÁFICA 3.4:</b> REPRESENTACIÓN DE TODOS LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL CS PARA TODOS LOS GQ, ASÍ COMO MID Y FULL .....	29
<b>GRÁFICA 3.8:</b> REPRESENTACIÓN DE TODOS LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RU PARA TODOS LOS GQ, ASÍ COMO MID Y FULL .....	34
<b>GRÁFICA 3.9:</b> REPRESENTACIÓN DE TODOS LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RH PARA TODOS LOS GQ, ASÍ COMO MID Y FULL .....	34
<b>GRÁFICA 3.10:</b> REPRESENTACIÓN PARA TODOS LOS ELEMENTOS, MOLES TOTALES ACUMULADOS EXPERIMENTALES ENTRE UNA FRANJA DE TIEMPO QUE VA DE LOS 130 DÍAS PARA ALGUNOS MODELOS A 210 PARA OTROS. ....	35
<b>GRÁFICA 3.11:</b> REPRESENTACIÓN DEL URANIO PARA TODAS LAS MUESTRAS Y LA MODELIZACIÓN. ....	39
<b>GRÁFICA 3.13:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL PU Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54MID). ....	43
<b>GRÁFICA 3.14:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL PU Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54FULL). ....	43
<b>GRÁFICA 3.15:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL PU Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (60). ....	44
<b>GRÁFICA 3.17:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL ND Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54MID). ....	46
<b>GRÁFICA 3.18:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL ND Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54FULL). ....	46
<b>GRÁFICA 3.19:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL ND Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (60). ....	47
<b>GRÁFICA 3.22:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL CS Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54MID). ....	50
<b>GRÁFICA 3.23:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL CS Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54FULL). ....	50
<b>GRÁFICA 3.24:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL CS Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (60). ....	51
<b>GRÁFICA 3.25:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL SR Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (42). ....	53
<b>GRÁFICA 3.26:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL SR Y LOS AJUSTES PERTINENTES, PARA GQ (54MID). ....	53
<b>GRÁFICA 3.27:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL SR Y LOS AJUSTES PERTINENTES, PARA GQ (54FULL). ....	54

<b>GRÁFICA 3.28:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL SR Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (60). .....	54
<b>GRÁFICA 3.29:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL TC Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (42) .....	56
<b>GRÁFICA 3.30:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL TC Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54MID). .....	56
<b>GRÁFICA 3.32:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL TC Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (60). .....	57
<b>GRÁFICA 3.34:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL MO Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54).....	59
<b>GRÁFICA 3.35:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL MO Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (60).....	60
<b>GRÁFICA 3.36:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RU Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (42).....	61
<b>GRÁFICA 3.37:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RU Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54MID).....	61
<b>GRÁFICA 3.38:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RU Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54FULL).....	62
<b>GRÁFICA 3.39:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RU Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (60).....	62
<b>GRÁFICA 3.40:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RH Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (42).....	63
<b>GRÁFICA 3.41:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RH Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54MID).....	63
<b>GRÁFICA 3.42:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RH Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (54FULL).....	64
<b>GRÁFICA 3.43:</b> REPRESENTACIÓN DE LOS VALORES EXPERIMENTALES DEL RH Y LOS AJUSTES PERTINENTES PARA GQ (60).....	64
<b>GRÁFICA A. 1:</b> REPRESENTACION DE LAS VELOCIDADES DE DISOLUCION DE LA TABLA A46. ....	89

## Lista de Tablas

<b>TABLA 3.1:</b> COMBUSTIBLES GASTADOS ESTUDIADOS.....	21
<b>TABLA 3.2:</b> DISOLUCIÓN DE MOLES PARA LAS 6 MUESTRAS ESTUDIADAS HASTA LOS PRIMEROS 210 DÍAS.....	36
<b>TABLA 3.3:</b> VALORES DE BU RESPECTO AL LWD. ....	37
<b>TABLA 3.4:</b> ÁREA SUPERFICIAL DE CADA MUESTRA.....	37
<b>TABLA 3.5:</b> VALORES OBTENIDOS MEDIANTE SERNIM PARA EL URANIO .....	39
<b>TABLA 3.6:</b> VELOCIDADES DE DISOLUCIÓN DEL URANIO EN CADA FASE.....	40
<b>TABLA 3.7:</b> VALORES DEL GAP Y GB PARA EL CS. ....	51
<b>TABLA 3.8:</b> PARAMETROS DE LA MODELIZACIÓN SIN URANIO PARA EL SR.....	54
<b>TABLA 6.1:</b> PRESUPUESTO ECONÓMICO DEL PROYECTO. ....	70
<b>TABLA A. 1:</b> VALORES EXPERIMENTALS DE LA MUESTRA 42MID.....	75
<b>TABLA A. 2:</b> VALORES EXPERIMENTALS DE LA MUESTRA 42FULL.....	75
<b>TABLA A. 3:</b> VALORES EXPERIMENTALS DE LA MUESTRA 54MID.....	75
<b>TABLA A. 4:</b> VALORES EXPERIMENTALS DE LA MUESTRA 54FULL.....	76
<b>TABLA A. 5:</b> VALORES EXPERIMENTALS DE LA MUESTRA 60MID.....	76
<b>TABLA A. 6:</b> VALORES EXPERIMENTALS DE LA MUESTRA 60MFULL.....	76
<b>TABLA A. 7:</b> VALORES MOLES ACUMULATIVOS DE LA MUESTRA 42MID.....	77
<b>TABLA A. 8:</b> VALORES MOLES ACUMULATIVOS DE LA MUESTRA 42FULL.....	77
<b>TABLA A. 9:</b> VALORES MOLES ACUMULATIVOS DE LA MUESTRA 54MID.....	77
<b>TABLA A. 10:</b> VALORES MOLES ACUMULATIVOS DE LA MUESTRA 54FULL.....	78
<b>TABLA A. 11:</b> VALORES MOLES ACUMULATIVOS DE LA MUESTRA 60MID. ....	78
<b>TABLA A. 12:</b> VALORES MOLES ACUMULATIVOS DE LA MUESTRA 60FULL.....	78
<b>TABLA A. 13:</b> VALORES MODELO SERNIM PARA LA MUESTRA 42MID.....	79
<b>TABLA A. 14:</b> VALORES MODELO SERNIM PARA LA MUESTRA 42FULL.....	79
<b>TABLA A. 15:</b> VALORES MODELO SERNIM PARA LA MUESTRA 54MID.....	79
<b>TABLA A. 16:</b> VALORES MODELO SERNIM PARA LA MUESTRA 54FULL.....	80
<b>TABLA A. 17:</b> VALORES MODELO SERNIM PARA LA MUESTRA 60MID.....	80
<b>TABLA A. 18:</b> VALORES MODELO SERNIM PARA LA MUESTRA 60FULL.....	80
<b>TABLA A. 19:</b> VALORES MODELO SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 42MID.....	81
<b>TABLA A. 20:</b> VALORES MODELO SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 42FULL.....	81
<b>TABLA A. 21:</b> VALORES MODELO SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 54MID.....	81
<b>TABLA A. 22:</b> VALORES MODELO SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 54FULL.....	81
<b>TABLA A. 23:</b> VALORES MODELO SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 60MID.....	82
<b>TABLA A. 24:</b> VALORES MODELO SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 60FULL.....	82
<b>TABLA A. 25:</b> VALORES MODELO MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 42MID.....	82
<b>TABLA A. 26:</b> : VALORES MODELO MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 42FULL.....	82
<b>TABLA A. 27:</b> : VALORES MODELO MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 54MID.....	83
<b>TABLA A. 28:</b> : VALORES MODELO MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 54FULL.....	83
<b>TABLA A. 29:</b> : VALORES MODELO MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 60MID.....	83
<b>TABLA A. 30:</b> : VALORES MODELO MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 60FULL.....	83

<b>TABLA A. 31:</b> VALORES INVENTARIO MUESTRAS 42MID Y 42FULL.....	84
<b>TABLA A. 32:</b> VALORES INVENTARIO MUESTRAS 54MID Y 54FULL.....	84
<b>TABLA A. 33:</b> VALORES INVENTARIO MUESTRAS 60MID Y 60FULL.....	84
<b>TABLA A. 34:</b> PARAMETROS MODELOS SERNIM Y SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 42MID. ....	85
<b>TABLA A. 35:</b> PARAMETROS MODELOS SERNIM Y SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 42FULL. ....	85
<b>TABLA A. 36:</b> PARAMETROS MODELOS SERNIM Y SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 54MID. ....	85
<b>TABLA A. 37:</b> PARAMETROS MODELOS SERNIM Y SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 54FULL. ....	86
<b>TABLA A. 38:</b> PARAMETROS MODELOS SERNIM Y SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 60MID. ....	86
<b>TABLA A. 39:</b> PARAMETROS MODELOS SERNIM Y SERNIM_ALT PARA LA MUESTRA 60FULL. ....	86
<b>TABLA A. 40:</b> PARAMETROS MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 42MID. ....	87
<b>TABLA A. 41:</b> PARAMETROS MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 42FULL. ....	87
<b>TABLA A. 42:</b> PARAMETROS MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 54MID. ....	87
<b>TABLA A. 43:</b> PARAMETROS MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 54FULL. ....	88
<b>TABLA A. 44:</b> PARAMETROS MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 60MID. ....	88
<b>TABLA A. 45:</b> PARAMETROS MODELO_SIN U PARA LA MUESTRA 60FULL. ....	88
<b>TABLA A. 46:</b> VELOCIDADES DE REACCIÓN PARA TODAS LAS MUESTRAS CON EL AJUSTE MODELO_SIN U. ....	89

# INDICE

<b>RESUM</b>	<b>I</b>
<b>RESUMEN</b>	<b>II</b>
<b>ABSTRACT</b>	<b>III</b>
<b>AGRADECIMIENTO</b>	<b>IV</b>
<b>GLOSARIO</b>	<b>VI</b>
<b>LISTA DE ILUSTRACIONES</b>	<b>VIII</b>
<b>LISTA DE GRÁFICAS</b>	<b>X</b>
<b>LISTA DE TABLAS</b>	<b>XII</b>
<b>1. INTRODUCCIÓN</b>	<b>1</b>
1.1. Objetivo del trabajo .....	1
1.2. Motivación del trabajo .....	1
<b>2. COMBUSTIBLE NUCLEAR</b>	<b>3</b>
2.1. Ciclo del Combustible .....	5
2.2. Almacenamiento Geológico Profundo (AGP).....	11
2.3. Combustible nuclear gastado (CNG) .....	15
<b>3. PROCESO DE DISOLUCIÓN Y MODELIZACIÓN MATEMÁTICA</b>	<b>16</b>
3.1. Fracción de liberación instantánea (IRF) .....	19
3.2. Valores experimentales .....	19
3.3. Inventario.....	22
3.4. Modelo matemático .....	22
3.4.1. Ajuste del Uranio.....	22
3.4.2. Modelización de los RNs .....	23
3.5. Comparación de los resultados experimentales.....	24
3.5.1. Comparación de los resultados de los experimentos MID y FULL.....	25
3.5.2. Grado de quemado Vs LWR.....	37
3.6. Modelización.....	37
3.6.1. Uranio.....	38
3.6.2. Resto de RN.....	40
<b>4. ANÁLISIS DEL IMPACTO AMBIENTAL</b>	<b>65</b>



<b>5. CONCLUSIONES</b>	<b>67</b>
<b>6. PRESUPUESTO Y/O ANÁLISIS ECONÓMICO</b>	<b>70</b>
<b>BIBLIOGRAFÍA</b>	<b>71</b>
<b>ANEXO A</b>	<b>75</b>
A1. Valores experimentales .....	75
A2. Valores modelo SERNIM .....	79
A2.1. Ajuste con el modelo SERNIM .....	79
A2.2. Ajuste modelo SERNIM_ALT.....	81
A2.3. Ajuste MODELO_SIN U .....	82
A3. Valores Inventario .....	84
A4. Parámetros .....	85
A4.1. Teniendo en cuenta el Uranio .....	85
A4.2. Sin tener en cuenta el Uranio.....	87
A5. Calculo velocidad de disolución.....	89



# 1. Introducción

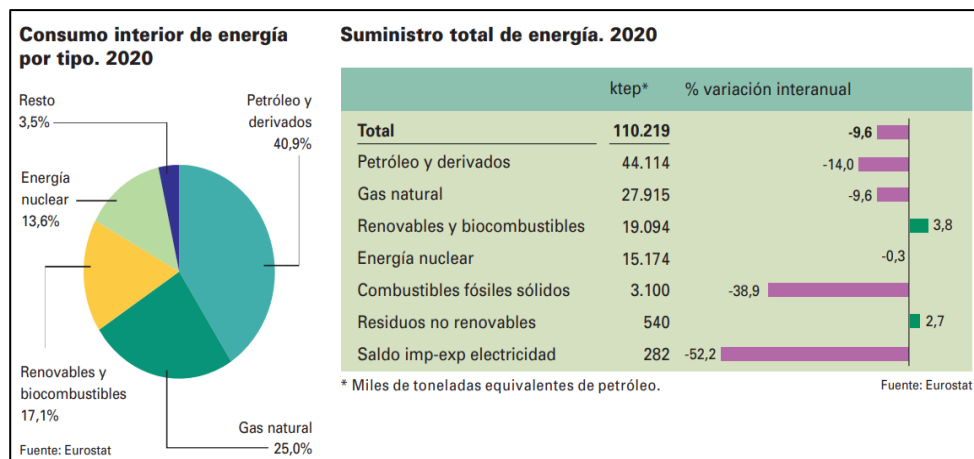
## 1.1. Objetivo del trabajo

- Revisión de la bibliografía dedicada al estudio de la forma química y la localización de los PF en el combustible nuclear gastado.
- La aplicación de un modelo matemático semi-empírico para poder conocer y analizar el comportamiento y el mecanismo de liberación de los diferentes elementos en el CNG, así como su localización en el combustible.
- Cálculo de las velocidades de disolución para cada muestra estudiada

## 1.2. Motivación del trabajo

Cada día observamos cómo es más importante tener una fuente de energía y poder reabastecer la demanda de electricidad, lo que ha llevado a que las fuentes de energía y la seguridad de suministro tengan un gran valor. Como se sabe cada país tiene varios factores que condicionan la dependencia energética. En España no existe una fuente energética propia muy abundante. En primer lugar, la hidrología española no es abundante en sí, esta contribuyó un 12,6% a la producción total en 2018 (2). En segundo lugar, a diferencia de otros países de Europa occidental, España cuenta con mucha irradiación solar, aun así, la energía fotovoltaica presenta bastantes limitaciones: aunque es predecible, no es gestionable; es discontinua; no provee estabilidad, inercia o regulación a la red eléctrica (3) y tiene una producción y un factor de carga muy bajos. En tercer lugar, la energía eólica sí contribuye a la producción eléctrica española, pero tiene una densidad energética baja, por tanto, no es suficiente como para tener en cuenta como fuente principal y presenta restricciones similares a la energía fotovoltaica, que limita la demanda que se podría llegar a cubrir (3). Por ello, comprendemos que la energía nuclear en España es importante. Para empezar, habría una dependencia menor para combustibles fósiles, como podemos observar en la Ilustración 1.1, un 40,9% proviene del petróleo y derivados y un 25% de gas natural, esto permitiría también no depender energéticamente de países terceros. También cabe recalcar que el combustible nuclear tiene una densidad energética muy alta, lo que significa que unas reservas pequeñas de uranio pueden producir grandes cantidades de energía (4). Por último, se sabe que la energía nuclear es una energía limpia, por lo que concierne a la emisión

de carbono, ya que el proceso que se tiene lugar apenas emite gases de efecto invernadero (5). Estas razones convierten a la energía nuclear en un factor esencial para España en la transición energética y para la lucha contra el cambio climático.

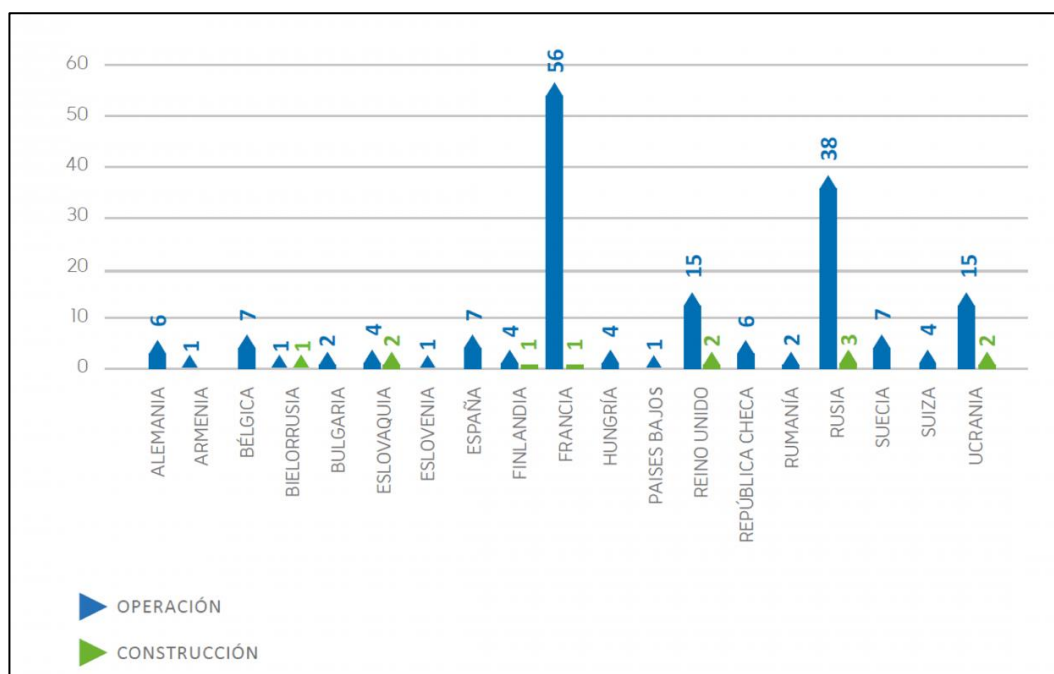


**Ilustración 1.1:** Consumo y suministro energético en España en el año 2020. Fuente: <https://www.ine.es>.

Uno de los problemas de la energía nuclear es la gestión de los residuos, por otro lado, siempre tuvo detractores la energía nuclear, sobre todo después de accidentes como el de Fukushima o Chernóbil, entre otros. Estas ideas han llevado a programas de desnuclearización como es el caso de Alemania que pretende cerrar todas sus centrales nucleares para 2022 (6). Sin embargo, la geopolítica actual de Europa, con la invasión de Ucrania por parte de la Federación Rusa y las limitaciones de importación de gas licuado y petróleo de Rusia puede modificar estos programas. En este contexto, la desnuclearización española requeriría sustituir un 20% de electricidad que se genera en la actualidad mediante la energía nuclear, llevar a cabo un proceso así sería un gran desafío a la par que aumentaría la generación de gases de efecto invernadero y de productos fósiles haciendo que fuera aún más dependiente el país (3). Por otro lado, la sustitución de ese 20% por energías renovables, sería muy costoso, y la emisión de Carbono aumentaría porque es menos costoso un despliegue nuclear para frenar la emisión de CO<sub>2</sub> que una estrategia que utiliza energía eólica con ciclos combinados como respaldo (7). Independientemente del alcance de la energía nuclear en España y su futuro a medio y largo plazo, las centrales nucleares ya contienen una cantidad de residuos de alta actividad, que irán en aumento con el tiempo y, especialmente, tras la clausura de cualquier central nuclear. Por tanto, el estudio del comportamiento de los residuos de alta actividad, como el combustible nuclear gastado, es necesario en cualquier caso.

## 2. Combustible nuclear

En la actualidad existen un total de 453 centrales nucleares en el mundo, de las cuales 443 están en estado de operación en un total de 35 países (2). La energía nuclear representa el 10% de la electricidad generada en el mundo, con una potencia neta de 399170 MW y una producción de 2701,01 TWh (2). Por lo que hace a la Unión Europea (UE), la energía nuclear representa aproximadamente el 26 % de la electricidad que se produce en un total de 107 reactores en operación. Si miramos toda Europa (ver Ilustración 2.1) las centrales nucleares llegan a un total de 181, de hecho, un 40% de las centrales nucleares en el mundo se encuentra en este continente (2).



**Ilustración 2.1:** Reactores en Europa, datos a 31 de diciembre de 2020. **Fuente:** PRIS-OIEA y Foro Nuclear.

En España, el parque nuclear está compuesto por 7 reactores nucleares, todos ellos de tipo LWR, que engloba a los PWR y a los BWR (8), con una capacidad de 7121 MWe que generan un total de 58,39 TWh y representa el 21,41 % de la electricidad consumida en el país siendo la fuente de generación con mayor aportación al sistema eléctrico español. Las 7 centrales están formadas por: Almaraz I y II, Ascó I y II, Trilló y Vandellòs II; el reactor de Cofrentes es el único que queda de agua en ebullición (BWR) actualmente (Ilustración 2.2). El principal problema con este tipo de energía es la adecuada gestión de los residuos radioactivos, que deben ser almacenados de forma segura (9).

Central	Localización	Potencia eléctrica inicial (MW) (*)	Potencia eléctrica actual (MW)	Tipo de reactor (suministrador)	Estado actual	Titular
Almaraz I	Almaraz (Cáceres)	930	1.049,4	PWR (Westinghouse)	En explotación comercial desde septiembre de 1983	Iberdrola 53% Endesa 36% Naturgy 11%
Almaraz II	Almaraz (Cáceres)	930	1.044,5	PWR (Westinghouse)	En explotación comercial desde julio de 1984	Iberdrola 53% Endesa 36% Naturgy 11%
Ascó I	Ascó (Tarragona)	930	1.032,5	PWR (Westinghouse)	En explotación comercial desde diciembre de 1984	Endesa 100%
Ascó II	Ascó (Tarragona)	930	1.027,2	PWR (Westinghouse)	En explotación comercial desde marzo de 1986	Endesa 85% Iberdrola 15%
Cofrentes	Cofrentes (Valencia)	975	1.092,0	BWR (General Electric)	En explotación comercial desde marzo de 1985	Iberdrola 100%
Vandellós II	Vandellós (Tarragona)	982	1.087,1	PWR (Westinghouse)	En explotación comercial desde marzo de 1988	Endesa 72% Iberdrola 28%
Trillo I	Trillo (Guadalajara)	1.000	1.066,0	PWR (Siemens-KWU)	En explotación comercial desde agosto de 1988	Iberdrola 48% Naturgy 34,5% EDP 15,5% Nuclenor(**) 2%

(\*) Al inicio de la explotación comercial  
(\*\*) Nuclenor se encuentra participada por Endesa (50%) e Iberdrola (50%)  
Fuente: Foro Nuclear (datos a 31.5.2018)

**Ilustración 2.2:** Centrales nucleares en España. **Fuente:** (2).

El combustible que más se utiliza para las centrales nucleares es el uranio, en concreto el dióxido de uranio ( $UO_2$ ) ya que este combustible tiene mayor estabilidad, una baja solubilidad, y características como altas resistencias a temperaturas muy altas y a la radiación (10). En el reactor nuclear, el CN se encuentra en forma de pastillas (pellets en inglés) que tienen una dimensión de 8-10 mm de diámetro y una longitud de unos 9 a 15 mm, estas pastillas de uranio se introducen en unas vainas que suelen ser de Zircaloy<sup>1</sup>, estas barras se llenan de pastillas de uranio y así conforman las barras de combustible, posteriormente, estas vainas se ensamblan con acero inoxidable y están listas para los reactores nucleares (11).

Actualmente, en el mundo hay una reserva de 2.643.343 toneladas de uranio metálico, del cual solo un 1,2 % se encuentra en Europa, en la Ilustración 2.3 podemos observar cómo está distribuido por todo el mundo (12).

<sup>1</sup> Las vainas de Zircaloy están compuestas por una aleación de hierro, cromo, níquel y zirconio, cuyo porcentaje varía en función del diseño del reactor

Ubicación Reservas Uranio	2,64 MtU a $\leq 80\$/kg$
Australia	27%
Kazajstán	14%
Canadá	13%
Niger	7%
Sudáfrica	7%
Namibia	6%
Brasil	6%
Rusia	5%
EE.UU.	4%

**Ilustración 2.3:** Ubicación de las reservas de uranio metálico por el mundo. **Fuente:** (12).

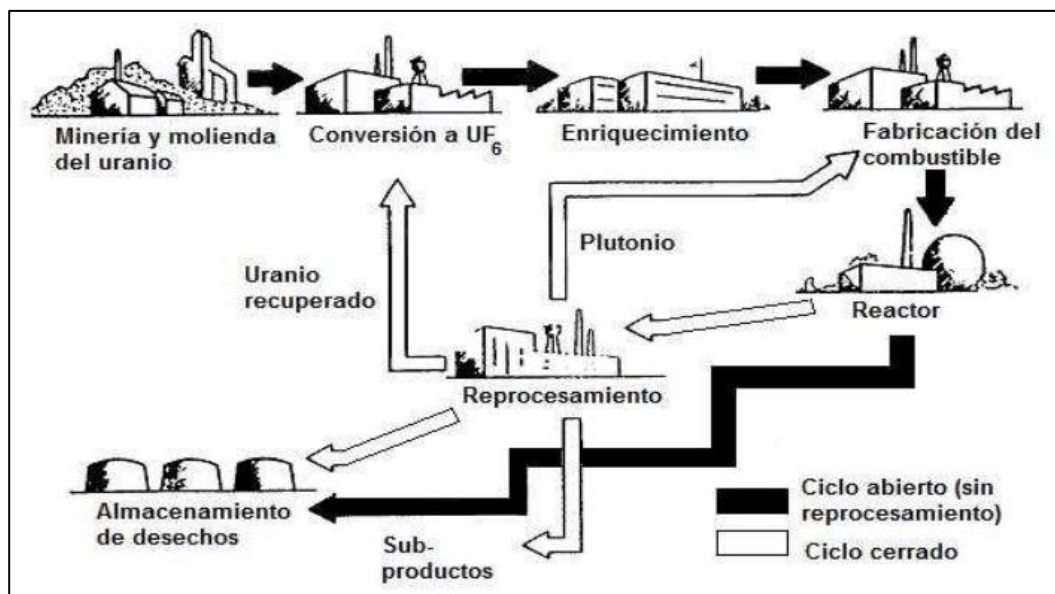
España tienen unas necesidades medias anuales de unas 1.800 toneladas de  $U_3O_8$  natural. Para cubrir estas necesidades, ya que las minas de Ciudad Rodrigo (Badajoz) están clausuradas, necesita de empresas externas: 35% de empresas de Canadá y Australia, otros 35% empresas africanas y los 30% restantes, por la empresa Tenex, de la Federación Rusa. En lo que concierne al uranio enriquecido, España tiene contratos con empresas externas, algunas ya mencionadas como Tenex y otros como USEC, empresa estadounidense, Urenco (UE) y por último Eurodif, empresa francesa. Las necesidades medias anuales de servicios de enriquecimiento son de unas 750.000 UTS (12).

## 2.1. Ciclo del Combustible

El ciclo del combustible nuclear consiste en una serie de pasos, desde la extracción del uranio de las minas hasta la obtención de CNG y su gestión. Las etapas que configuran todo este proceso son:

- Etapa pre-reactor.
- Etapa reactor.
- Etapa post-reactor.

En la Ilustración 2.4 podemos observar el recorrido desde que se extrae de las minas hasta su almacenamiento, tanto en ciclo abierto, donde es directo como cerrado, donde se recupera uranio y plutonio, así como subproductos. Cabe recalcar que España efectúa ciclos abiertos.



**Ilustración 2.4:** Esquema de los ciclos del combustible nuclear (abierto y cerrado). **Fuente:** (13).

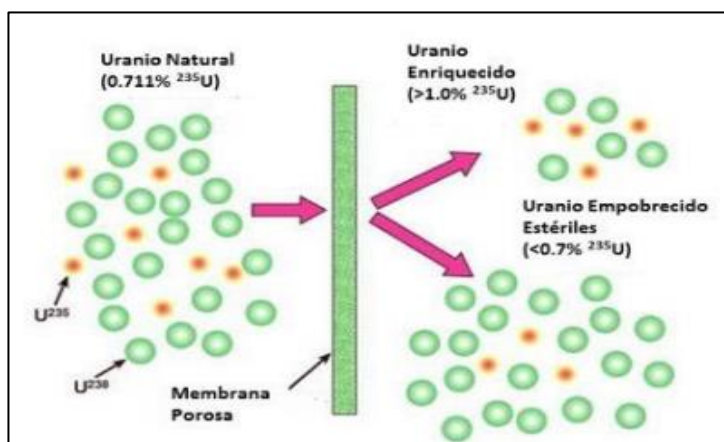
## PRE-REACTOR

Antes de empezar con la minería, hay un paso previo que es la exploración. El uranio se suele fijar en medios reductores y en ocasiones se presenta acompañado de otros elementos como puede ser el oro, molibdeno, vanadio, hierro, etc. (14) Una vez se ha localizado se procede su extracción siguiendo una serie de técnicas de minería tradicional. Hay minas a cielo abierto o subterráneas y el proceso de extracción del material en bruto varía según la naturaleza, riqueza en U del mineral y la distribución geológica del yacimiento (15). Una vez se extrae el mineral, es sometido a una serie de tratamientos para conseguir las pastillas de uranio. El uranio extraído tiene una ley del orden de 1 kg  $U_3O_8$ /t (14), es sometido por un proceso de molienda y tamizado hasta tenerlo en un tamaño de partículas inferior a los 100 mm (15). Una vez se consiguen estas partículas, se procede a la separación de componentes no uraníferos o a la eliminación de impurezas, denominada etapa de extracción hidrometalurgia, que consiste en disolver el uranio mineral en ácido o carbonatos alcalinos, se separa del material no atacado se concentra y en la última etapa se precipita para acto seguido hacer un lavado para eliminar restos de lixivante o impropios que hayan quedado (14) (15) (16). Se calienta con agua caliente para secarlo y obtener el famoso “yellow cake”, puesto que es de un color amarillento, en esta etapa se tiene alrededor de un 90% de  $U_3O_8$  (15), teniendo en cuenta de que el producto comercial debe rondar los 750 a 950 kg  $U_3O_8$ /t.

Una vez tenemos el  $U_3O_8$ , necesitamos convertirlo en  $UF_6$  el hexafluoruro de uranio (VI), que es el que se emplea en el proceso de enriquecimiento isotópico, ya que, en ese estado, no puede ser empleado



para combustible nuclear. Tan solo un 0.7% del U natural es fisionable, es una cantidad muy pequeña como para ser útil como combustible, por ello se procede a enriquecer el material, es decir, incrementar el porcentaje de uranio fisionable. Como se menciona en (9) (14) (15) (16), el isótopo fisionable es él  $^{235}\text{U}$ , el resto es  $^{238}\text{U}$  que no es adecuado para reactores LWR<sup>1</sup>. El nivel de enriquecimiento varía, pero suele ser inferior al 5% (12). Este proceso de enriquecimiento se realiza mediante **Difusión** a través de membranas porosas (véase Ilustración 2.5) o por centrifugación, en una cascada de muchas etapas (14). Por último, se compactan en pastillas de 8-10 mm de diámetro y una longitud de unos 9 a 15 mm (11).



**Ilustración 2.5:** Proceso de enriquecimiento del  $^{235}\text{U}$ . Fuente: (15).

Las pastillas de uranio se apilan dentro de unas barras de Zircaloy, el  $\text{UO}_2$  enriquecido se prensa y se somete a un proceso de sinterización en un horno con atmósfera de  $\text{H}_2$  (15). Dentro de las barras existe también un espacio<sup>2</sup> que sirve para el almacenamiento de los productos de fisión gaseosos que se producen durante la operación del combustible en el reactor, y donde hay un muelle que comprime el combustible (9). Las vainas de uranio y Zircaloy se introducen en unas rejillas y junto a dos cabezales (cabezal superior, donde van alojadas las vainas y el cabezal inferior, el cual distribuye el caudal del

---

<sup>1</sup> Es fisionable, pero en reactores de neutrones rápidos

<sup>2</sup> Llamado (Plenum)

refrigerante) y demás partes forman el elemento combustible que será utilizado como CN en las plantas nucleares (9) (12) (14) (16) (Ilustración 2.6).

En la Ilustración 2.7 puede verse un esquema de todo el proceso de pre-reactor.

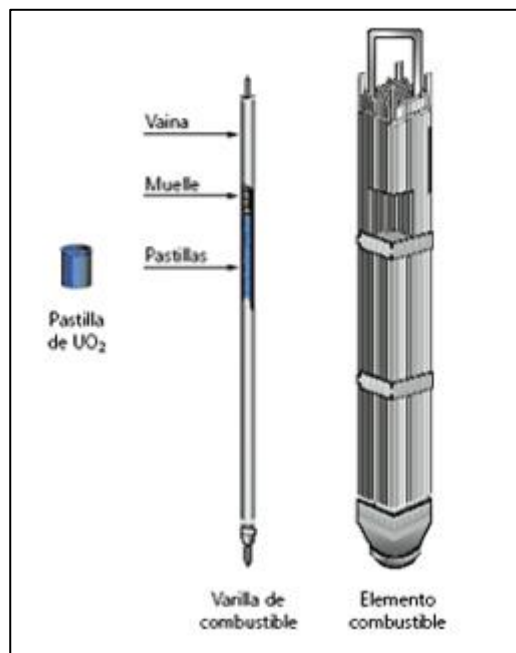


Ilustración 2.6: Composición del CN. Fuente: (12).

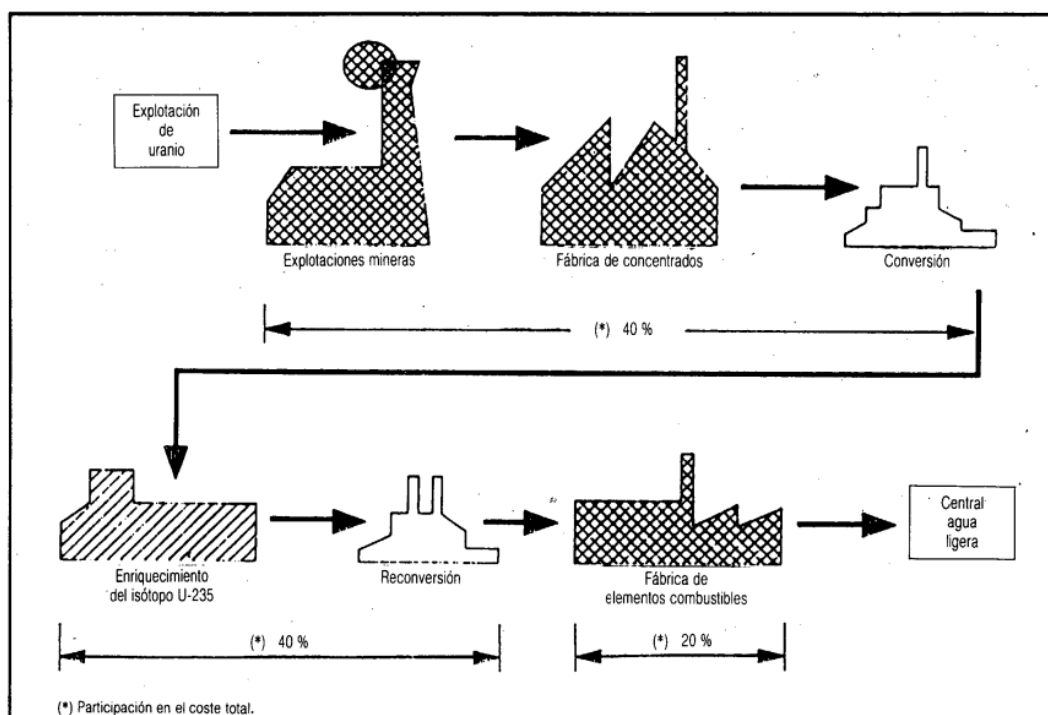
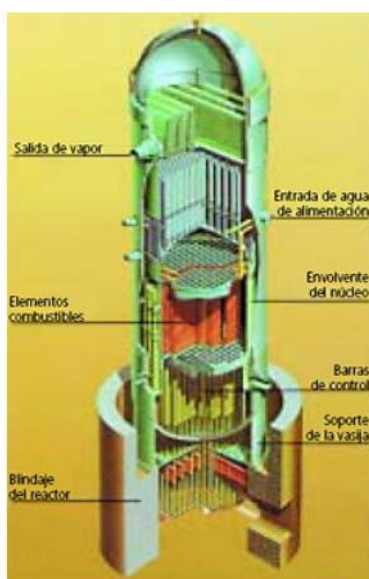


Ilustración 2.7: Representación proceso Pre-Reacto. Fuente: (14).

## REACTOR

Una vez se tiene el elemento de combustible nuclear, es enviado a las centrales nucleares, donde se incorpora en el núcleo del reactor. Durante todo el proceso de fisión y captura de neutrones, así como el decaimiento  $\beta$  del  $^{235}\text{U}$ , permite la generación de energía en forma de calor y diversos PF, así como elementos transuránicos (3) (17). El tiempo de quemado suele durar entre 3 a 5 ciclos de entre 1 y 2 años cada ciclo (9), llegado a estos valores, se empieza a generar una cantidad de PF suficientes como para competir con la fisión del  $^{235}\text{U}$ , y los elementos de combustible dejan de ser rentables, por lo que, se van cambiando por unos nuevos. El grado de quemado (GQ), suele variar según las centrales nucleares, y representa el número de fisiones acumuladas por tiempo de irradiación, y sus unidades suelen ser MWd/kgU (11) (17). Ya cuando este combustible llega a su vida útil, se conoce como CNG (combustible nuclear gastado) y suele estar compuesto por un 95% de  $\text{UO}_2$ .

Los elementos más importantes de un reactor pueden resumirse en (Figura 2.8) (3):



**Ilustración 2.8:** Representación de un Reactor nuclear y sus partes principales. **Fuente:** (3).

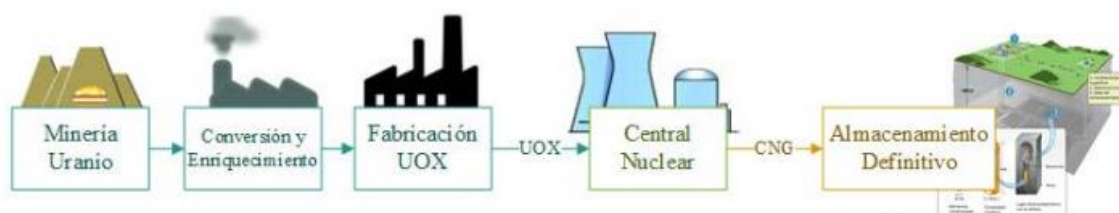
- Núcleo: Contiene el combustible.
- Moderador: Este tipo de reactores (térmicos) requieren de un moderador para menguar la  $E_c$  (energía cinética) de los neutrones.
- Reflector: Impide el escape de los neutrones del núcleo.

- Blindaje: Evita la salida de las radiaciones. Su función es la de proteger al personal de las radiaciones.
- Refrigerante: Extrae el calor del núcleo y lo utiliza en el ciclo de vapor.
- Barras de control: se utilizan para regular la potencia y garantizar la criticidad.
- Sistemas de seguridad: garantizan la seguridad del reactor y evitan el escape de radiactividad al medio.
- Elementos estructurales: Proporcionan el confinamiento al combustible y el soporte físico al núcleo del reactor.

## POST-REACTOR

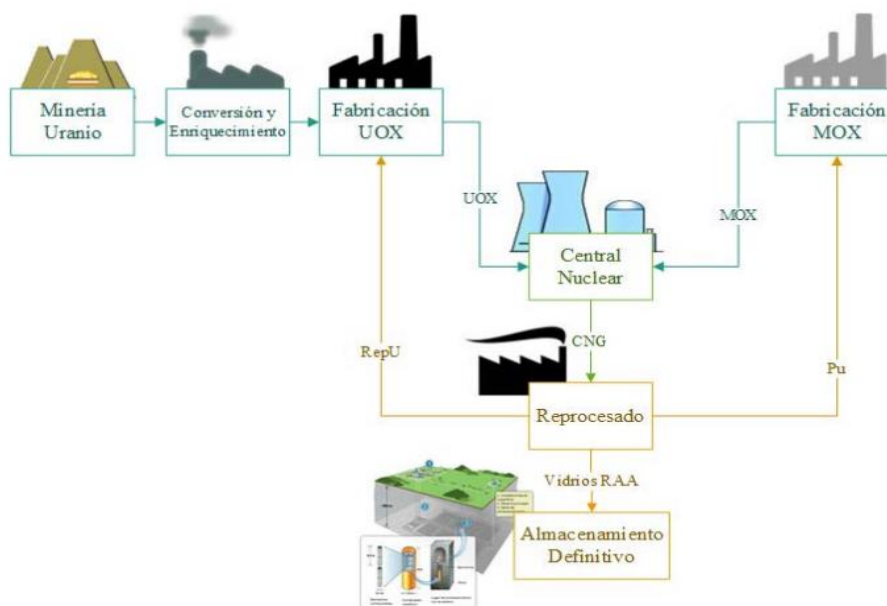
Una vez terminada la vida útil del combustible nuclear existen varias opciones para su gestión:

**Ciclo abierto:** Consiste en el almacenamiento directo del combustible nuclear gastado sin alterarlo químicamente, de manera segura durante los años necesarios. El CNG se acondiciona para almacenarlo en los AGP (3) (16). España opta por este proceso entre otros países europeos. Podemos observar un esquema resumido del proceso en la Ilustración 2.9.



*Ilustración 2.9: Ciclo abierto. Fuente: (3).*

**Ciclo cerrado:** En este ciclo, en vez de almacenarlo directamente se lleva a cabo unos tratamientos intermedios, para extraer el uranio y el plutonio, que pueden ser reciclado en un nuevo CN y utilizados en centrales nucleares donde dispongan de reactores adaptados para este tipo de combustible (3). Una vez el combustible nuclear gastado es retirado del reactor, se almacena en piscinas situadas en la misma central nuclear para disminuir su temperatura. Este proceso no es rápido puesto que suele durara entre 5 y 10 años. Una vez el CNG está a una temperatura y una actividad radiactiva baja o lo suficientemente baja para el traslado, se envía a los ATI o ATC. Un punto intermedio hasta que el Almacén Geológico Profundo (AGP) esté construido (3) (9).

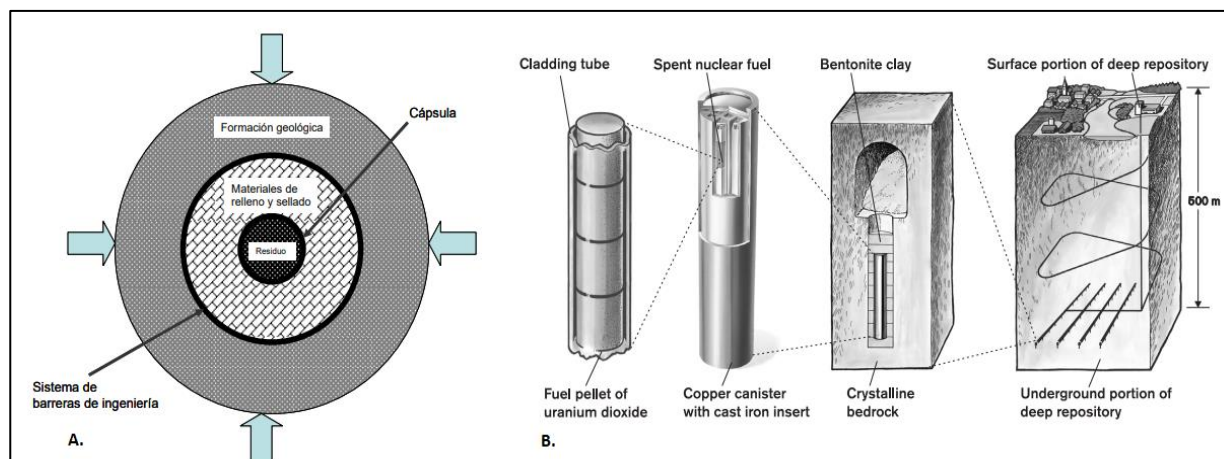


**Ilustración 2.10:** Ciclo cerrado. Fuente: (3).

## 2.2. Almacenamiento Geológico Profundo (AGP)

El AGP es un almacén subterráneo con un sistema de barreras múltiples que permite aislar el CNG del medio ambiente, así como de las personas para proteger al hombre y a su entorno de los riesgos que pueden ocasionar los residuos nucleares. Este almacén a días de hoy es definitivo y está aceptado internacionalmente porque se ve más estable y seguro, puesto que permite tener un aislamiento suficiente para proteger el entorno humano. Estos almacenes se construyen entre 500-1000 metros por debajo del nivel del suelo (15), según, (18) se debe realizar estas construcciones en zonas geológicas estables para asegurar (3) (18): una estabilidad suficientemente buena para que no haya alteraciones por vibraciones o terremotos, la aportación ya de manera directa de una barrera natural y la baja probabilidad de variaciones en la configuración de las predicciones en tiempos muy largos.

El AGP constituye, así pues, la última etapa de todo el ciclo del combustible, donde estará almacenado durante miles o millones de años hasta tener unos niveles de radiación iguales a la del uranio natural o hasta que no sea nocivo para el ser humano y su entorno (3). Como se comentó anteriormente, el AGP está formado por una serie de barreras químicas de ingeniería y naturales que proporciona el entorno, podemos observar las múltiples barreras en la Ilustración 2.11.



**Ilustración 2.11:** Representación esquemática del concepto multibarrera en un AGP. Fuente: Figura A: (17); Figura B: (19).

## Barreras químicas

En esta primera capa tenemos la solubilidad relativamente baja de la propia matriz de combustible ( $UO_2$ ), que constituye la primera barrera química (17).

## Barreras de ingeniería

Las barreras de ingeniería se dividen principalmente en tres partes, la primera es la cápsula o contenedor donde se es almacenado el CNG; el *buffer*, que rodea el contenedor para rellenar vacíos y grietas y por último el material de relleno y sellado. Esta serie de barreras sirven para aislar, proteger e impedir que el CNG entre en contacto con agentes extraños como son las aguas subterráneas y evitar la corrosión, altas temperaturas, etc.

- **Cápsula o contenedor:** Como se dijo, el CNG se introduce en un contenedor, lo que constituye una barrera que retrasa el contacto entre el combustible y las aguas subterráneas, según (18) el contenedor tiene una vida útil entre 300 y 1000 años y según (20) la vida útil mínima es de 1000 años frente al millón de años durante el cual la radiotoxicidad del CNG es elevada, y diversos experimentos han mostrado que se necesitaría más de 1000 años para que los contenedores de acero al carbono se oxidaran por completo, es durante este período de tiempo de 1000 años cuando el combustible gastado emite la mayor dosis de radiación gamma (18).
- **Buffer:** Básicamente, sirve para cerrar grietas por ello se usan materiales moldeables (arcillosos) como es la bentonita, aunque también se estudian otros materiales como es el caso de cementos con bajo pH (21). El objetivo principal es, rellenar y sellar para así impedir

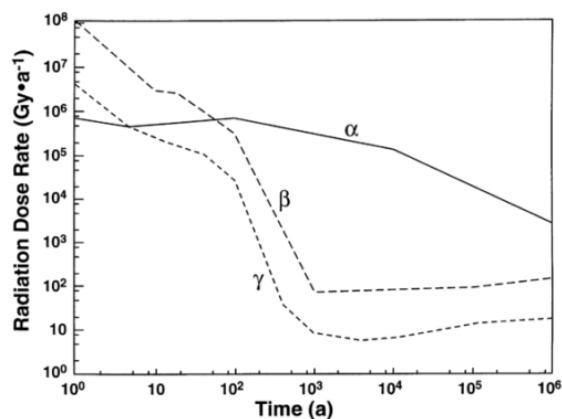
filtraciones de agua (3). Limitar las actividades microbianas de tal manera que la corrosión disminuya (18). Retener los RN que se van generando (17) (22).

- **Relleno, sellado y tapones:** Son un componente importante ya que tienen un impacto sobre el comportamiento del repositorio. Su función es formar una zona de salvaguarda de modo mecánico y químico de las cápsulas de CNG y disminuir lo máximo posible el flujo de agentes agresivos hacia la superficie de las cápsulas de almacenamiento y como se dijo antes, limitar el transporte de RN hacia el exterior del AGP. Por ello deben tener buena conductividad térmica y baja conductividad y difusividad hidráulica (20). Debido a diversos factores los modelos de transporte indican que es de esperar que los RN tarden decenas de miles de años en atravesar completamente esta barrera (8) (23).

### **Barreras Naturales**

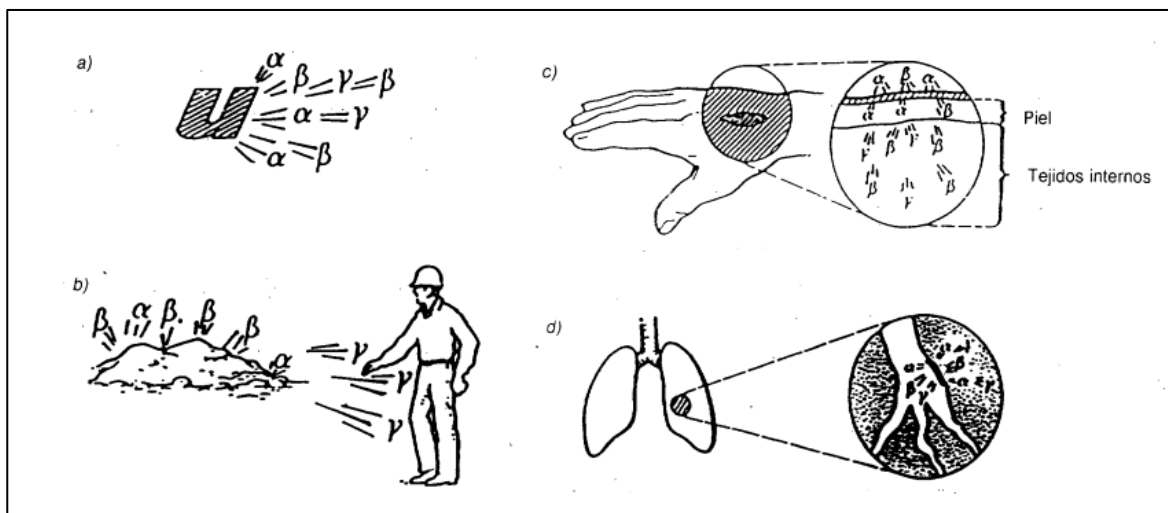
La última barrera, es la propia formación geológica, que completa así las múltiples barreras que conforman un AGP. Una vez los RN hayan superado todas las barreras comentadas anteriormente, viajarán gracias al flujo del agua subterránea puesto que se considera que es el único método para que los RN puedan desplazarse por las fracturas y por difusión a través del macizo rocoso (17). Por ello se debe analizar y estudiar con antelación la roca huésped y sus propiedades porque a partir de sus propiedades, las demás barreras de ingeniería se tendrán que adaptar a las condiciones de la roca huésped (3). También otro factor importante es la alta emisión de calor de los CNG debido a la descomposición de los radionúclidos (18) (24) esta emisión de calor puede afectar al correcto funcionamiento del AGP, ya que la superficie de los contenedores no puede superar los 100 °C (3). El calor de desintegración depende del tiempo y está determinado por: El inventario de radionúclidos de los desechos (y para el CNG dependiendo de su enriquecimiento y el GQ inicial) y (b) la duración del post-reactor enfriamiento (24).

Los primeros 200 años la radioactividad es regida por PF que emite partículas  $\beta$  y  $\gamma$  ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ), pero a la larga, la actividad en el CNG es principalmente debido por actínidos como el  $^{239}\text{Pu}$  con partículas  $\alpha$ . A medida que se van desintegrando isotopos de vida corta se desintegran, la radiactividad de los residuos también disminuye y a la larga la radiación  $\alpha$  será la predominante ya que tiene una vida media más larga como se puede observar en la Ilustración 2.12. Finalmente, la radiación emitida por el combustible alcanzará el mismo valor que los minerales de uranio natural millones de años después de la descarga.



**Ilustración 2.12:** Evolución de las tasas de dosis  $\alpha$ ,  $\beta$  y  $\gamma$  en la capa de agua en contacto con CNG canadiense con alto quemado. **Fuente:** (24).

El uranio emite partículas de muy bajo poder de penetración( $\alpha$ ), poco penetrantes ( $\beta$ ) y radiación( $\gamma$ ) muy penetrante. En distancias cortas la dosis es solo debida a radiación( $\gamma$ ), en contacto con la piel se recibe por partículas( $\beta$ ) y radiación ( $\gamma$ ). Si se llegara a inhalar o ingerir uranio, la dosis recibida seria total tanto  $\alpha$ ,  $\beta$  como  $\gamma$  (véase Ilustración 2.13).

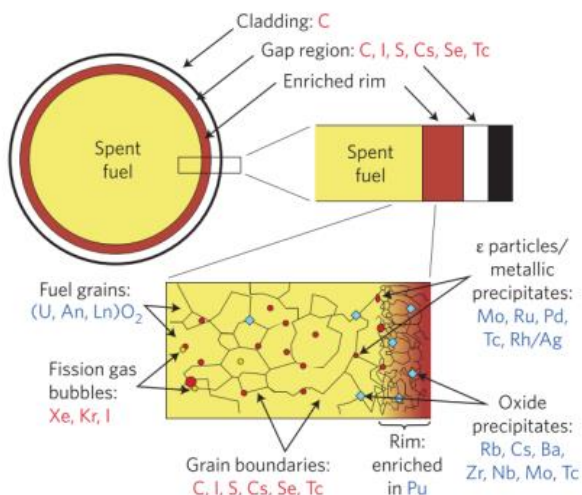


**Ilustración 2.13:** Exposición al uranio. **Fuente:** (14).



## 2.3. Combustible nuclear gastado (CNG)

Las pastillas de CNG se pueden dividir en cuatro partes donde se puede identificar los diferentes RN localizados, estas partes o regiones son: El gap o el huelgo entre la pastilla y la vaina, donde se pueden almacenar gases de fisión, los límites de grano y la pastilla en sí que se puede dividir en dos partes primordiales, el centro y la periferia, podemos observar en la Ilustración 2.14.



**Ilustración 2.14:** Distribución de los RN por el CNG. **Fuente:** (25).

El gap que se encuentra en el revestimiento de la pastilla, en esta zona se tienen acumulación de gases de fisión y otros elementos volátiles como pueden ser: el yodo 129 o el Cesio 135 y 137, entre otros (25). En el borde de la pastilla suele ser rica en plutonio. En la zona central de la pastilla donde se espera que estén completamente disueltos los RN son principalmente lantánidos y actínidos, ya que según (26) tienen mayor similitud con el uranio. En contacto con el agua subterránea, el CNG se lleva a cabo principalmente dos contribuciones para la liberación de RN. La fracción de liberación instantánea (IRF) que implica la liberación instantánea de la brecha y el límite de grano. La fracción de disolución de la matriz que es la liberación lenta de los RN fijados en la matriz del combustible (27).

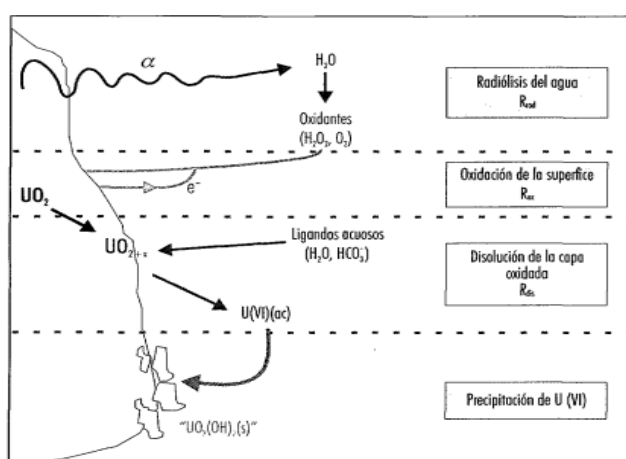
Según la clasificación de (26), la mayoría de los PF y actínidos se encuentran en la matriz del CNG como son: Rb, Sr, Y, Zr, Nb, Te, Cs, Ba, La, Ce. Los elementos más volátiles que tienen una mayor movilidad por el CNG suelen estar entre la vaina y el huelgo del CNG, por ejemplo: Kr, Rb, I, Xe, Cs, Te. Y existe otro grupo de PF que suelen estar como óxidos precipitados que se hallan en los límites de grano como son: Rb, Sr, Zr, Nb, Mo, Se, Te, Cs y formando precipitados metálicos muy poco solubles o insolubles como son: Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ag, Cd, In, Sn, Sb.

### 3. Proceso de disolución y Modelización matemática

Los procesos que controlan la disolución del CNG se puede resumir en dos fases/etapas que son muy diferenciadas. La primera etapa es donde la disolución del RN se lleva a cabo a una velocidad muy grande, esta fase suele durar unos días o semanas, denominada fracción de liberación instantánea (IRF) localizados en las microestructuras más externas y accesibles (inventario del huelgo, fracturas y límites de grano). La otra fase es la que concierne a la propia matriz del combustible, esta segunda etapa suele ser mucho más lento donde dura años (17) (28) que ocurre después de la liberación inicial de radionucleidos volátiles (25). Comparando la liberación de los PF y la disolución del uranio, es posible clasificar los PF en tres grupos.

- RNs que están disueltos completamente en la matriz. La velocidad de liberación será similar al del uranio por ello se espera que sean congruentes con este
- RNs que están formando fases sólidas insolubles. Su velocidad de liberación será menor que la del uranio.
- 3. RNs que no forman parte de la matriz y que muestran una liberación más rápida que la del uranio.

Una vez se ha almacenado el CNG, existe el riesgo de que se filtre agua subterránea y haya contacto con este, una vez sucede esto, la superficie del combustible almacenado empieza a disolverse. Se lleva a cabo la oxidación de la superficie de contacto con el uranio, este proceso genera óxidos de uranio. Una vez se genera la interfase CNG-agua, hay una serie de procesos que se llevan a cabo que afectan y a la vez controlan la disolución del  $UO_2$ , podemos observar este proceso en la Ilustración 3.1 (29).



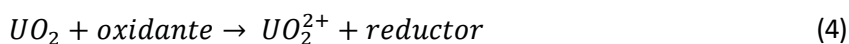
**Ilustración 3.1:** Gráfico esquemático de los principales procesos involucrados en la disolución oxidativa del combustible.

**Fuente:** (29).

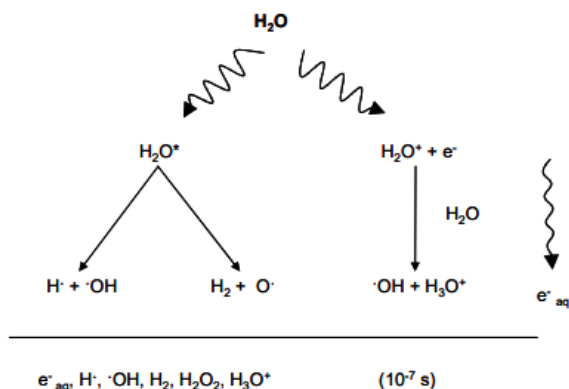
- **Primer proceso:** radiolisis del agua. Se genera especies reductoras y oxidantes, productos oxidantes como el  $O_2$  e  $H_2O_2$ , influyendo en la disolución del  $UO_2$  reaccionando con el CNG y/o con otras especies que se encuentran en el agua subterránea que de la misma manera reaccionan con el combustible (29) (17). En la Ilustración 3.2 obtenida por (17) observamos las reacciones radiolíticas primarias, donde incluyen alrededor de 80 reacciones.
- **Segundo proceso:** Oxidación de la superficie del combustible. Este proceso viene determinado por la generación de oxidantes debido a la radiolisis del agua. Todas las especies que se forman mediante la radiolisis permitirá oxidar el CNG. El  $UO_2$  se oxida como U(IV), a U(VI) (17). Esto da como resultados una superficie que contiene algo de U(VI). El proceso puede ser descrito por las dos siguientes semirreacciones (27).



Si juntamos tenemos que:



constituye el proceso general de oxidación (4) y, la velocidad de este vendrá determinada por la cinética de reacción más lenta (27).



**Ilustración 3.2:** Esquema de las reacciones primarias de la radiolisis del agua pura por el cual se generan, en un tiempo aproximado de  $10^{-7}$  seg, especies oxidantes y reductoras muy reactivas. **Fuente:** (17).

- **Proceso tres:** Disolución del combustible oxidado. El U(VI) es generado en la superficie del CNG y es disuelta por efecto de los diferentes agentes que se encuentran el agua subterránea. Por ello, la especiación del uranio viene dada por varias causas como son: Composición de las aguas, en particular, condiciones redox, pH y concentración de carbonatos (17).
- **Cuarto proceso:** Precipitación de fases secundarias: Cuando aumenta la concentración de uranio en la disolución, llegando a la saturación con respecto a alguna fase sólida de uranio, se llega a producir lo que son fases secundarias. Estas fases secundarias dependerán de parámetros como la composición química del agua, siendo variables pH, pe y concentración de los distintos ligandos complejantes (principalmente carbonatos, silicatos y fosfatos, la temperatura, y su precipitación se puede considerar instantánea con lo que su control será termodinámico (29) (17).

Otra especie que se produce es el  $H_2$  pudiendo compensar la oxidación de la superficie del  $UO_2$  sumando a esto, la corrosión del hierro sin oxígeno puede generar grandes cantidades de  $H_2$  y una sobredosis de  $H_2$  interrumpen los procesos descritos anteriormente, y no se produce la disolución (25).

Como vimos en todas las etapas suele concentrarse diferentes RN. Hay un grupo que se encuentra disuelta completamente en la matriz, lo que sería equivalente al tercer proceso donde la liberación de estos está controlada por la propia matriz del Uranio. Algunos RN como podrían ser el Ru o el Rh se segregan parcialmente en fases sólidas insolubles Otros RN se encuentran parcialmente segregados de la matriz (1). En este trabajo se usa un modelo matemático semi-empírico llamado SERNIM para el estudio del comportamiento de los RN en el CNG, Se supone que la liberación sigue una cinética de primer orden, podemos observar la ecuación 3.1 (9) (1).

$$m_{RN}(t) = \sum_{c=1}^N m(c)_{RN,t=\infty} \cdot (1 - e^{-k_c t}) \quad (Ec. 3.1)$$

Siendo:

1.  $m_{RN}(t)$  → Cantidad de RN medida en la solución en función del tiempo (mol)
2.  $m(c)_{RN,t=\infty}$  → Cantidad total de RN liberada de la contribución 'c' (mol)
3.  $c$  → Fuente del RN lixiviado.
4.  $N$  → Contribuciones totales consideradas

5.  $kc \rightarrow$  Constante cinética de disolución de la contribución 'c' ( $d-1$ )

### **3.1. Fracción de liberación instantánea (IRF)**

La IRF es una fracción de RN que suele liberarse más rápidamente que la propia matriz. La composición y valor depende de la ubicación de los RNs en el CN después de ser irradiados y la posterior evolución de los CNG antes de entrar en contacto con aguas subterráneas. La liberación instantánea puede variar significativamente según el tipo de combustible y su quemado (25). Podemos clasificar en dos tipos de IRF: (1) (30)

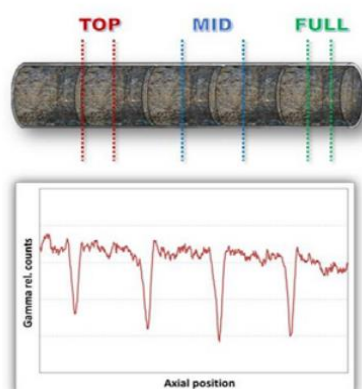
- Fracción de liberación rápida: Representa a la liberación de los RN que están en el gap o el espacio que hay entre la vaina y la pastilla
- Liberación de los RNs contenidos en los límites de grano. Esta liberación forma parte de la IRF, pero es más lenta que la RRF.

### **3.2. Valores experimentales**

Los valores experimentales han sido obtenidos en estudios previos de experimentos de lixiviación de CNG en régimen estático en celdas calientes del JRC Karlsruhe.

De todos los elementos que se encuentran en el CNG para este trabajo se ha estudiado 9 elementos que son: El uranio, plutonio, cesio, estonio, molibdeno, tecnecio, neodimio, rutenio y el rodio. En total se ha estudiado 6 CNG todos ellos del tipo  $UO_2$ : 4 de BWR con GQ de 42 y 54 GWd/TU, y 2 de PWR con un GQ de 60 GWd/TU, todos con agua bicarbonatada (BIC) como lixivante con una concentración de 1mM de  $HCO_3^-$  y 19 mM de NaCl en condiciones oxidantes.

En concreto se ha estudiado dos tipos de muestras para los tres tipos de GQ, el MID y el FULL, estas muestras corresponden a distintas zonas de la pastilla, por ende, las muestras MID son las zonas de intersección de dos pastillas dentro de la vaina mientras que el FULL es el corte que se hace de una pastilla. Las muestras MID son menos homogéneas que las FULL por ello se espera que el acceso de agua llegue a ser más importante (véase Ilustración 3.3). Todas las muestras son pastillas de dióxido de uranio, en la tabla 3.1 podemos observar las características de las 6 muestras.



**Ilustración 3.3:** Diferentes zonas de corte. Fuente: (31).

Las zonas de descenso en las señales representan las zonas de contacto entre pastillas de tal manera que presentaría el MID, zona donde más aglomeraciones hay, véase ilustración 3.4.

El método experimental que se sigue para la obtención de los valores utilizados para la modelización es el siguiente dependiendo del tipo de muestra: La disolución lixivante se equilibra con aire y se lleva a una temperatura normal de celdas calientes ( $25 \pm 5$ ) °C. Las pastillas se suspenden mediante un hilo de platino en un recipiente de plástico el cual se coloca sobre un agitador, asegurando el contacto entre la muestra y la disolución lixivante y su continua homogeneización.

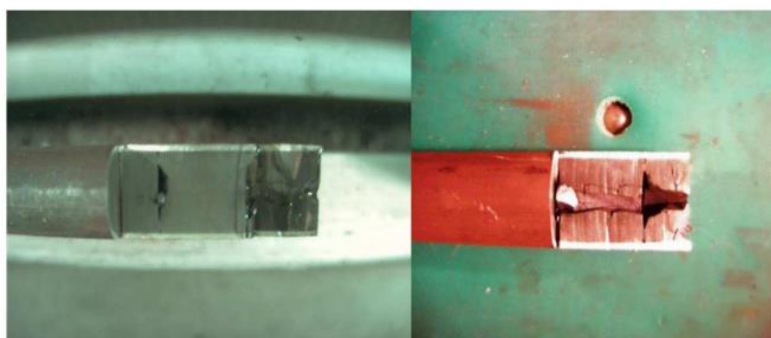


**Ilustración 3.4:** Segmentos revestidos utilizados en los experimentos 42MID. Fuente: (31).

**Tabla 3.1:** Combustibles gastados estudiados.

Muestra	42FULL	42 MID	54 FULL	54MID	60 FULL	60 MID
Longitud (mm)	2,8 ± 0,1	7,1 ± 0,1	2,5 ± 0,1	3,8 ± 0,1	4,3 ± 0,1	4,0 ± 0,1
Masa con vaina (g)	2,3614 ± 0.0001	6,1124 ± 0.0001	2,0600 ± 0.0001	2,0614 ± 0.0001	3,4545 ± 0.0001	3,3174 ± 0.0001
Masa sin vaina (g)	1,79 ± 0,05	4,65 ± 0,05	1,64 ± 0,05	2,06 ± 0,05	2,62 ± 0,05	2,51 ± 0,05
Área superficial (mm <sup>2</sup> )	500 ± 10	600 ± 160	416 ± 10	416 ± 10	460 ± 10	460 ± 10
Tipo reactor	BWR	BWR	BWR	BWR	PWR	PWR
<sup>235</sup> U enriquecimiento (%)	3,67	3,67	4,2	4,2	3,95	3,95
N.º ciclos de irradiación	5	5	7	7	5	5
Tamaño de grano	15,0 ± 0,1	15,0 ± 0,1	10,1 ± 0,1	10,1 ± 0,1	6,4 ± 0,1	6,4 ± 0,1
FGR (%)	2,3	2,3	3,9	3,9	13,6	13,6
Burn-up (GWd/tU)	45	45	58	58	63	63
Linear Power Density (W/cm)	215	215	160	160	255	255

Al ser muestras en pastilla, los granos que se encuentran en la parte interna de las pastillas no garantizan que lleguen a tener contacto con las disoluciones lixiviantes con lo que aumenta la liberación de los RN que provienen de esa zona. Se espera que las muestras de la parte central del combustible muestren la contribución de los límites de grano al IRF. En cambio, los experimentos con muestras de la zona ‘rim’ del combustible permiten ver la contribución de los gránulos externos (véase Ilustración 3.5)



**Ilustración 3.5:** Sección de corte longitudinal para determinar los límites de los gránulos en el combustible 54BWR y 42BWR. Fuente: (31).

### 3.3. Inventario

El inventario es la cantidad de RN contenido en el combustible una vez irradiado. Este se expresa en  $g$   $RN / g$  muestra. Los valores de inventario se pueden obtener de manera teórica, mediante el uso del código ORIGEN, o experimentalmente. La determinación teórica del inventario permite obtener el inventario total de CNG. La determinación del inventario de los PF proporciona los datos necesarios para la caracterización de los residuos de CNG, pues, para poder comparar las velocidades de disolución de un RN y el uranio es necesario conocer la cantidad relativa de dicho radionucleido y del uranio en el combustible.

### 3.4. Modelo matemático

El modelo matemático empleado para la modelización es el SERNIM, como se dijo anteriormente es un modelo semi-empírico de orden uno. El modelo se basa en dos suposiciones que son (23):

- La concentración total de un radionucleido medida en la solución de lixiviación es la suma de las concentraciones de radionucleidos, que provienen de todas las fuentes del SNF. El modelo no tiene en cuenta ninguna precipitación de fase secundaria después del proceso de disolución. Por este motivo, se ajustará a los datos experimentales obtenidos en experimentos diseñados para evitar la precipitación.
- La liberación del radionucleido de cada fuente sigue una cinética de primer orden

Es necesario determinar, para cada radionucleido, los diferentes parámetros del SERNIM. Esto es posible siguiendo el siguiente algoritmo (1).

#### 3.4.1. Ajuste del Uranio

Primero se lleva a cabo el ajuste del uranio. En este primer paso se tienen en cuenta dos contribuciones que son: primera fase o fase oxidativa del uranio y segunda fase o fase de disolución de la matriz del uranio (1).

$$m_U(t) = m(ox)_{U,\infty} \cdot (1 - e^{-k_{ox} \cdot t}) + m(ma)_{U,\infty} \cdot (1 - e^{-k_{ma} \cdot t}) \quad (Ec. 3.2)$$

Los moles totales de uranio serán iguales a la suma de los moles de uranio de ambas contribuciones por lo que puede llevarse a cabo el balance de masa siguiente:



$$m(ma)_{U,\infty} = m_{U,Total} - m(ox)_{U,\infty} = \frac{M_{Muestra} \cdot H_U}{MW} - m(ox)_{U,\infty} \quad (Ec. 3.3)$$

Donde  $M_{Muestra}$  es la masa de las muestras en este caso las pastillas de  $UO_2$ ,  $H_U$  es el inventario de uranio que se obtiene dividiendo los gramos de uranio/ gramos de muestra y por último  $MW$ , la masa atómica, los resultados se pueden observar en el Anexo A, en el apartado A3.

Vemos que los moles de la disolución de la matriz se pueden obtener del inventario de tal manera solo habría que ajustar 3 parámetros que son:  $m(ma)_{U,\infty}$ ,  $k_{ox}$ ,  $k_{ma}$ . Una vez se tienen estos parámetros, se procede a la modelización de la liberación de los diferentes RN.

### 3.4.2. Modelización de los RNs

Una vez encontrados los valores anteriores, se calcula el porcentaje molar de las dos contribuciones:  $m(gap)_{U,\infty}$  y  $m(ma)_{U,\infty}$ . El siguiente paso es el de predecir la liberación de los otros RN que se encuentran en el CNG como si fuesen liberados congruentemente con la matriz. Para esto, se utilizan los parámetros obtenidos para el uranio. Las constantes cinéticas  $ox$  y  $ma$  se dejan igual para todos los RN y los moles en las contribuciones “ $ox$ ” y “ $ma$ ” se deben adaptar mediante el uso del inventario y el porcentaje molar.

$$m(ox, U)_{c,\infty} = m_{c,Total} \cdot \frac{m(ox)_{U,\infty}(\%)}{100} = \frac{M_{Muestra} \cdot H_c}{MW} \cdot \frac{m(ox)_{U,\infty}(\%)}{100} \quad (Ec. 3.4)$$

$$m(ma, U)_{c,\infty} = m_{c,Total} \cdot \frac{m(ma)_{U,\infty}(\%)}{100} = \frac{M_{Muestra} \cdot H_c}{MW} \cdot \frac{m(ma)_{U,\infty}(\%)}{100} \quad (Ec. 3.5)$$

Con los nuevos parámetros y usando la ecuación (Ec. 3.2) se pueden calcular los moles liberados del radionucleido en función del tiempo y compararse con los experimentales. Puesto que los valores del modelo se obtienen asumiendo que hay disolución congruente, en este momento pueden pasar dos cosas:

- Si el RN se disuelve congruentemente con la matriz, el modelo se ajustará a los valores experimentales por lo que el radionucleido no estará segregado en el combustible y, entonces, no contribuye al IRF.
- Si el RN no se disuelve congruentemente con la matriz, el modelo dará resultados diferentes a los experimentales, que pueden ser mayores o menores:

- Si los valores del modelo son mayores que los experimentales, la liberación del radionucleido se produce más lentamente que la de la matriz. Esto se espera de RN que se segregan de la matriz formando fases sólidas más insolubles que la propia matriz, como por ejemplo partículas metálicas, que se conocen con el nombre de partículas  $\epsilon$ . Como su disolución será más lenta, no se considera que contribuyan al IRF.
- Si los valores del modelo son inferiores que los experimentales, se asume que el RN se segrega de la matriz del combustible, dando lugar a una liberación más rápida, por lo que el radionucleido sí que contribuirá al IRF. En este caso, el mecanismo real de liberación que sigue ese RN tiene una componente más que debe ser introducida en el modelo en forma de nueva contribución (contribución "seg"), añadiendo dos nuevos parámetros a la ecuación:  $m(\text{seg})C$ ,  $\infty$  y  $k_{\text{seg}}$ .

### 3.5. Comparación de los resultados experimentales

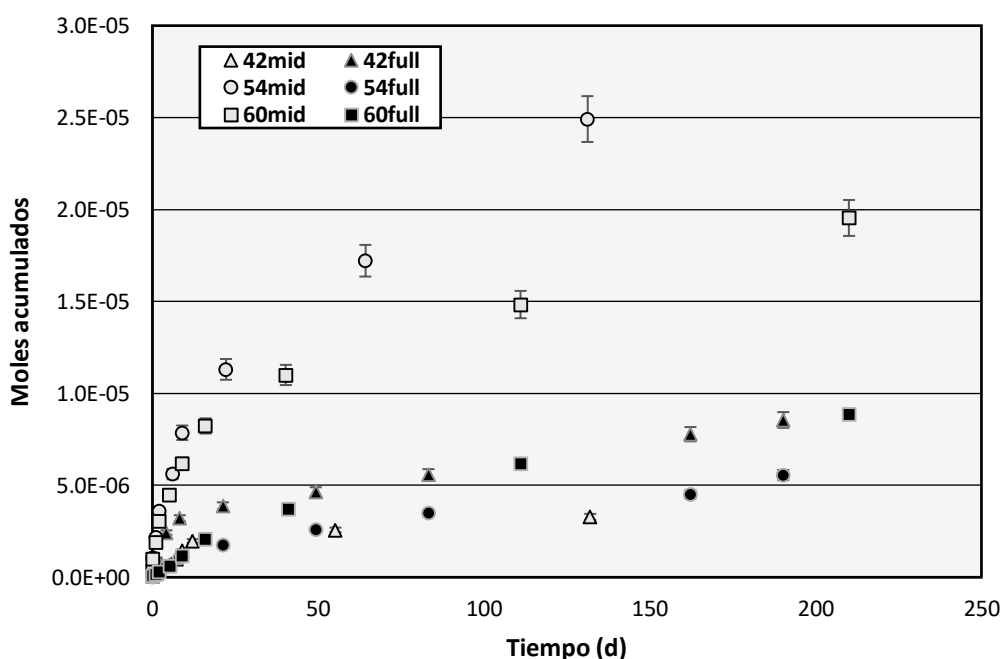
A continuación, se analiza los resultados experimentales para cada muestra y para todos los elementos a estudiar en este trabajo. Saber el lugar de donde proceden los radionucleidos que se están liberando a la disolución en los procesos de lixiviación no es evidente. Un mismo radionucleido puedes estar liberándose al mismo tiempo de varias localizaciones, ya que los procesos comentados anteriormente tienen lugar de forma simultánea. Los experimentos de lixiviación proporcionan la variación de la concentración de los radionucleidos con el tiempo y el método que se ha comprobado útil para tener una idea de la procedencia de los radionucleidos es asumir que la liberación desde cada una de las localizaciones (huelgo, límite de grado, matriz) tiene su propia cinética y modelizar los resultados teniendo en cuenta la combinación de las ecuaciones de velocidad de todos estos procesos.

Por tanto, los resultados que se muestran a continuación se podrían dividir en dos partes. Por un lado, se muestra la disolución de diversas pastillas de combustible gastado (experimentos llevados a cabo por varios grupos de trabajo y recogidos en este trabajo). Por otro lado, se aplicará un modelo matemático (22) que incorpora la cinética de disolución de las diferentes partes de la pastilla de combustible, a través del ajuste del modelo a los datos experimentales, se extraerán conclusiones acerca de la procedencia de los radionucleidos que están siendo liberados.

### 3.5.1. Comparación de los resultados de los experimentos MID y FULL

#### Uranio

Los valores experimentales se pueden observar en el capítulo de Anexos. Examinamos los resultados obtenidos y nos percatamos de que para un GQ de 42 GWd/tU, se disuelve más cantidad de uranio en la muestra FULL a diferencia del MID, lo esperado es que sea al revés, que la muestra MID segregara más cantidad de uranio puesto que se prevé más cantidad de Uranio en las muestras MID ya que hay más superficie de sólido expuesta a la disolución. Por el contrario, esta mayor cantidad de uranio en la muestra FULL puede ser debido a una mayor peroxidación de la muestra, que es respaldado por una mayor liberación de RNs sensibles al Redox, como es el caso del Tc y Mo (32). Observamos que para un GQ 54 GWd/tU y 60 GWd/tU, en los dos casos la muestra MID disuelve más cantidad de uranio que las muestras FULL. En la gráfica 3.1 vemos como en la zona oxidativa tanto el 42MID y el 42FULL tienen un comportamiento parecido en los primeros 7-14 días, cuando transcurre este tiempo vemos que la muestra MID comienza a disminuir la segregación de moles y entra en la segunda fase, más lenta (matricial), en cambio la muestra full tarda una semana de más en llegar a esta fase más lenta. En cambio, para los casos 54 y 60 GWd/tU vemos que en la zona oxidativa en ninguno de los dos casos en esta fase coinciden ni se segregan de forma similar. No se observa una correlación entre a más GQ mayor disolución de uranio. Por último, vemos que la muestra 54MID es el que más uranio disuelve a diferencia del caso 42MID que es el que menos lo hace (véase Gráfica 3.1).

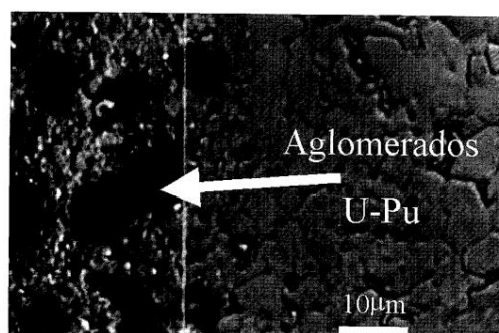


Gráfica 3.1: Representación de todos los valores experimentales del U para todos los GQ, así como MID y FULL.

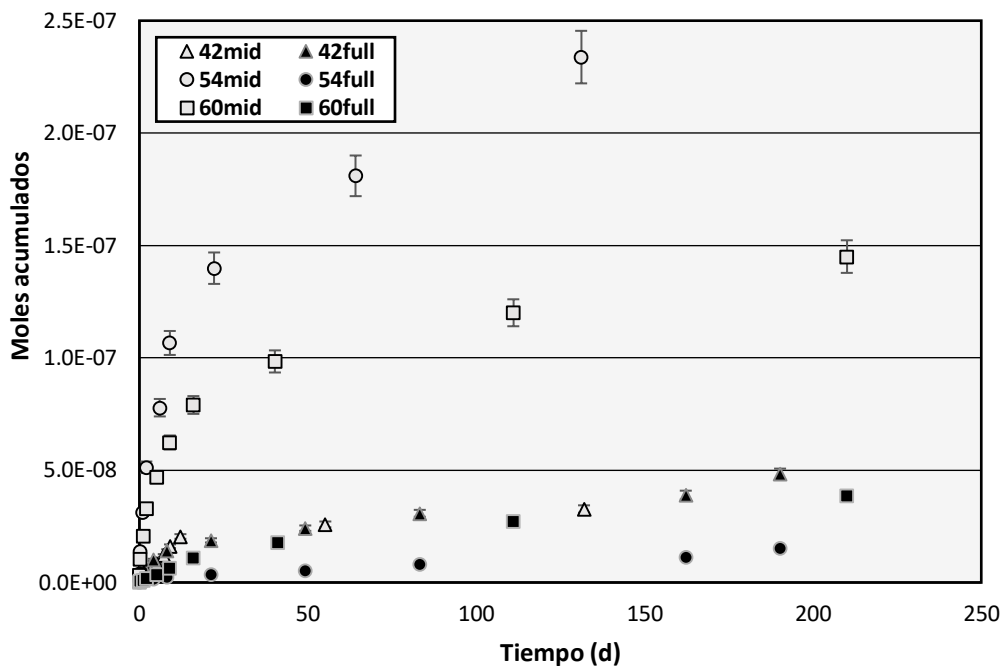
## Plutonio

Para el caso de GQ 42 GWd/tU vemos que tanto la muestra MID como el FULL a diferencia del uranio, donde había mayor segregación del FULL en este caso los dos tienen una acumulación de moles muy parecidos como se puede observar en la gráfica 3.2. Esto es debido a que el Pu no presenta una modificación de su comportamiento debido a preoxidaciones del material, pero si aun así se esperaría una mayor disolución de Pu en el caso MID y vemos que no da a lugar. Esto puede ser debido a que, el plutonio suele estar en su mayoría en los aglomerados U-Pu (véase Ilustración 3.6) y durante la irradiación que sufre el CNG la porosidad en estos aglomerados aumenta mucho más que en la matriz que los contiene, por lo que el acceso de lixivante es mucho más asequible y por tanto genera mayor liberación de Pu. Esto genera también que se disuelva de igual manera más uranio y la diferencia entre U-Pu sea mayor (33).

Por lo que hace en el caso del 54 y 60 GWd/tU, las muestras MID segregan más cantidad de plutonio que las muestras FULL, observamos que en los dos casos hay una diferencia de orden de 10. Por último, observamos como tras transcurrir 250 días, la muestra 54MID es el que más cantidad segrega a diferencia del 54FULL siendo la que menos lo hace.



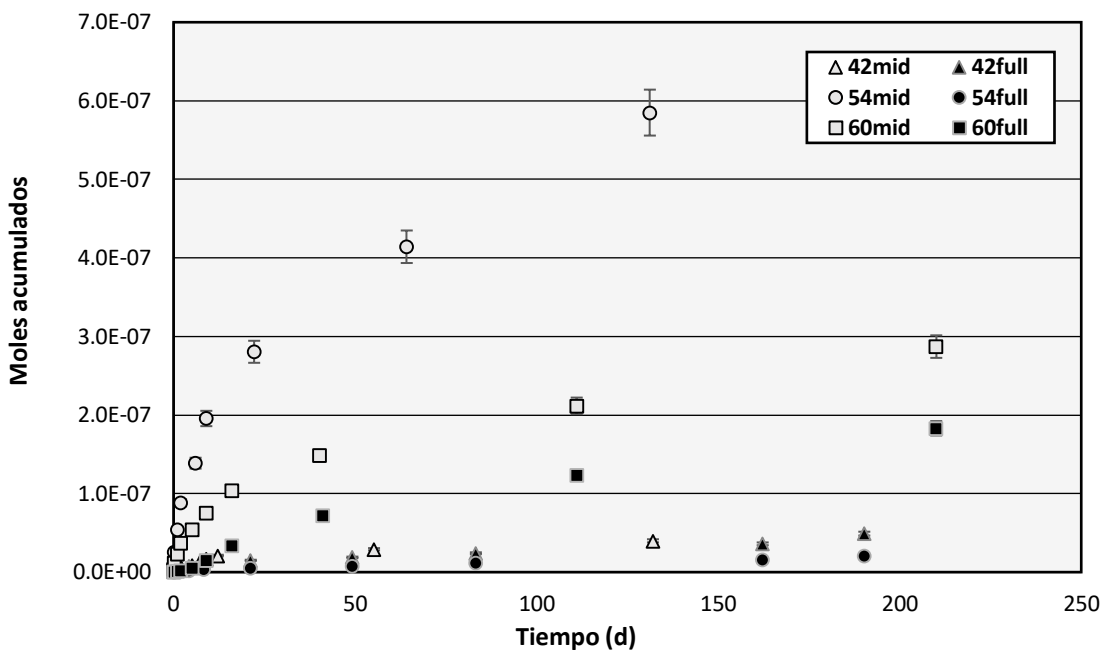
**Ilustración 3.6:** Combustible MOX. Detalle de aglomerados de U-Pu en una matriz de UO<sub>2</sub>. **Fuente:** (33).



Gráfica 3.2: Representación de todos los valores experimentales del Pu para todos los GQ, así como MID y FULL.

### Neodimio

Para el neodimio en el caso del GQ 42 GWd/tU, vemos como en los primeros 200 días la muestra MID disuelve algo más de Nd que la muestra FULL, aunque son diferencias muy pequeñas, si se analizara en un intervalo de tiempo más largo se podría esperar mayor diferencia entre el MID y el FULL. Por lo que hace los casos 54 y 60 GWd/tU, se observa el mismo resultado, en el caso 54 GWd/tU vemos que hay más neodimio segregado para el MID y de igual manera en la 60 GWd/tU como vuelve a ser el FULL la muestra que menos cantidad de elemento en este caso neodimio disuelve. Y de nuevo el caso 54MID es el que más segrega a diferencia del 54FULL el que menos lo hace (véase Gráfica 3.3).

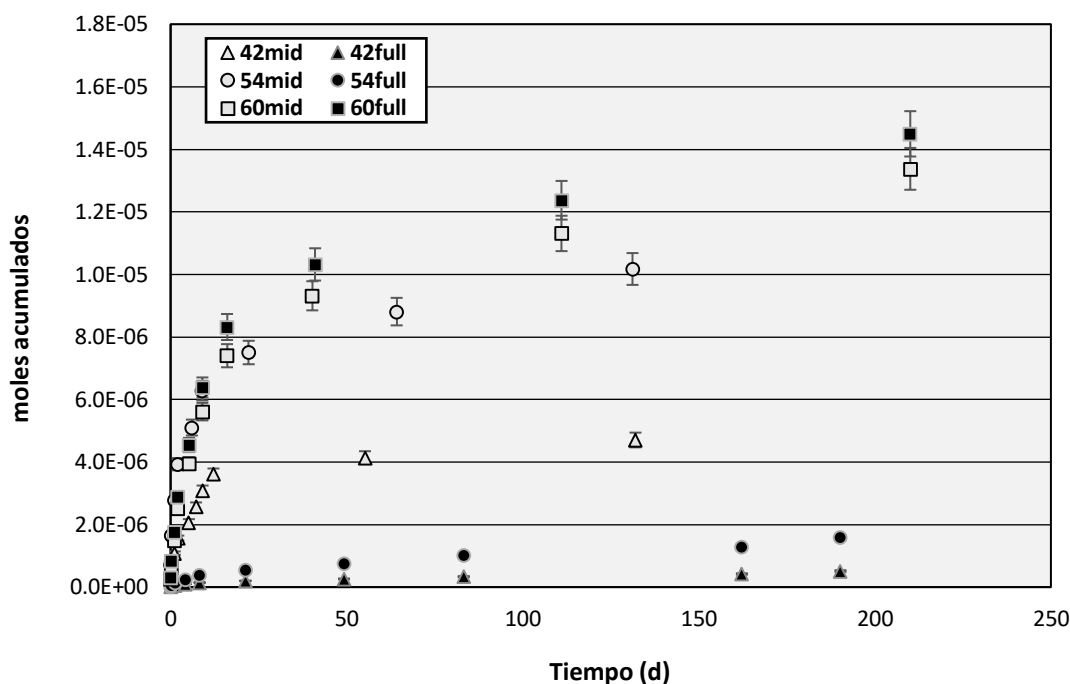


**Gràfica 3.3:** Representación de todos los valores experimentales del Nd para todos los GQ, así como MID y FULL.

### Cesio

Analizando la gráfica 3.4 podemos observar cómo, el 42MID disuelve más cesio que el caso FULL. Este patrón se repite también en el caso del 54MID y 54FULL, pero vemos que, para un GQ de 60, tanto el MID como el FULL tienen una evolución muy parecida desde los primeros días. Observamos que en la primera fase los dos disuelven cantidades de Cs muy parecidas. Aun así, vemos que a medida que pasa el tiempo las diferencias aumentan, pero son diferencias muy pequeñas. Varios autores dicen que, cuanto más % de FGR (véase en la tabla 3.1), más Cs se disolverá ya que en este caso el efecto del MID y FULL como en otros casos, no afecta tanto puesto que la liberación es tan grande que la diferencia no es relevante. Sin tener en cuenta al uranio, el cesio es el RN que más segrega esto puede deberse a su gran movilidad y una fracción importante de este se encuentra en huecos, grietas y límites de grano que con el primer contacto con el agua hace que segregue con mayor velocidad (32).

El inventario y la segregación son dependientes del GQ y las condiciones del reactor, así como el gradiente de temperatura desde el centro hasta el borde de la pastilla de combustible. El cesio no tiene ninguna fase en solución acuosa que le limite la solubilidad (25). Por ende, se prevé que a mayor degradación del CNG o a mayor GQ de la muestra, más cantidad de Cs va a disolver, y podemos observar que efectivamente, analizando las muestras MID, cuanto más GQ tiene la muestra, más cantidad de moles disuelve y lo mismo ocurre con los experimentos FULL.

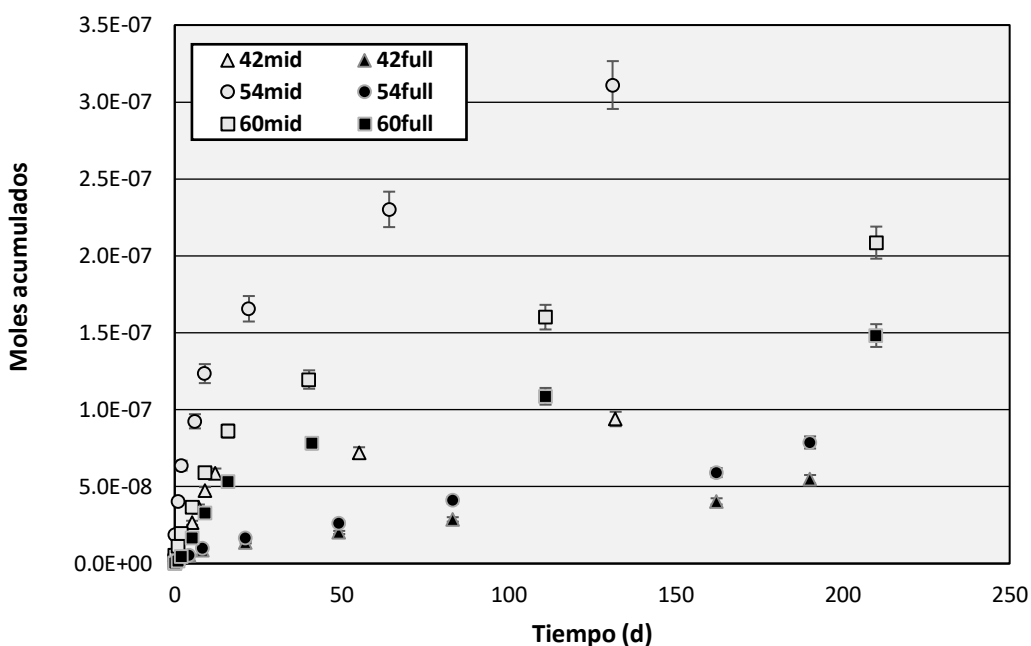


Gráfica 3.4: Representación de todos los valores experimentales del Cs para todos los GQ, así como MID y FULL.

### Estroncio

El Estroncio igual que el cesio se suele encontrar en los límites de grano, pero este no tiene la misma movilidad que el cesio (32) por ello no se espera que segregue tanto ni tan rápido, podemos observar que para el 42 GWd/tU como para el 54 GWd/tU y 60 GWd/tU, las muestras MID liberan más cantidad de estroncio en comparación a las muestras FULL. Vemos que para el caso 54 la muestra MID comienza a segregarse a una velocidad mucho mayor, así como mayor cantidad, esto se puede observar ya los primeros días. En cambio, vemos que para el 60MID y 60FULL los primeros días (10-16) los valores de moles disueltos son bastante parejos, una vez entra en la zona de transición se observa que comienza a haber más divergencia y vemos que ya pasado 40 días, el 60MID ronda en valores de  $10^{-7}$  y el 60 FULL de  $10^{-8}$ . La solubilidad del Sr podría estar controlada por la formación de sólidos como estroncianita y/o la celestita, pero como se verá en el apartado 3.6 (Estroncio), la formación de éstos no es posible en las condiciones de los experimentos. Por otra parte, se sabe que la liberación del estroncio no es influenciada por estados superficiales del CNG, eso implica que el estroncio no es susceptible a una preoxidación del CNG estudiado, si es cierto que valores más altos de Sr se encuentran en muestras de mayor oxidación ya que su disolución se ve controlada por la degradación de la matriz (33) por ello a mayor disolución de uranio mayor será del Sr.

Como se dijo, se espera que, a mayor degradación de la muestra y por ende mayor disolución de uranio, mayor cantidad de Sr se disuelva, esto podemos observar para las muestras FULL, donde a mayor GQ más moles de Sr se disuelve. Para los casos MID, la muestra 42MID es el que menos disuelve seguido del 60MID y por último el 54MID, esto puede ser debido a que las muestras MID tienen más ciclos de irradiación, haciendo que la muestra este más degradada (véase Gráfica 3.5).



Gráfica 3.5: Representación de todos los valores experimentales del Sr para todos los GQ, así como MID y FULL.

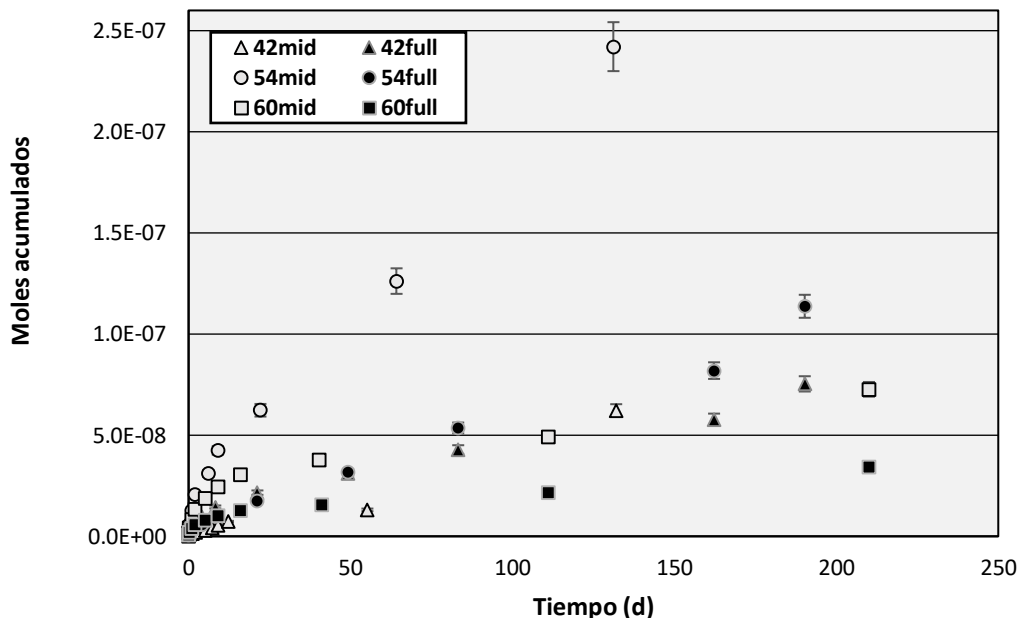
## Tecnecio

El Tc es un RN con muy elevada sensibilidad redox (32) (33) por ello, observamos que para el caso de GQ 42 GWd/tU, la muestra FULL disuelve más Tc al igual que hacia el uranio, en cambio, podemos ver que las muestras de GQ 54 y 60 GWd/tU, el comportamiento es muy parecido de nuevo al Plutonio y al Neodimio y de igual manera las muestras MID segregan más cantidad que los FULL, y de la misma manera se observa como la primera semana los valores son muy parejos y a partir de este tiempo se va divergiendo más los valores disueltos y la muestra MID segrega más cantidad que el FULL. El Tc como se dijo tiene una elevada sensibilidad redox, por ello es de esperar que a mayor oxidación del CNG y mayor degradación de la matriz del CNG, más Tc será disuelto.

Tanto la muestra 42FULL como 54FULL, pueden tener una preoxidación de la muestra que les permite una mayor disolución. También podemos observar como para el caso Tc, la muestra 54FULL es el



segundo que más segrega a diferencia de los demás RN, donde suele ser normal verle como el experimento que menos se disuelve (véase Gráfica 3.6).

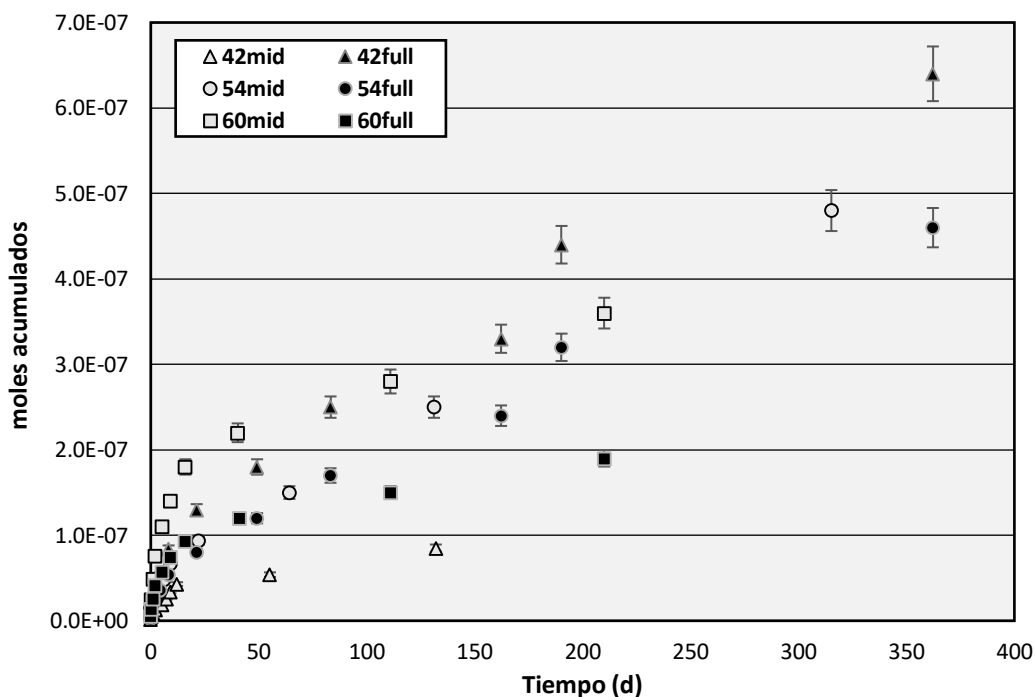


Gráfica 3.6: Representación de todos los valores experimentales del Tc para todos los GQ, así como MID y FULL.

### Molibdeno

En la Gráfica 3.7 podemos ver como en el caso de un GQ de 42 GWd/tU, se observa una similitud en los resultados en la primera fase (oxidativa), pero una vez empieza la segunda fase de segregación, se observa con claridad como la muestra FULL segrega 5 veces más de molibdeno que el 42MID. El molibdeno con un GQ de 54 GWd/tU, las muestras que segregan con valores muy similares de tal manera que se acaban solapándose. Esto se puede explicar porque el Mo es un elemento de sensibilidad moderada a la oxidación del combustible, haciendo que aumente su velocidad si el CNG es sometido a ataques de oxidación (32) por ello se puede esperar que en las muestras de 42 y 54 GWd/tU, el caso FULL segrege más o tenga valores parecidos al MID. Otra causa puede ser debido a que, el Mo puede estar en diferentes fases (formando óxidos precipitados o metálicos) que tienen solubilidades distintas generando esta respuesta.

Por último, observamos como para un GQ 60 GWd/tU, el caso MID vuelve a segregar más cantidad de molibdeno. La presencia de Calcio disminuye la solubilidad de Mo, esto puede dar a entender los valores tan parejos de los casos 54MID y 54FULL, ya que la segunda muestra está en condiciones más oxidantes y la primera tiene una concentración de Ca mayor.



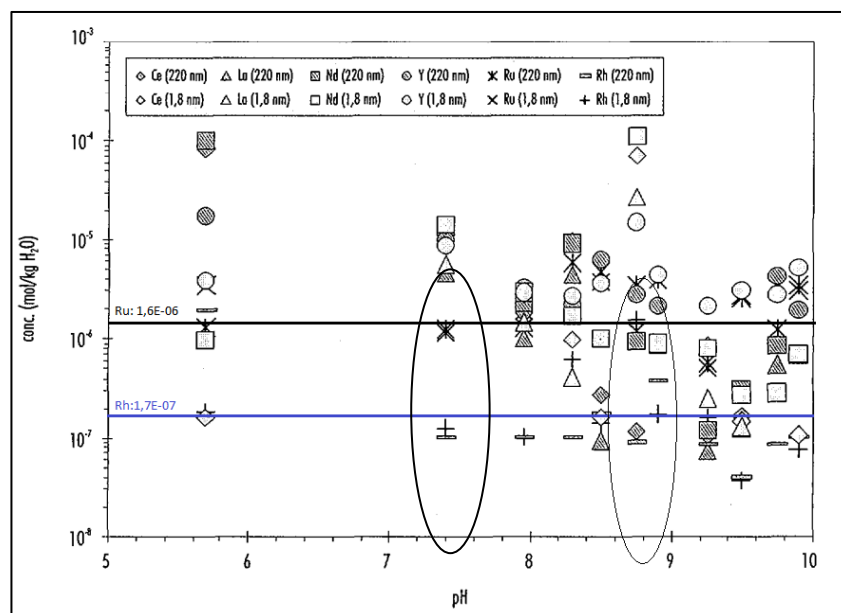
Gráfica 3.7: Representación de todos los valores experimentales del Mo para todos los GQ, así como MID y FULL.

## Rutenio y Rodio

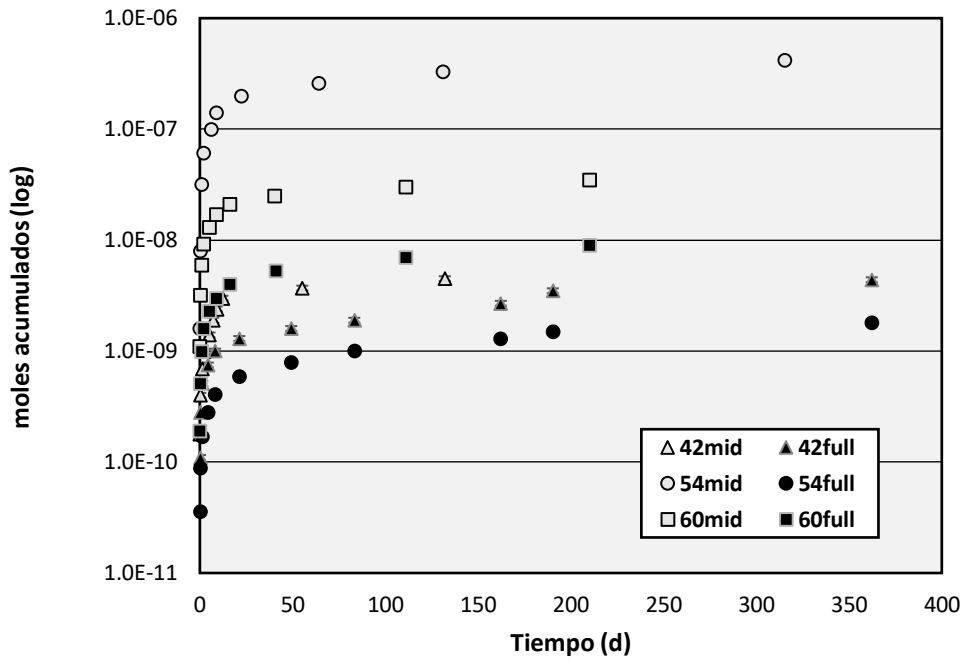
Podemos ver en la gráfica 3.8, como la muestra 54MID es el que más cantidad de Rh disuelve, diferencia del 54FULL que es el que menos disuelve. Por lo que hace a las muestras 42MID y 42FULL, los dos empiezan con valores muy parecidos, los primeros días segregan cantidades muy similares de rutenio, pero poco a poco observamos como el MID tiene una pendiente en la fase oxidativa muy grande haciendo que la mayor parte del rutenio haya sido desprendido en esta fase a diferencia del FULL que tarda casi el doble de tiempo en terminar la fase oxidativa, pero con una pendiente menor. Para las muestras 54MID y FULL vemos como el MID disuelve mucho más, 100 veces más a diferencia del FULL, si es cierto que se espera una mayor disolución del MID enfrente del FULL, pero podemos observar que en todos los RN estudiados el Ru y posteriormente el Rh, son los dos únicos RN donde se ve como el modelo 54MID segrega cantidades muy dispares a los demás modelos. Una respuesta a esto puede ser debido a que la muestra 54MID tiene una velocidad de liberación de uranio muy alta tanto en la primera como en la segunda etapa, puede ser debido a que la muestra tuviera un deterioro muy significativo permitiendo que se disolviera más Ru a diferencia de las demás muestras, lo mismo sucedería con el Rh. Otra explicación puede ser debido al pH. Para valores de pH (8-9) y en condiciones oxidantes, el Ru tiene los valores de concentraciones más elevados, por ello si observamos la gráfica 3.10 podemos ver como estos valores son equivalentes a valores de Mo, Tc y Nd y superiores al Pu y

Sr. Por último, para las muestras 60MID y 60FULL, ocurre lo mismo donde la muestra MID disuelve más rutenio que la muestra FULL.

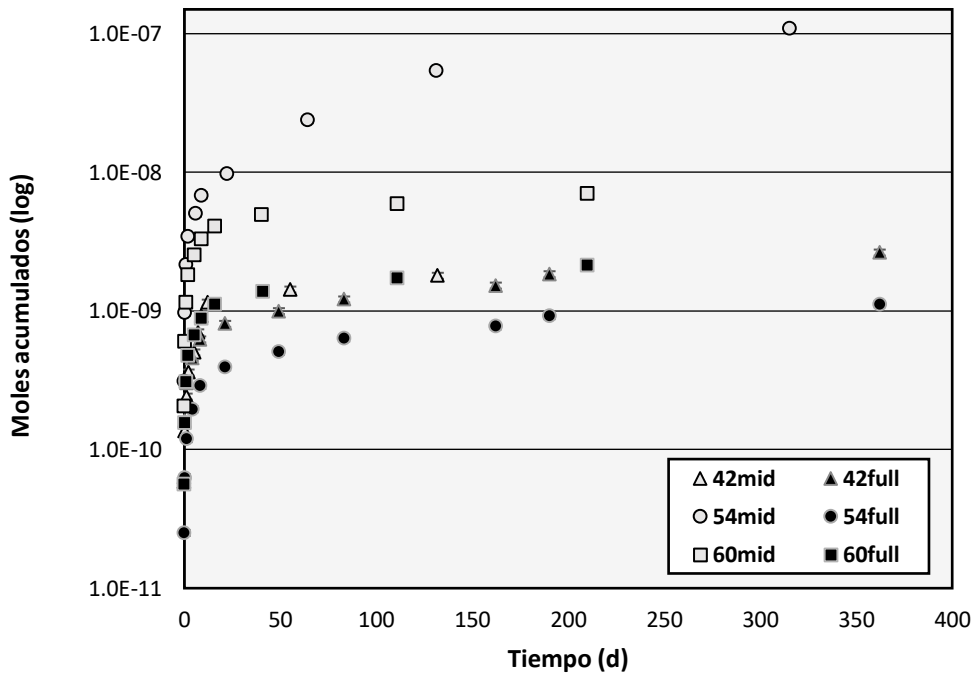
El Rh; se espera que tenga un comportamiento similar al Rutenio. Para el caso de un GQ 42 GWd/TU, observamos que se comporta igual, la muestra MID tiene una pendiente más grande en la fase oxidativa que dura aproximadamente 12 días a diferencia del FULL que dura casi el doble, aun así, no hay grandes diferencias en los valores segregados. Y como se comentó anteriormente, el Rodio vuelve a comportar igual, la muestra 54MID segrega mucho más que el resto de las muestras (10-100). Y vemos que la muestra 60MID también disuelve más cantidad que el FULL de este GQ. Una explicación puede ser debido al pH de la muestra para valores entre [7-8] y [8,6-9] podemos observar en la Ilustración 3.7 como se ajusta a las concentraciones de Ru y Rh que se obtienen en la muestra 54MID.



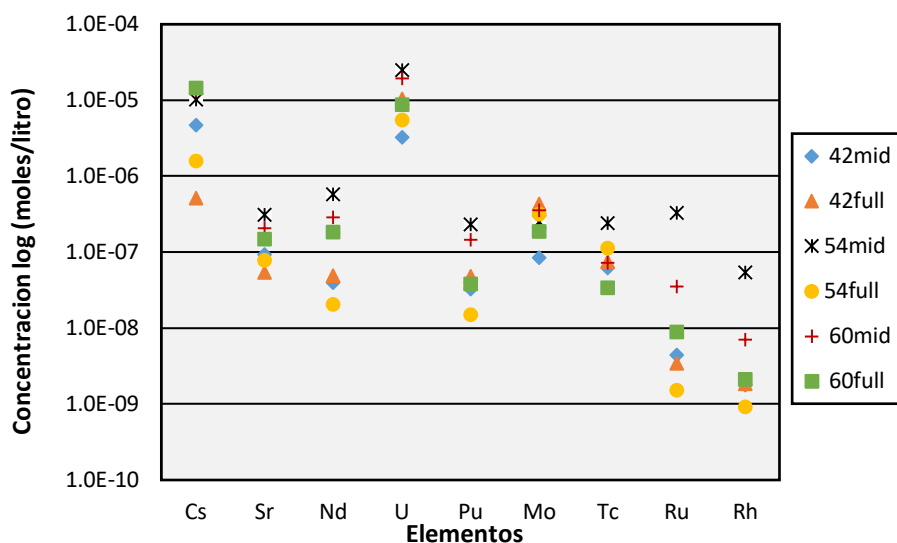
**Ilustración 3.7:** Variación de la concentración de los elementos minoritarios del SIMFUEL en agua granito bentonítica y condiciones oxidantes. Fuente: (33).



Gráfica 3.8: Representación de todos los valores experimentales del  $R_u$  para todos los GQ, así como MID y FULL.



Gráfica 3.9: Representación de todos los valores experimentales del  $R_h$  para todos los GQ, así como MID y FULL.



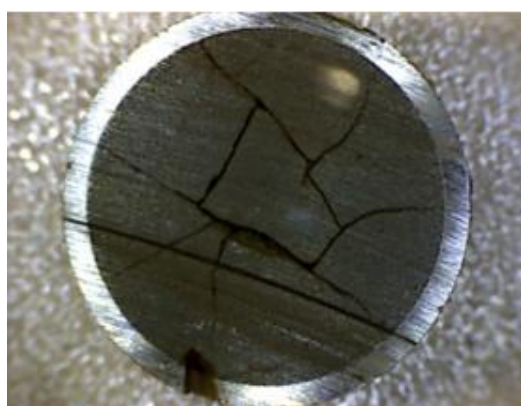
**Gráfica 3.10:** Representación para todos los elementos, moles totales acumulados experimentales entre una franja de tiempo que va de los 130 días para algunos modelos a 210 para otros.

Los valores se pueden observar en la tabla 3.2.

La muestra 54MID es el que más disuelve prácticamente en todos los elementos estudiados, principalmente en el caso del Rutenio y el Rodio, donde vemos una clara diferencia de valores. Por otro lado, vemos que la muestra que menos suele disolver es el 54FULL. Observamos la tabla 3.6 y podemos ver como la velocidad de reacción de la muestra 54MID tanto en la primera etapa como en la segunda es bastante mayor al resto de muestras. Puede ser debido a que la muestra está más irradiada por la cantidad de ciclos, un desgaste de la matriz mayor como podemos ver en la ilustración 3.8, la muestra presenta brechas muy significativas que ayudan a una mejor liberación. Para las muestras 42MID y 42FULL, suele disolverse poco, puesto que tiene menor desgaste de la muestra y no se espera una gran liberación de su parte. Observamos que la muestra MID suele disolver más cantidad como es de esperar, pero no hay una cuantiosa diferencia del FULL, observamos que, en los casos del Cs, Tc y Mo, la muestra FULL disuelve más que la muestra MID, de igual manera se disuelve más uranio causado por una preoxidación de la muestra. Para las muestras 60MID y 60FULL observamos que, la evolución en el tiempo para las dos muestras es parecida, en todos los casos exceptuando el Cs, la muestra MID disuelve más cantidad que la muestra FULL. Que la muestra FULL disuelva más cesio es debido a que a niveles tan grande de FGR no afecta el hecho de ser una muestra MID o FULL.

En las muestras MID observamos que, si aumentamos el grado de quemado, suele disolverse más cantidad, aunque no en todos los casos esto sucede tal que así. Observamos que en las muestras MID

el 54 es el que más suele disolver y para las muestras FULL el 55% de los casos lo hace el 60 FULL. Por ello no podemos decir que haya una correlación entre a mayor grado de quemado, mayor disolución ya que entran más factores para tener en cuenta. El Cesio junto al Uranio, son los elementos que más se disuelven. En el otro lado, el Rutenio y el Rodio son los elementos que menos disuelven, a excepción principalmente de la muestra 54MID que observamos que el Rutenio es el 4 elemento que más disuelve. Por último, para el resto de los elementos observamos que se encuentran en rangos entre  $10^{-6}$  y  $10^{-8}$  moles.



**Ilustración 3.8:** Sección transversal del CNG de GQ 54 GWd/tU, utilizada en el experimento de lixiviación. **Fuente:** (31).

**Tabla 3.2:** Disolución de moles para las 6 muestras estudiadas hasta los primeros 210 días.

Tiempo (d)	132,03	190,25	131,18	190,25	210,07	210,06
Muestras	42mid	42full	54mid	54full	60mid	60full
Cs	4,71E-06	5,16E-07	1,02E-05	1,58E-06	1,34E-05	1,45E-05
Sr	9,40E-08	5,48E-08	3,11E-07	7,87E-08	2,09E-07	1,48E-07
Nd	3,98E-08	4,90E-08	5,85E-07	2,06E-08	2,87E-07	1,83E-07
U	3,28E-06	1,06E-05	2,49E-05	5,56E-06	1,95E-05	8,87E-06
Pu	3,27E-08	4,83E-08	2,34E-07	1,52E-08	1,45E-07	3,86E-08
Mo	8,53E-08	4,36E-07	2,54E-07	3,19E-07	3,60E-07	1,88E-07
Tc	6,22E-08	7,54E-08	2,42E-07	1,14E-07	7,27E-08	3,44E-08
Ru	4,49E-09	3,49E-09	3,30E-07	1,52E-09	3,53E-08	9,02E-09
Rh	1,80E-09	1,84E-09	5,42E-08	9,19E-10	7,03E-09	2,13E-09

### 3.5.2. Grado de quemado Vs LWR

Para valores bajos de GQ, el LWP se encuentra en unos valores de 215 W/cm, al subir el BU, el LWP disminuye drásticamente hasta llegar a valores de 160 W/cm, pero al seguir subiendo el BU en vez de mantener la corriente y seguir bajando, vuelve a subir y llega hasta unos valores máximos de 255 W/cm (véase tabla 3.3).

**Tabla 3.3:** Valores de BU respecto al LWD.

Grado de quemado (GWd/tU)	45	45	58	58	63	63
Linear Power Density (W/cm)	215	215	160	160	255	255

### 3.6. Modelización

A continuación, se pueden ver los diferentes ajustes para cada uno de los RN estudiados en muestras. En primera instancia se ajusta el uranio para posteriormente llevar a cabo los ajustes de los demás RN con los parámetros obtenidos del uranio. Se ha llevado a cabo los cálculos mediante Excel y con el algoritmo expuesto anteriormente. También se ha calculado las velocidades de disolución mediante los parámetros obtenidos del uranio que se pueden contemplar en la tabla 3.5 y el área superficial que se puede contemplar en la tabla 3.4.

Con la ecuación 3.6 calculamos las velocidades de reacción.

**Tabla 3.4:** Área superficial de cada muestra.

Muestra	42MID	42FULL	54MID	54FULL	60MID	60FULL
Área superficial ( $mm^2$ )	600 ± 160	500 ± 10	416 ± 10	416 ± 10	460 ± 10	460 ± 10

$$r = \sum_c^N \frac{m(c)_{RN,\infty} \cdot \left(\frac{k_c}{86400}\right)}{\frac{S_{Muestra}}{10^6}} \left(\frac{mol}{m^2 \cdot s}\right) \quad (Ec. 3.6)$$

**Donde:**

$r \rightarrow$	Velocidad de disolución
$m(c)_{RN,\infty} \rightarrow$	Moles disueltos de RN para cada una de las contribuciones
$k_c \rightarrow$	Constante de disolución
$S_{Muestra} \rightarrow$	Área superficial

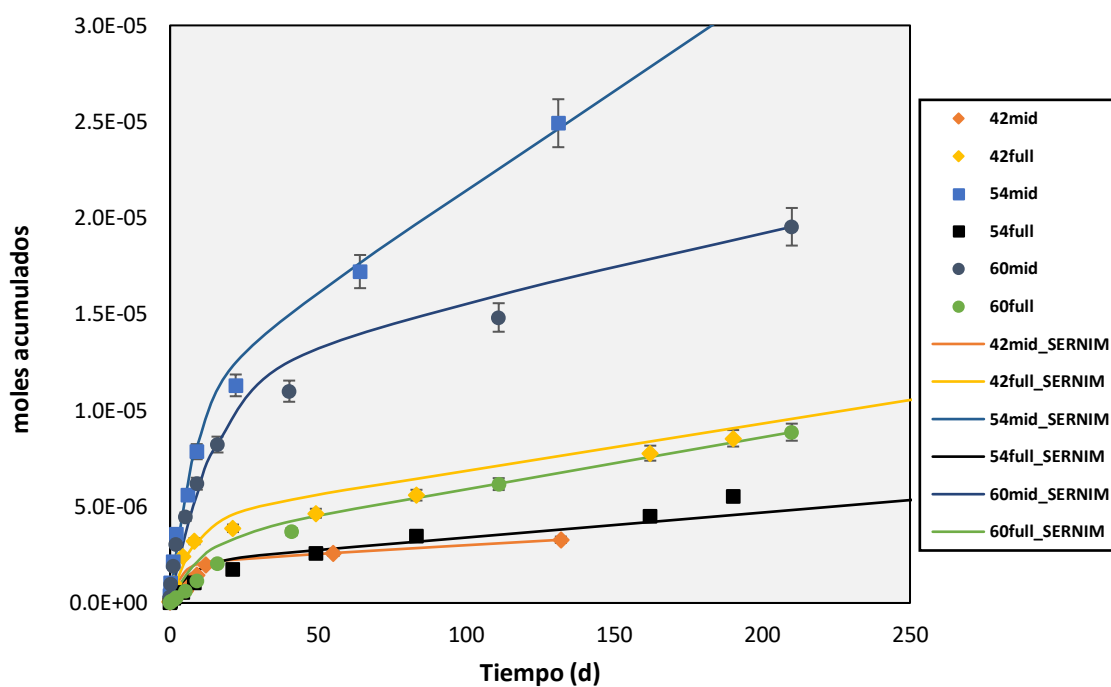
**3.6.1. Uranio**

El primer paso fue ajustar el modelo a los datos experimentales de liberación de uranio. Los ajustes se pueden observar en las gráficas 3.11, donde están ilustrados para cada grado de quemado las dos muestras estudiadas, el MID y el FULL. Observando la tabla 3.5, vemos que, aun variando los grados de quemado, el porcentaje de uranio que disuelve de la matriz se mantienen en todos los casos, se ve que la contribución de la fase inicial es muy baja para todos los casos. También observamos que en el caso del 42MID, su constante de oxidación es la más grande de  $0,28 \text{ (d}^{-1}\text{)}$ . Otra cosa que se observa en la tabla 3.6, es acerca de la velocidad de disolución, es que, las muestras MID tiene una  $r$  más grande de un orden de magnitud mayor a los FULL.

También se ve como la muestra 60FULL es el que más rápido disuelve uranio en la fase oxidativa, en cambio, la muestra 54MID es el que más rápido lo hace en la segunda etapa. Si nos fijamos en la gráfica 3.11, podemos observar cómo se explicó anteriormente, la muestra 42FULL disuelve más Uranio que la muestra 42MID esto se explicó anteriormente. Por lo que hace del ajuste, vemos que la muestra MID se ajusta mucho mejor tanto en los tramos iniciales como en los últimos tramos que son los que más nos preocupa, en cambio vemos que para el caso FULL, estos últimos tramos divergen un poco. Para un GQ de 54 GWd/tU observamos lo contrario, la muestra MID disuelve más uranio, aunque en este caso los dos modelos se ajustan bien, de nuevo la muestra MID se ajusta mejor sobre todo en la fase inicial a diferencia de la muestra FULL.

Por último, para un GQ de 60 GWd/tU, se vuelve a observar lo mismo, la muestra MID disuelve más uranio que la muestra FULL. El ajuste es muy bueno para los dos casos, y de nuevo se observa que el 60MID se ajusta mejor que el 60FULL, y de nuevo se observa como en la fase oxidativa el modelo FULL se ajusta peor.





Gráfica 3.11: Representación del Uranio para todas las muestras y la modelización.

Tabla 3.5: Valores obtenidos mediante SERNIM para el uranio.

Muestra	$m_{ox}(mol)$	$m_{ma}(mol)$	$m_{ox}(\%)$	$m_{ma}(\%)$	$k_{ox}(d^{-1})$	$k_{ma}(d^{-1})$
42mid	$2,10E-06 \pm 0,01E-05$	$7,64E-03 \pm 1,00E-04$	0,03	99,97	$0,28 \pm 10^{-4}$	$1,17E-06 \pm 10^{-7}$
42full	$5,50E-06 \pm 0,01E-04$	$7,64E-03 \pm 1,00E-04$	0,07	99,93	$0,06 \pm 10^{-4}$	$2,82E-06 \pm 10^{-7}$
54mid	$1,10E-05 \pm 0,05E-04$	$8,32E-03 \pm 1,00E-04$	0,13	99,87	$0,12 \pm 10^{-4}$	$1,07E-07 \pm 10^{-8}$
54full	$2,10E-06 \pm 0,05E-05$	$8,32E-03 \pm 1,00E-04$	0,03	99,97	$0,15 \pm 10^{-4}$	$1,52E-06 \pm 10^{-7}$
60mid	$1,20E-05 \pm 0,01E-04$	$3,07E-02 \pm 1,00E-04$	0,04	99,96	$0,06 \pm 10^{-4}$	$1,17E-06 \pm 10^{-7}$
60full	$3,20E-06 \pm 0,03E-05$	$3,07E-02 \pm 1,00E-04$	0,01	99,99	$0,10 \pm 10^{-4}$	$8,79E-07 \pm 10^{-8}$

**Tabla 3.6:** Velocidades de disolución del Uranio en cada fase.

Muestra	$r_{ox}(\text{mol}/\text{m}^2 \cdot \text{s})$	$r_{ma}(\text{mol}/\text{m}^2 \cdot \text{s})$
42mid	1,13E-08 ± 5,40E-10	1,73E-10 ± 1,50E-11
42full	7,64E-09 ± 1,39E-09	4,99E-10 ± 1,90E-11
54mid	3,60E-08 ± 1,67E-08	2,89E-09 ± 2,32E-12
54full	8,80E-09 ± 2,09E-09	3,61E-10 ± 2,40E-11
60mid	1,93E-08 ± 1,51E-09	9,04E-10 ± 7,70E-11
60full	7,82E-09 ± 7,55E-10	6,80E-10 ± 8,00E-11
Media $r_{ma}$ SIN tener en cuenta el 54MID		5,23E-10

### 3.6.2. Resto de RN

Una vez completado esta parte, que es la de ajustar el uranio con los datos experimentales mediante el uso de SERNIM, se procede a analizar el ajuste de los datos experimentales del resto de los elementos que se han estudiado en este trabajo. Los hemos dividido en 4 grupos acorde a lo que se observó durante el proceso de modelización.

- **Grupo 1:** Plutonio y Neodimio
- **Grupo 2:** Cesio y Estroncio
- **Grupo 3:** Tecnecio y Molibdeno
- **Grupo 4:** Rutenio y Rodio

Por último, se ha llevado a cabo las modelizaciones, se ha modelizado los elementos teniendo en cuenta el uranio más el inventario representado como “GQmid/full\_SERNIM”.

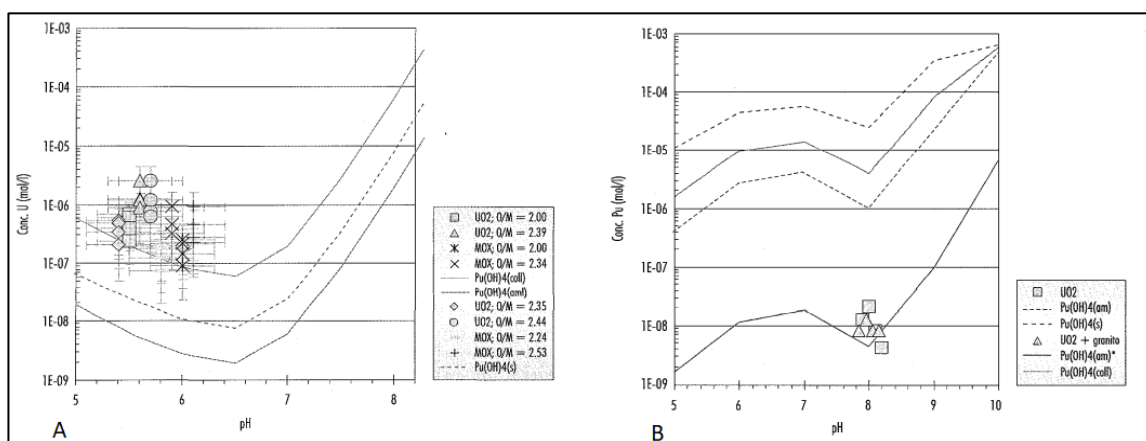
#### Grupo 1

##### Plutonio

En este primer grupo tenemos al Plutonio un actínido que se encuentra en disolución sólida con el  $UO_2$ , por lo que se espera que sea congruente con la matriz de este (33). Analizando la gráfica 3.12, vemos que la muestra 42MID se encuentra ligeramente por encima de los valores experimentales lo mismo ocurre con la muestra FULL, aunque este último tiene valores mucho más dispares que el caso MID. Para el caso de la muestra MID observamos que el primer tramo de pendiente se ajusta muy bien, pero a partir del inicio de del segundo tramo los valores experimentales nos dicen que empieza a estabilizarse en cambio, el modelo sigue subiendo sin llegar a estabilizarse. En cambio, la muestra FULL no se ajusta ni en la primera etapa ni en la segunda. Las muestras para un GQ 54 GWd/tU, nos muestran

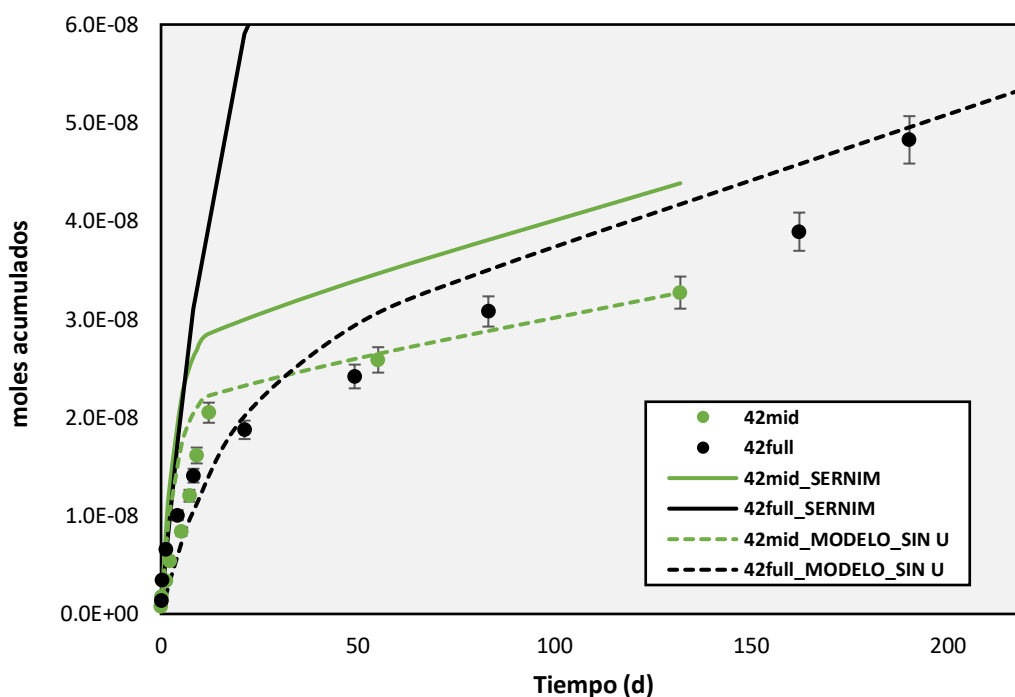
de que el modelo SERNIM se encuentra por debajo de los valores experimentales. Por último, para las muestras 60MID y 60FULL, observamos que de nuevo ocurre lo mismo que en el primer caso, los valores que obtenemos con el modelo son más grandes que los valores experimentales y de nuevo se observa un mejor ajuste de la muestra MID en el primer tramo a diferencia del FULL.

Vemos que se indica cierta independencia del plutonio hacia la matriz del CNG ya que, vemos que en ningún caso el modelo SERNIM se ajusta bien. Los resultados que obtenemos en las gráficas 3.12 y 3.15 pueden ser debido a una preoxidación de las muestras 42FULL causado por varios factores como el tiempo en el que ha estado en el aire libre o la zona de corte entre otros, esta preoxidación genera valores grandes en la primera etapa y por ello se ve esta diferencia significativa para la muestra 42MID esta diferencia es mucho más pequeña. Otra explicación puede ser debido a la precipitación de fases sólidas de menor solubilidad de Pu que impide al modelo SERNIM ajustarse bien (9) (33) como puede ser en las muestras 60MID y 60 FULL. Por otro lado, según (33), el plutonio no presenta cambios debido al tratamiento térmico a baja temperatura, por ello no evoluciona a estados de oxidación mayores que permitan que su solubilidad aumente. Como se dijo, se prevé la formación de una fase secundaria sólida, pudiendo ser como predominante:  $Pu(OH)_4$ . Para dar más peso a esta idea, se llevaron a cabo una serie de ajustes en (33) donde los valores de uranio se ajustan muy bien al modelo de control de la solubilidad por formación de una fase secundaria (véase ilustración 3.9).

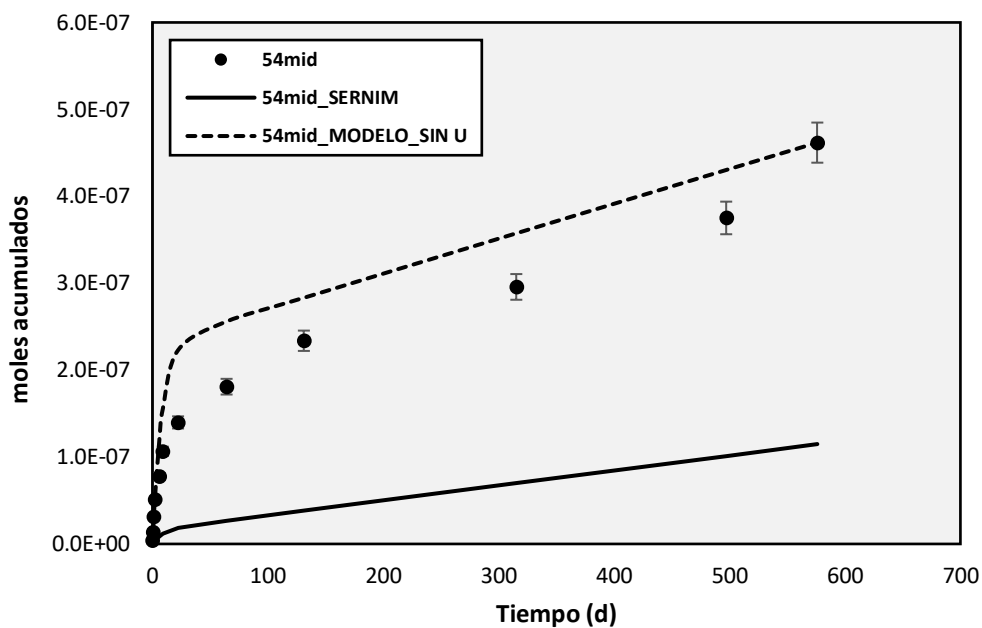


**Ilustración 3.9:** A: Concentración de plutonio experimental (procedente de combustibles  $UO_2MO_x$  O/M diferentes) y teórica en DIW. B: Concentración de plutonio experimental (combustible  $UO_2$ ) y teórica en SGW. Fuente: (33).

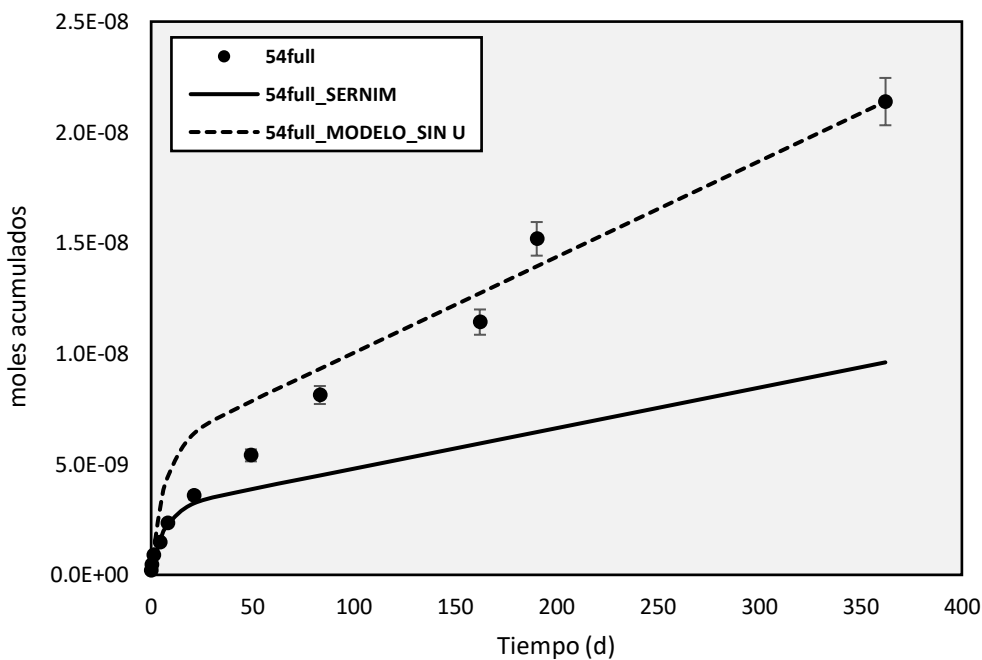
Aun viendo que el Pu no se ajusta en ninguna de las muestras estudiadas, esto no significa que el modelo SERNIM sea incongruente, al contrario, el modelo SERNIM es congruente con el Pu. En las muestras donde el modelo se encuentra por encima de los valores experimentales es debido como se dijo a una preoxidación de las muestras, así como formación de fases menos solubles. Pero observando la segunda etapa la más importante pues nos da la liberación a largo plazo, vemos como los puntos que obtenemos con el SERNIM son totalmente paralelos a los valores experimentales en este tramo, esto nos da una idea de que el plutonio se disuelve congruentemente con el uranio, pero la fase rápida condiciona los valores experimentales (en cantidad) de la segunda etapa.



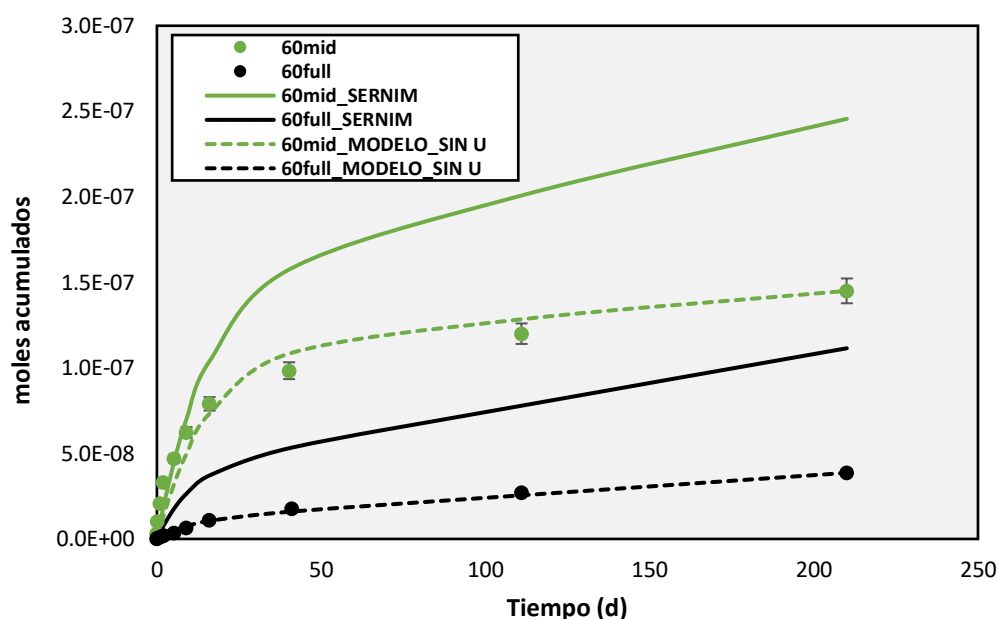
**Gráfica 3.12:** Representación de los valores experimentales del Pu y los ajustes pertinentes para GQ (42).



Gráfica 3.13: Representación de los valores experimentales del Pu y los ajustes pertinentes para GQ (54mid).



Gráfica 3.14: Representación de los valores experimentales del Pu y los ajustes pertinentes para GQ (54full).



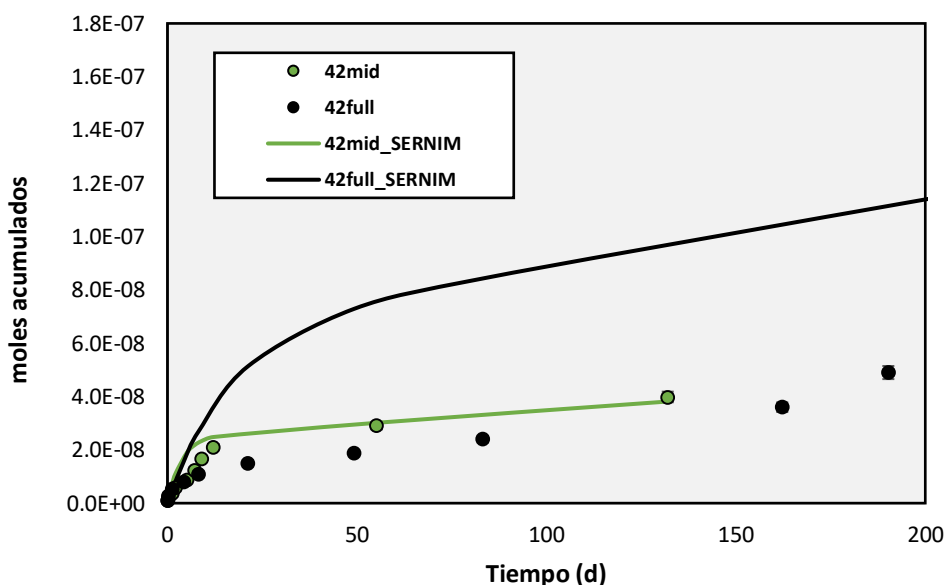
Gráfica 3.15: Representación de los valores experimentales del Pu y los ajustes pertinentes para GQ (60).

## Neodimio

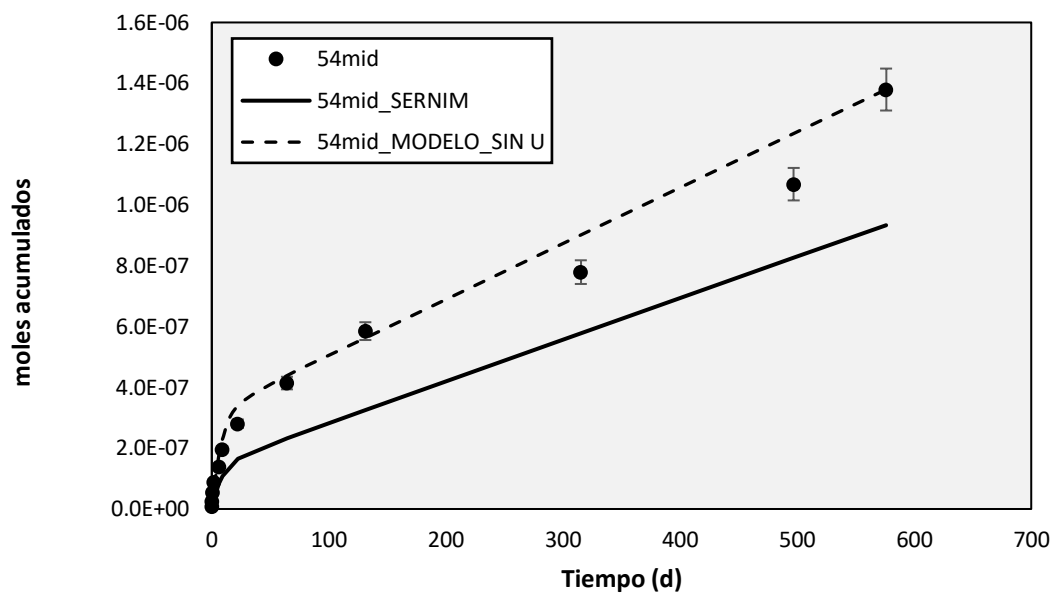
El otro integrante de este grupo 1 es el Neodimio los resultados se pueden observar en las tablas 3.16, 3.17, 3.18 y 3.19. Los actínidos y los lantánidos forman soluciones sólidas con el  $UO_2$ , por ello se espera que el Nd sea congruente. Analizando los resultados, vemos que la muestra 42MID se ajusta muy bien, por ello vemos que es congruente. En cambio, la muestra 42FULL observamos que los valores difieren mucho con los experimentales porque siguen subiendo cuando los experimentales se están estabilizando. En el caso del 54MID vemos que no se ajusta, los valores obtenidos se encuentran por debajo de los experimentales. En el caso del 54FULL se observa como sucede lo mismo que en el caso del 42FULL, los valores obtenidos con el SERNIM están por encima de los valores experimentales. Por último, observamos que el 60MID se ajusta muy bien a diferencia del 60FULL que vuelve a pasar lo mismo que el caso del 54MID. Cabe destacar de que las muestras MID se ajustan mucho mejor que las muestras FULL, tanto la muestra 42MID como la 60MID se han ajustado muy bien con el modelo SERNIM en cambio ninguna muestra de FULL se ajustado adecuadamente. En las muestras 42FULL y 54 FULL sucede lo mismo que en el caso del Pu, en la primera etapa los valores del SERNIM son muy grandes lo que condiciona la segunda etapa, generando que la curva este por encima de los valores experimentales en cambio en el caso de las muestras 42 y 54 MID no sucede.

El comportamiento de las muestras 54 y 60 MID puede ser debido a la accesibilidad del agua por los límites de grano ya que una parte del Nd se encuentra en el GB. También puede ser porque el ND está en otra fase ya que, sabemos que los lantánidos, como es el Nd dadas sus propiedades físicas y químicas, en general trivalentes, y los actínidos, trivalentes también, se podría esperar la formación de una solución sólida mixta carbonatada de fórmula empírica  $(AC(III), LA(III)_2)(CO_3)_3 \cdot xH_2O$  (33). El mismo comportamiento es observable en el caso del Pu para la muestra 42FULL. Para ambos RN se puede observar esta gran discrepancia entre los valores del primer ajuste y los experimentales.

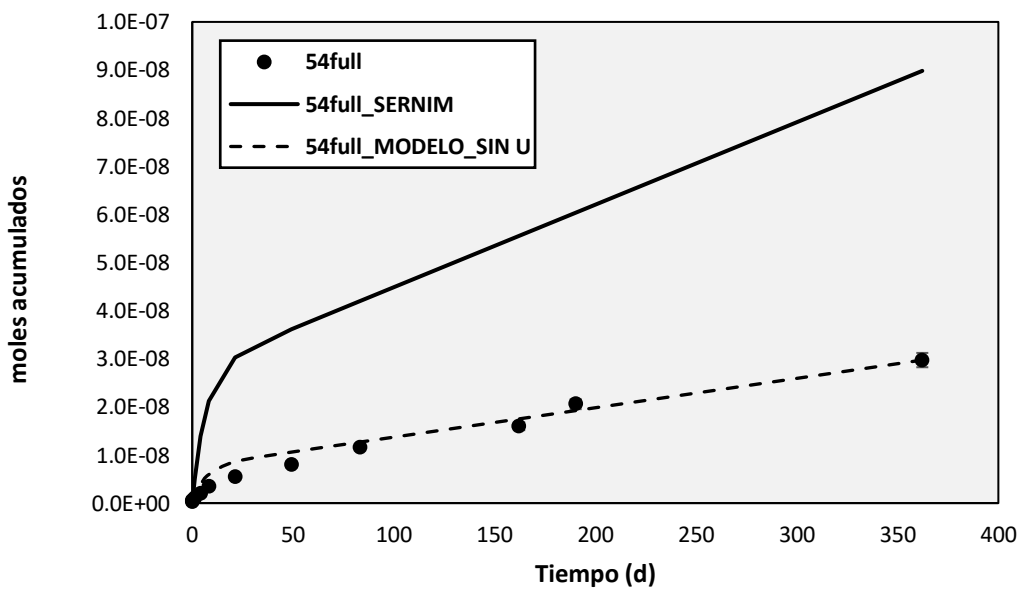
En los casos que no se ha podido ajustar con el modelo SERNIM, se ha llevado a cabo un nuevo ajuste llamado: "MODELO\_SIN U", en este ajuste se ha utilizado el mismo modelo semi empírico, pero sin tener en cuenta el uranio, es decir, se han calculado unos nuevos parámetros sin tener en cuenta los valores del uranio, estos parámetros se pueden observar en el Anexo. Observamos que, con este nuevo ajuste, todas las muestras se ajustan muy bien.



Gráfica 3.16: Representación de los valores experimentales del Nd y los ajustes pertinentes para GQ (42).

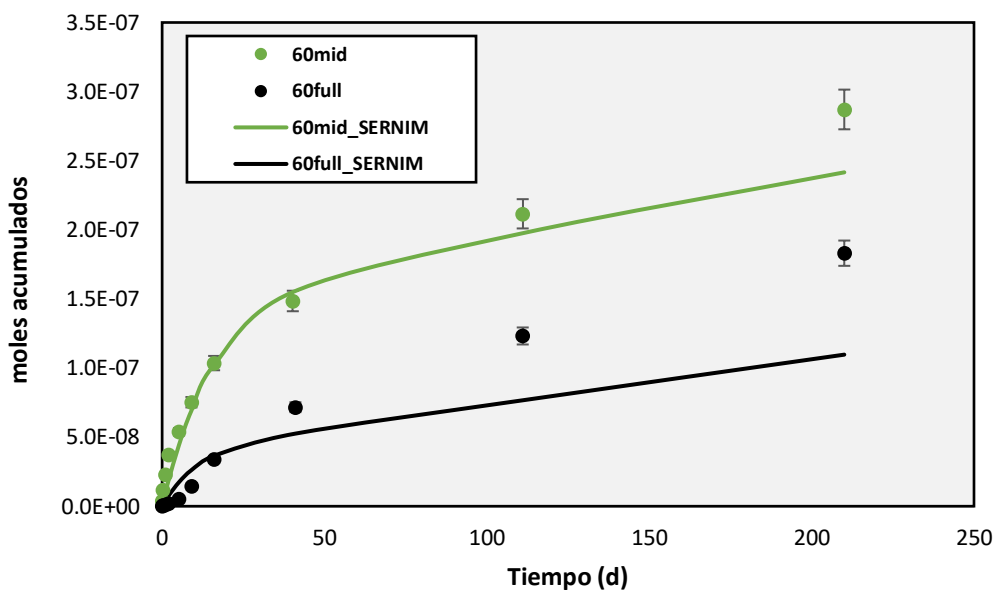


Gráfica 3.17: Representación de los valores experimentales del Nd y los ajustes pertinentes para GQ (54mid).



Gráfica 3.18: Representación de los valores experimentales del Nd y los ajustes pertinentes para GQ (54full).





Gráfica 3.19: Representación de los valores experimentales del Nd y los ajustes pertinentes para GQ (60).

## Grupo 2

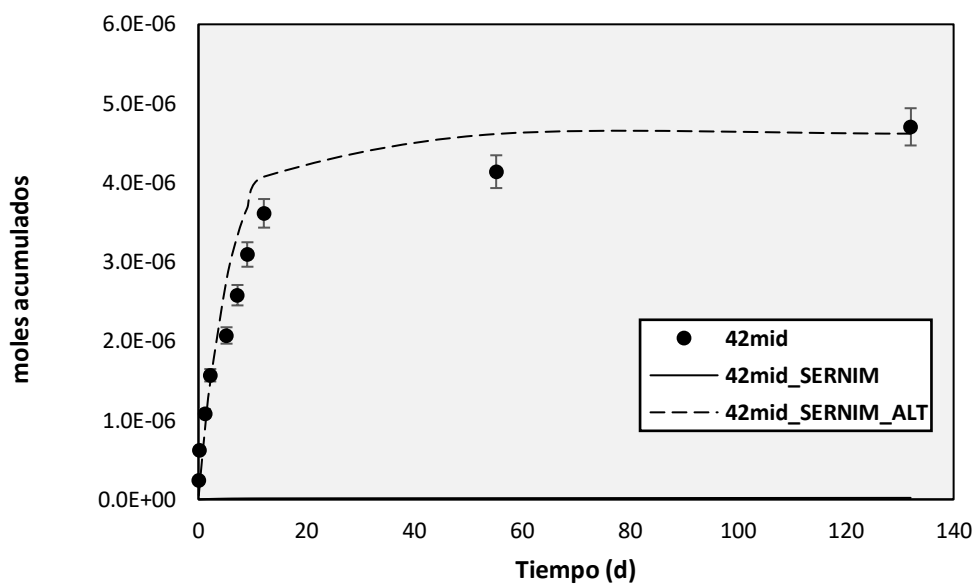
### Cesio

El cesio, a diferencia del anterior grupo, en todas las muestras se observa que es muy divergente al uranio. Los valores experimentales dicen un aumento de la liberación a mayor tiempo de experimento, pero los valores obtenidos del modelo nos dicen que no es así, que rápidamente se estabiliza. Está claro que hay una clara diferencia. Por ello se lleva a cabo un reajuste donde, se introduce una nueva contribución, ya que hay una contribución que proviene de los límites de grano donde el agua no tiene una fácil accesibilidad, donde se lleva a cabo la liberación de elementos segregados (32), y podemos ver como en todos los casos el modelo se ajusta muy bien para la primera etapa, pero, al llegar a la segunda fase, los valores experimentales siguen creciendo, en cambio, el modelo nos dice que el Cs se estabiliza por completo. Observamos en la gráfica 3.20 como la muestra 42MID se ajusta bien, pero este ajuste es falso, ya que el experimento dura hasta los 140 días y observando las demás muestras vemos que el modelo matemático es capaz de ajustar bien hasta los primeros 100-140 días, pero, si la muestra 42MID siguiera, lo esperado sería que los valores experimentales siguieran creciendo, en cambio, el modelo matemático nos está diciendo que no es así, sino que ya se estabilizó.

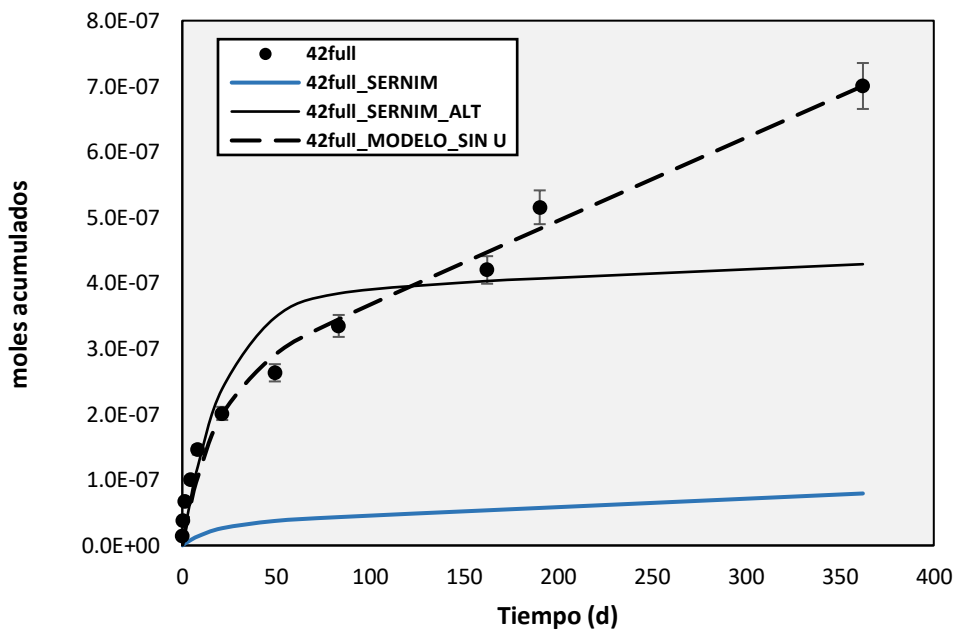
Los elementos más volátiles o incompatibles con la estructura de la uraninita, como es el caso del Cesio, tienden a migrar al huelgo entre la vaina-combustible y otros grupos que forman óxidos precipitados

en los límites de grano como el Cesio (17). Según estudios realizados, en solubilidad y equilibrio termodinámico del Cs en  $UO_2$ , partes de estos PF se pueden encontrar como óxidos ( $Cs_2(U,Pu)4O_{12}$  o  $Cs_2(U,Pu)O_4$ ) (26). Por tanto, es comprensible que el cesio que tiende a encontrarse en el hueco o límites de grano sea liberado en primer lugar de forma instantánea y la concentración de este no vendrá dada por la precipitación de ninguna fase sólida (29) sin estar dirigido esta liberación por el uranio y por ello veamos esta incompatibilidad. Como bien se dijo, en la disolución de pastillas al agua le cuesta acceder a los granos más internos y tarda mucho más en disolverse a diferencia de muestras en polvo donde hay más granos accesibles para el agua. Este fenómeno provoca que, para muestras de pastilla, los valores que se obtiene con el modelo subestimen la cantidad real que se llega a segregar de Cs por los GB (23) (1). Así podría existir una cuarta contribución o que los valores de la 3 contribución que obtenemos no sean completos. También puede haber otros parámetros aparte de la accesibilidad del agua que influya en la segregación de Cs a GB como puede ser la temperatura de irradiación o los tamaños de grano del combustible (1). Por ende, observamos lo que puede ser una correlación entre los GQ y la segregación de Cs, puesto que, vemos que a medida que el GQ es más grande mejor se ajusta el Cs. Esto puede ser debido a que la muestra se encuentra más desgastada y permite que el agua acceda mejor a los límites de granos etc.

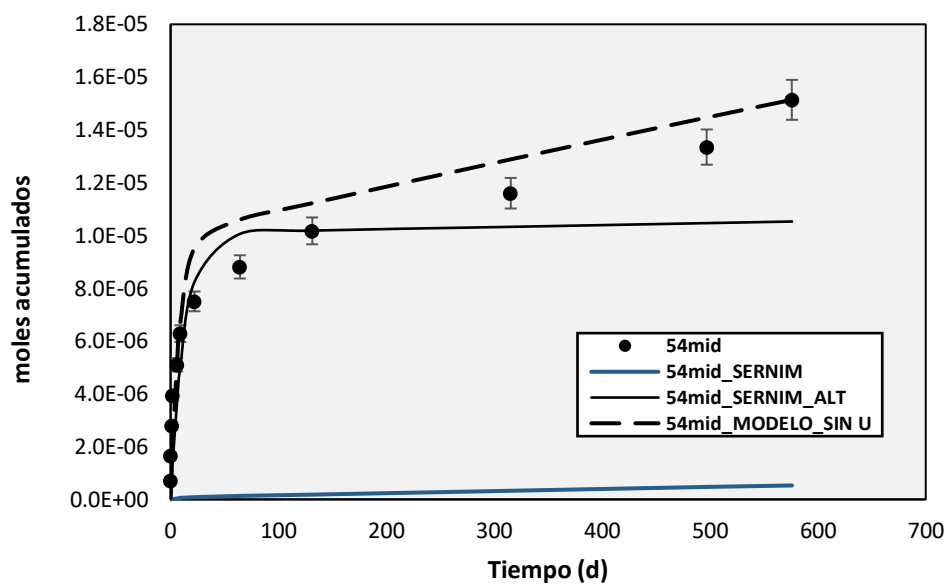
Se ha realizado un reajuste del Cesio sin tener en cuenta el uranio, conjeturando que las contribuciones vienen dadas por el límite de grano y el hueco los valores obtenidos se pueden observar en la tabla 3.7. El hecho de que SERNIM haya podido identificar a Cs como RN segregado de la matriz está de acuerdo con los resultados obtenidos anteriormente y con la contribución de cesio esperada al IRF (1) (25). Es cierto de que no nos permite con el ajuste del uranio predecir la disolución del Cs, aun así, este hecho da confianza en SERNIM. Este nuevo ajuste que se puede observar en las gráficas 3.20-3.24, tiene un total de 2 contribuciones. Los valores se pueden observar en el Anexo A. Observamos que para todos los casos el ajuste es congruente, podemos observar como en el caso de las muestras MID, estos tienen un % más grande de *seg* a diferencia de los FULL. Observamos que para las muestras FULL, si nosotros aumentamos el grado de quemado, vemos como la disolución inicial aumenta, por ende, vemos que este aumenta a mayor GQ haya. En cambio, para el caso de las muestras MID vemos que para GQ bajos es de 0.6% si subimos a valores de 54 sube a un 1.8%, pero percatamos que, si se sigue subiendo el GQ a 60, en tal caso baja a un valor de 0.3%.



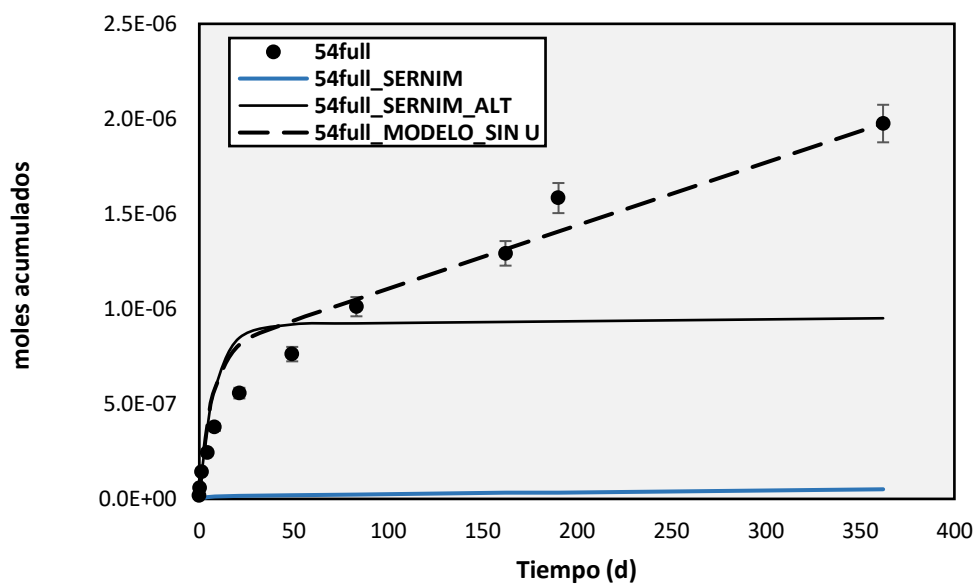
Gráfica 3.20: Representación de los valores experimentales del Cs y los ajustes pertinentes, para GQ (42mid).



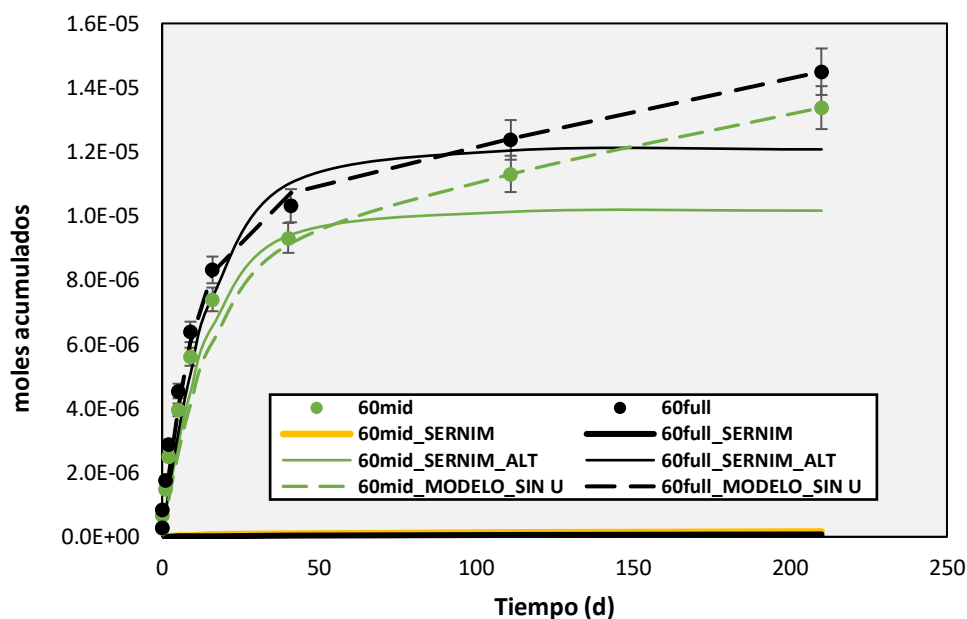
Gráfica 3.21: Representación de los valores experimentales del Cs y los ajustes pertinentes, para GQ (42full).



Gráfica 3.22: Representación de los valores experimentales del Cs y los ajustes pertinentes para GQ (54mid).



Gráfica 3.23: Representación de los valores experimentales del Cs y los ajustes pertinentes para GQ (54full).



Gráfica 3.24: Representación de los valores experimentales del Cs y los ajustes pertinentes para GQ (60).

Tabla 3.7: Valores del gap y GB para el Cs.

Muestra	$m_{gap}(mol)$	$m_{GB}(mol)$	$k_{gap}(mol)$	$k_{GB}(mol)$	%gap	%GB
42MID	$3,6E-06 \pm 1,0 \cdot 10^{-6}$	$8,6E-05 \pm 10^{-6}$	$0,22 \pm 10^{-4}$	$9,8E-05 \pm 10^{-6}$	4,01	95,99
42FULL	$2,4E-07 \pm 1,0 \cdot 10^{-7}$	$3,4E-05 \pm 10^{-6}$	$0,09 \pm 10^{-4}$	$3,7E-05 \pm 10^{-6}$	0,69	99,31
54MID	$1,0E-05 \pm 2,3 \cdot 10^{-6}$	$4,9E-05 \pm 10^{-6}$	$0,07 \pm 10^{-4}$	$1,9E-04 \pm 10^{-6}$	16,97	83,03
54FULL	$7,7E-07 \pm 2,3 \cdot 10^{-7}$	$4,6E-05 \pm 10^{-6}$	$0,12 \pm 10^{-4}$	$7,3E-05 \pm 10^{-6}$	1,64	98,36
60MID	$8,9E-06 \pm 2,6 \cdot 10^{-6}$	$6,4E-05 \pm 10^{-6}$	$0,17 \pm 10^{-4}$	$3,4E-04 \pm 10^{-6}$	12,16	87,84
60FULL	$1,0E-05 \pm 2,9 \cdot 10^{-6}$	$6,6E-05 \pm 10^{-6}$	$0,16 \pm 10^{-4}$	$3,3E-04 \pm 10^{-6}$	13,09	86,91

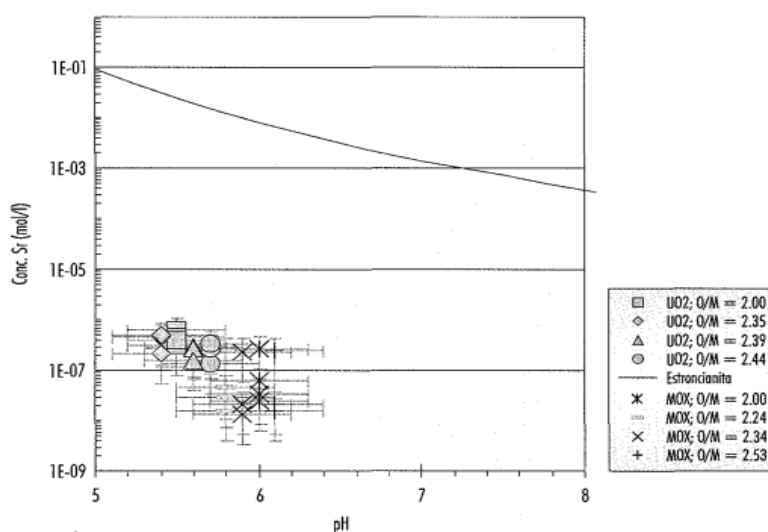
Observamos que para las muestras 54MID, 60MID y 60FULL, tenemos unos valores de gap muy elevados, vemos que para las muestras de GQ 60 GWd/Tu, este % de gap es muy parecido a los valores de FGR que se puede ver en la tabla 3.1.

### Estroncio

El estroncio forma parte de óxidos homogéneamente distribuidos en la matriz de combustible irradiado. Su disolución se ve controlada por la degradación de la matriz (35), suelen encontrarse en los huecos y límites de grano. De entrada, observamos que ningún modelo se ajusta totalmente a los valores experimentales excepto el 60MID. Observamos que los valores del modelo están por debajo de los valores experimentales, por ello de igual manera que el Cs se plantea añadir una tercera contribución que es el Sr segregado que se encuentra en los límites de grano, por ello se realiza un

reajuste que se pueden ver en las gráficas 3.25-3.28. Con este nuevo ajuste observamos que hay una clara mejora en el ajuste, para las muestras MID la primera fase se ajusta mucho mejor que para las muestras FULL. También vemos que para un GQ de 60 los ajustes son mejores que para las demás muestras. Pero se observa un comportamiento parecido al Cs, los valores del modelo, al llegar al inicio de la segunda etapa, empiezan a estabilizarse. Otra cosa que vemos es que el Sr se ajusta mejor con 3 contribuciones que el Cs esto puede ser debido a que el Sr a diferencia del Cs, se suele encontrar más en los límites de grano que suele tener un % de contribución mayor al huelgo, ya que se encuentra más material. De nuevo vemos que las muestras MID se ajustan mucho mejor que las muestras FULL.

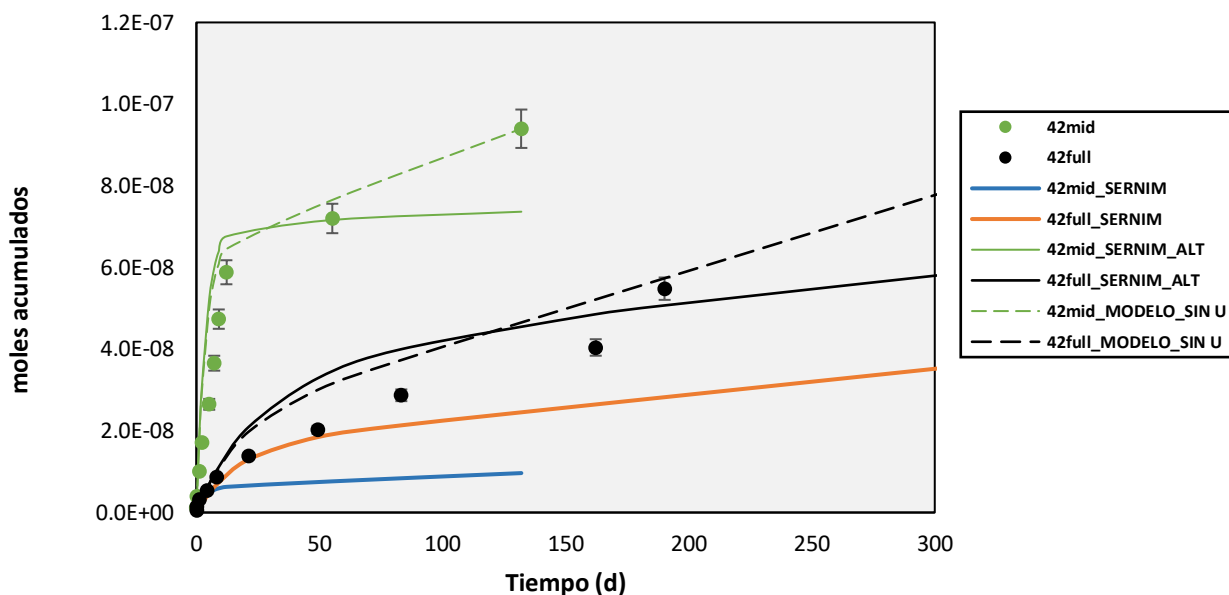
Sabemos que el Sr es muy soluble en  $UO_2$ , en caso de que hubiera un control de esta solubilidad sería por la formación de una fase sólida, esta fase sólida sería la estroncianita  $SrCO_3(s)$  (35). Esto podría ser una respuesta a los valores del modelo que obtenemos por debajo de los experimentales, pero, no se espera un control de la solubilidad por formación de la fase pura propuesta porque se necesitaría más concentración de Sr en solución, 6 órdenes de magnitud superior a la que obtenemos para que hubiera la formación de esta fase sólida, como podemos ver en la Ilustración 3.10.



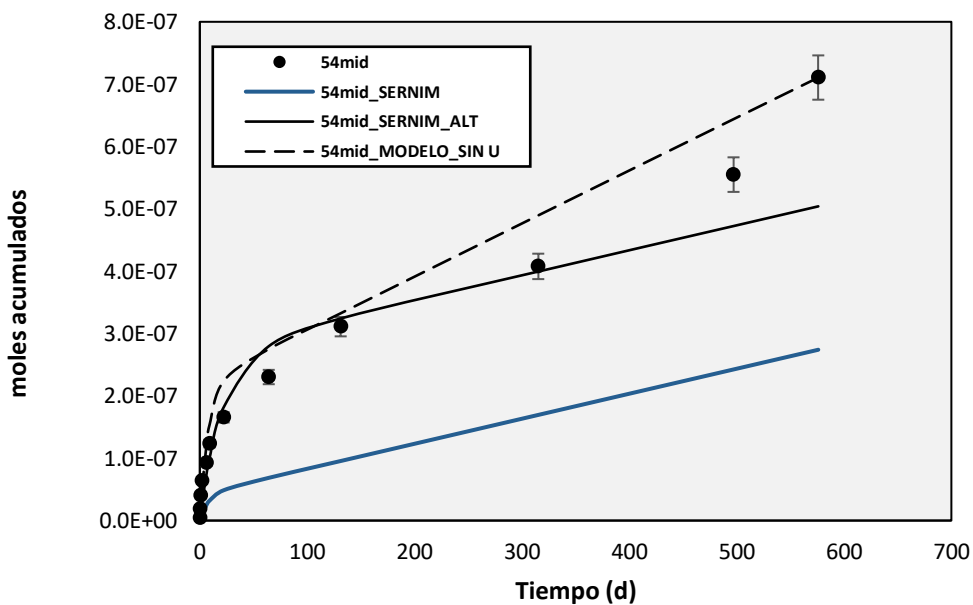
**Ilustración 3.10:** Concentración de estroncio experimental (procedente de combustibles  $UO_2yMO_x0/M$  diferentes) y solubilidad calculada para estroncianita en DIW. Fuente: (33).

Por ello se entiende de que el problema que sucede es el mismo que el caso del Cs, que para muestras de pastilla los valores que se obtiene con el modelo subestimen la cantidad real que se llega a segregar de Sr por los GB. Por ello de la misma manera se llevará a cabo un reajuste sin tener en cuenta el uranio y suponiendo la contribución de los límites de grano. El Sr aun dando resultados subestimados sobre los valores experimentales, es de los RN segregados de la matriz. La degradación de la matriz por el GQ

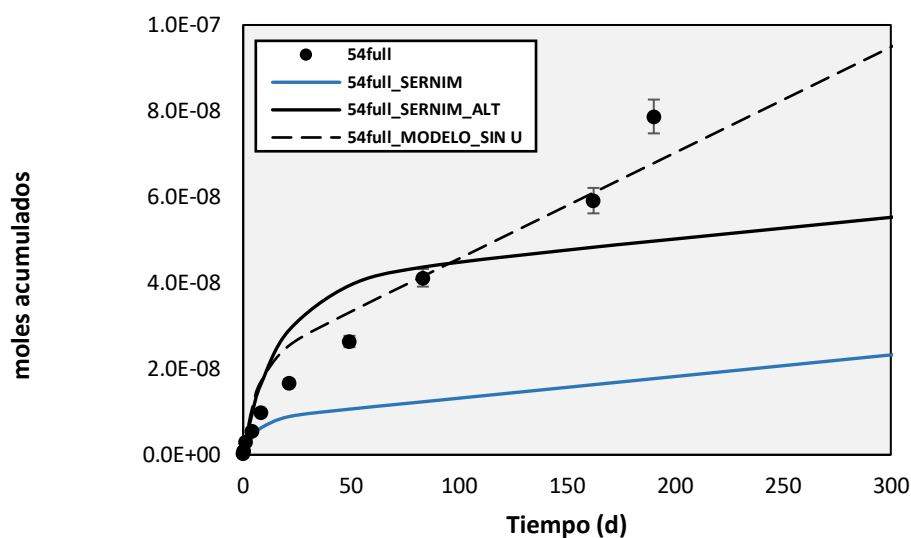
puede dar lugar a que las muestras 60MID y 60FULL tengan unos ajustes mejores con la tercera contribución (seg). Vemos como en este caso el gap contribuye mucho menos que el GB a diferencia del Cs (véase tabla 3.8).



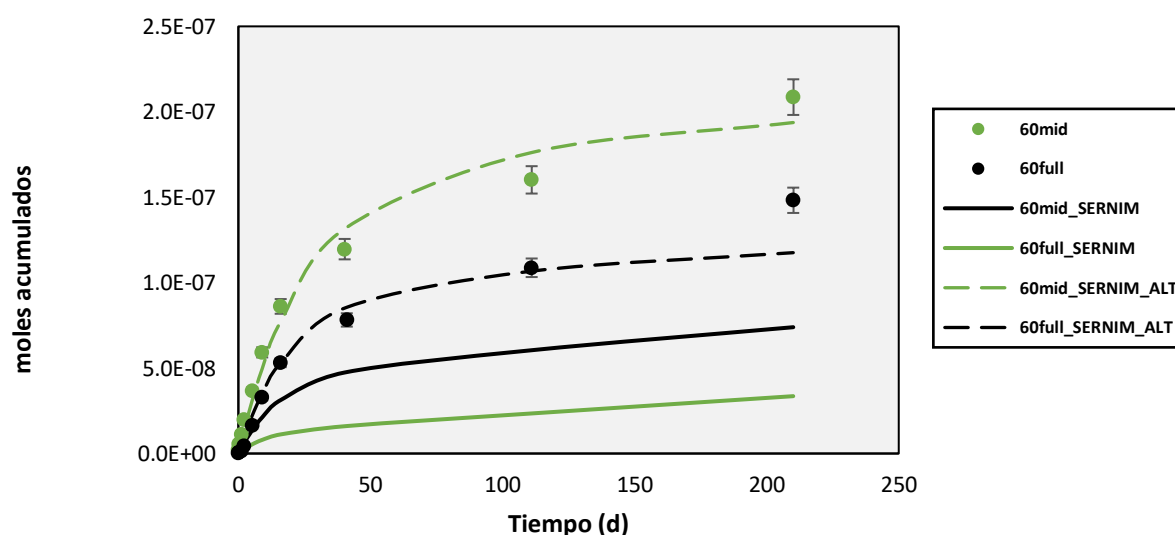
Gráfica 3.25: Representación de los valores experimentales del Sr y los ajustes pertinentes para GQ (42).



Gráfica 3.26: Representación de los valores experimentales del Sr y los ajustes pertinentes, para GQ (54mid).



Gráfica 3.27: Representación de los valores experimentales del Sr y los ajustes pertinentes, para GQ (54full).



Gráfica 3.28: Representación de los valores experimentales del Sr y los ajustes pertinentes para GQ (60).

Tabla 3.8: Parámetros de la modelización sin uranio para el Sr.

Modelo	$m_{gap}(mol)$	$m_{GB}(mol)$	$k_{gap}(mol)$	$k_{GB}(mol)$	%gap	%GB
42MID	$6,4E-08 \pm 1,8 \cdot 10^{-8}$	$4,4E-05 \pm 10^{-6}$	$0,26 \pm 10^{-4}$	$5,1E-06 \pm 10^{-6}$	0,14	99,86
42FULL	$2,2E-08 \pm 3,6 \cdot 10^{-9}$	$1,7E-05 \pm 10^{-6}$	$0,06 \pm 10^{-4}$	$1,1E-05 \pm 10^{-6}$	0,13	99,87
54MID	$2,2E-07 \pm 5,8 \cdot 10^{-8}$	$3,0E-05 \pm 10^{-6}$	$0,11 \pm 10^{-4}$	$2,8E-05 \pm 10^{-6}$	0,72	99,28
54FULL	$2,1E-08 \pm 7,1 \cdot 10^{-9}$	$2,4E-05 \pm 10^{-6}$	$0,15 \pm 10^{-4}$	$1,0E-05 \pm 10^{-6}$	0,09	99,91
60MID	$8,9E-06 \pm 3,1 \cdot 10^{-8}$	$6,4E-05 \pm 10^{-6}$	$0,20 \pm 10^{-4}$	$1,6E-05 \pm 10^{-6}$	0,30	99,70
60FULL	$6,1E-08 \pm 2,0 \cdot 10^{-8}$	$3,4E-05 \pm 10^{-6}$	$0,32 \pm 10^{-4}$	$1,2E-05 \pm 10^{-6}$	0,18	99,82



### **Grupo 3**

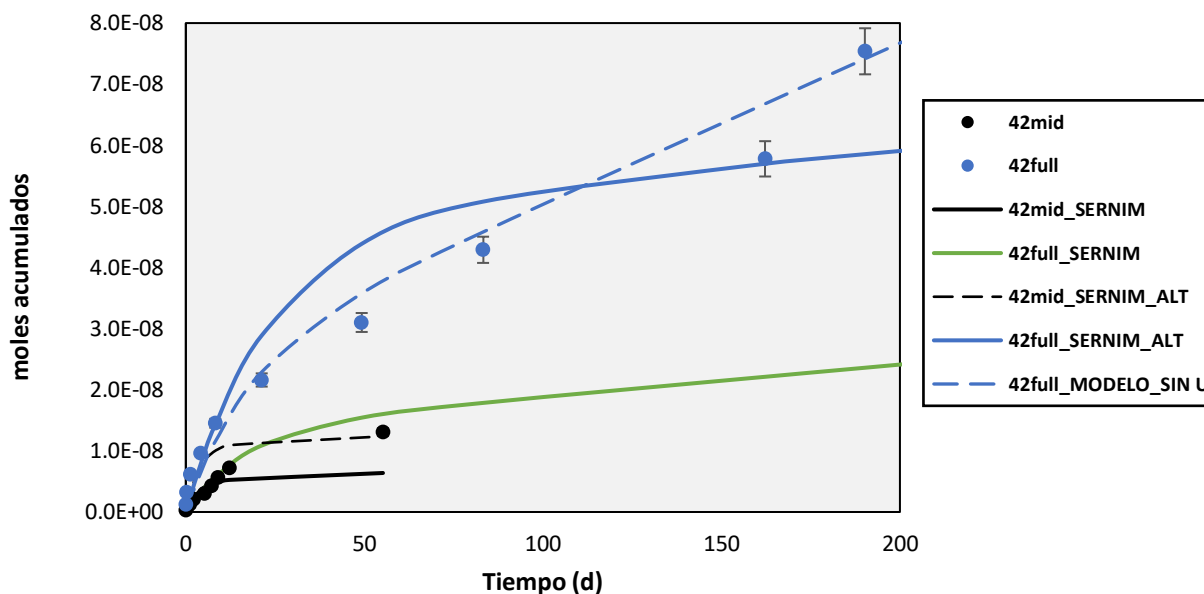
#### **Tecnecio**

Observamos en la gráfica 3.29 que para valores de un GQ 42 GWd/tU el modelo no se ajusta a los datos experimentales en el caso 42MID los valores del modelo SERNIM se encuentran por debajo de los valores experimentales, por ello se hace un reajuste añadiendo una terca contribución ya que se prevé que el Tc pueda estar en más de un posible estado de oxidación. Vemos que el ajuste en los últimos tramos es muy bueno. Si miramos la muestra 42FULL, el ajuste con SERNIM vuelve a estar por debajo de los valores experimentales y nuevamente añadiendo una tercera contribución, vemos que hay una clara mejora y se ajusta muy bien hasta los primeros 160 días, pero tras pasar este tiempo, los valores del modelo se estabilizan, en cambio, los experimentales siguen subiendo. Para las muestras 54MID y 54FULL (véase gráficas 3.30 y 3.31 respectivamente) vemos que para el primero, ocurre lo mismo, el ajuste con SERNIM vuelve a estar por debajo y por tanto suponemos que el Tc está en otra fase por ello se hace un nuevo ajuste llamado SERNIM\_ALT, se consigue una mejora, se ajusta bien hasta los primeros 130 días, pero, tras pasar este tiempo de nuevo se vuelve a estabilizar muy rápido a diferencia de los valores experimentales que siguen subiendo. Lo mismo pasa con la muestra 54FULL la única diferencia es que el reajuste dura hasta los primeros 80 días. Pero vemos, que para un GQ de 60 GWd/tU, tanto la muestra MID como el FULL se ajustan muy bien lo cual podríamos decirse que para un GQ de 60 GWd/tU, el modelo SERNIM es congruente.

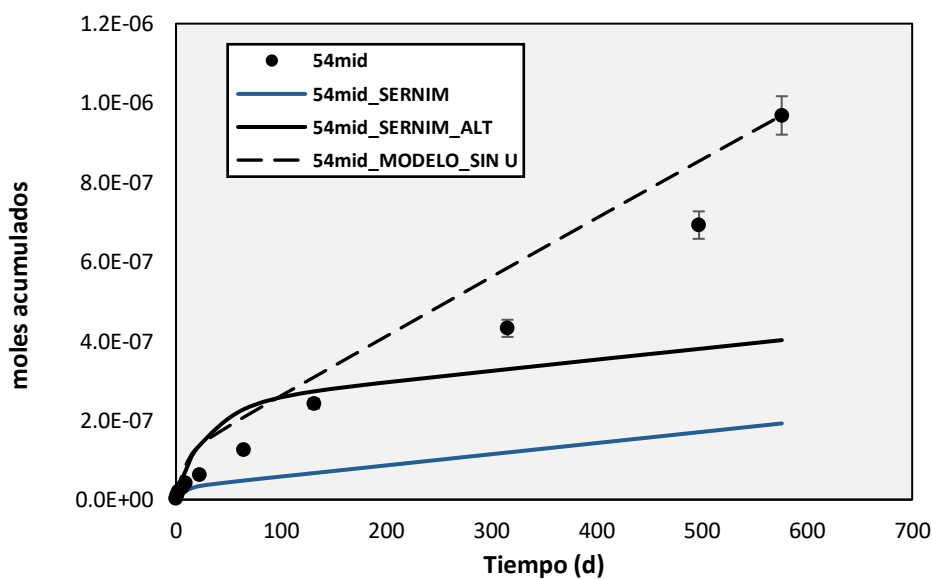
El Tc aparece con estado de oxidación VII en condiciones oxidantes y IV en condiciones reductoras, sabemos que los experimentos se llevaron a cabo en condiciones oxidantes, en solución las especies que predominan son:  $TcO_4^-$  y  $TcO(OH)_2$ . El tecnecio es un metal de transición que se suele encontrar en los límites de grano formando óxidos precipitados o precipitados o inclusiones metálicos (17) (26). Lo más probable es que la solubilidad del Tc venga controlada por su grado de corrosión, es decir, del porcentaje de estas que ha pasado a un estado de oxidación superior (33). Como se dijo anteriormente, el Tc es muy susceptible a la oxidación, por ello se entiende de que los CNG de las muestras de un GQ de 42 y 54 GWd/tU estén más oxidadas que para un GQ de 60 GWd/tU ya que observamos como este último sus valores experimentales están cerca de  $10^{-9}$  y  $10^{-8}$  a diferencia de las demás muestras que están a 1 o 2 órdenes de magnitud por encima. Por ende, si tenemos en cuenta la localización del Tc en los límites de grano, donde el acceso para el agua es complejo se espera que las muestras que estén más irradiadas y tengan mayor desgaste, así como una peroxidación de las muestras disuelvan más Tc.

Las muestras no congruentes son debido a que el Tc está en fases que no son coherentes con la disolución de la matriz del CNG.

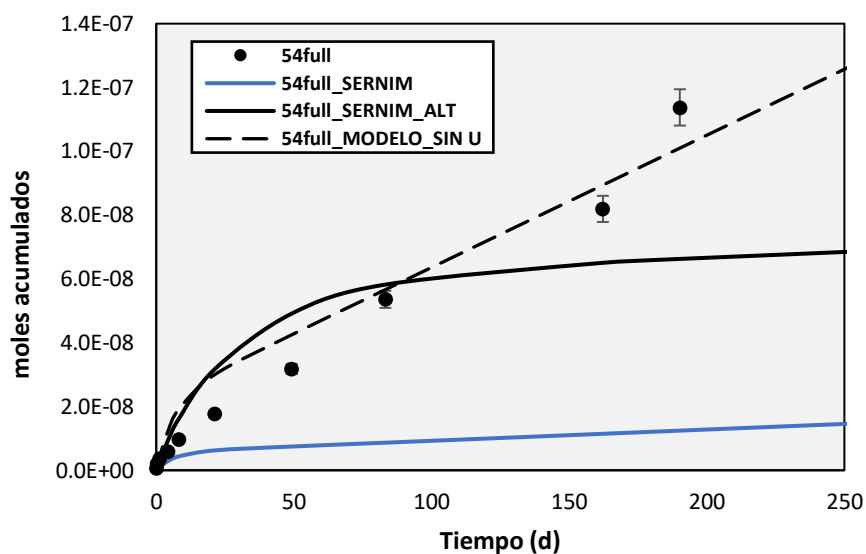
Por último, se ha llevado a cabo un nuevo ajuste para aquellos modelos que no se pudo ajustar bien ni con la tercera contribución, este nuevo ajuste que también tiene 2 contribuciones se ha llevado a cabo sin tener en cuenta el U, ni sus parámetros llamados: **MODELO\_SIN U** (véase gráficas 3.29-3.32).



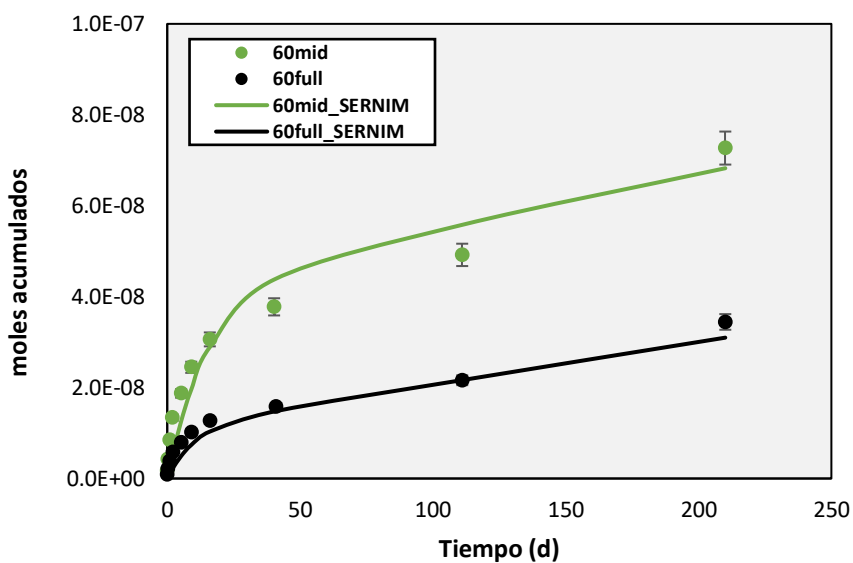
**Gráfica 3.29:** Representación de los valores experimentales del Tc y los ajustes pertinentes para GQ (42).



**Gráfica 3.30:** Representación de los valores experimentales del Tc y los ajustes pertinentes para GQ (54mid).



Gráfica 3.31: Representación de los valores experimentales del Tc y los ajustes pertinentes para GQ (54full).



Gráfica 3.32: Representación de los valores experimentales del Tc y los ajustes pertinentes para GQ (60).

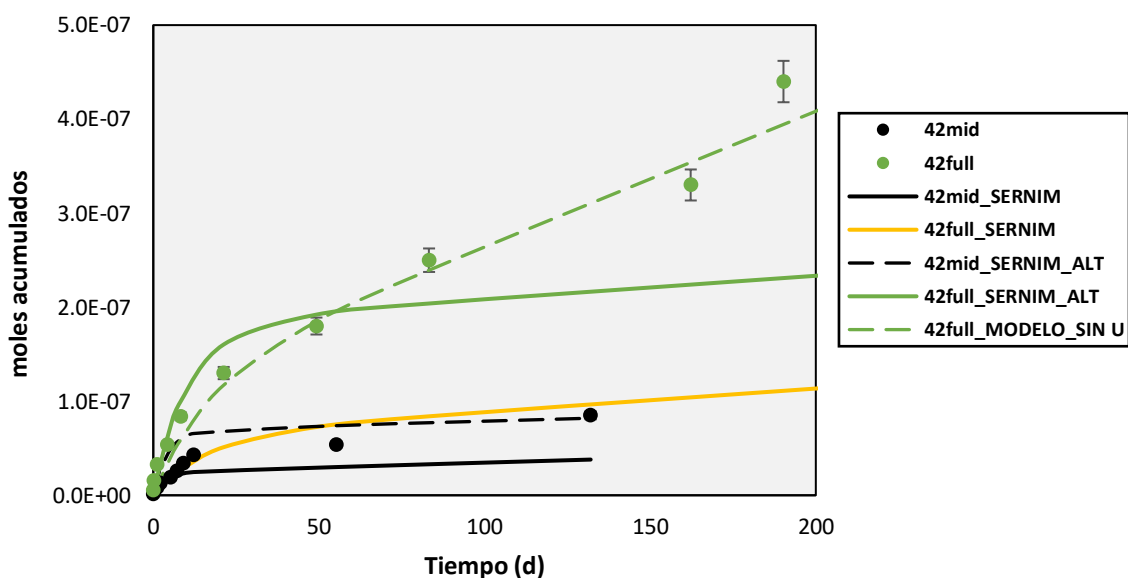
## Molibdeno

Como en casos anteriores, una vez ajustamos el uranio, procedemos a hacer lo mismo con el Molibdeno. Sabemos que el Mo se suele encontrar en los límites de grano formando óxidos precipitados o precipitados metálicos, las denominadas partículas-ε (16). Por ello sabemos que la mayoría de los actínidos y descendientes, como la mayor parte de los productos de fisión y activación, se encuentran distribuidos de manera homogénea por la superficie de la matriz del CNG. Por ello

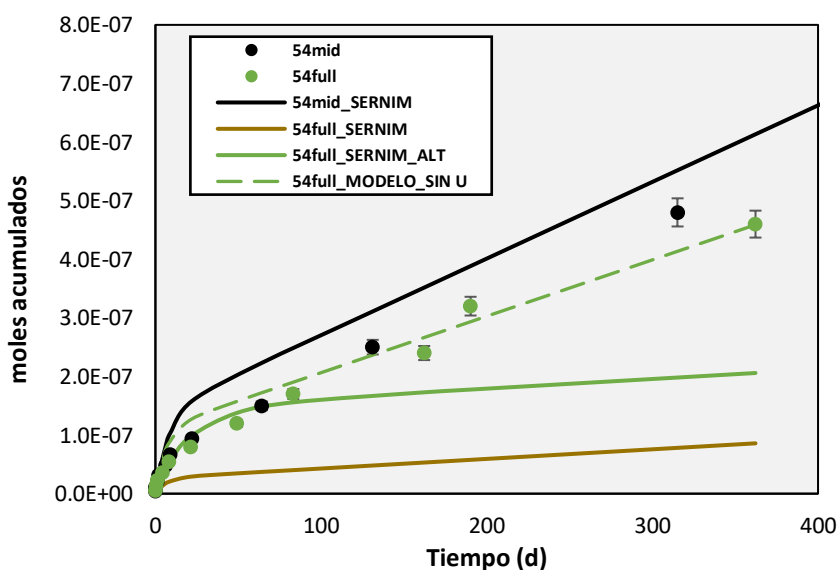
esperamos que el molibdeno se disuelva congruentemente con la matriz. Observamos en la gráfica 3.33 que la muestra 42MID los valores obtenidos con SERNIM se encuentran ligeramente por debajo de los valores experimentales por ello se añade una tercera contribución que permite un buen ajuste y que el Mo podría encontrarse en más de una fase como se comentó anteriormente. En la muestra 42FULL se llevó a cabo el mismo ajuste con SERNIM y de nuevo el modelo da por debajo de los valores experimentales, suponiendo que el Mo está en otra fase o en zonas del CNG difíciles de acceder para el lixiviante, se hace un reajuste teniendo en cuenta una tercera contribuido. Observamos que en la primera etapa el ajuste es bueno, pero, en la segunda etapa claramente no se ajusta. La muestra 54MID con el modelo SERNIM se ajusta muy bien. Para la muestra 54FULL observamos que sucede lo mismo que en el caso del 42FULL como se puede contemplar en la gráfica 3.34. Y por lo que hace las muestras 60MID y 60FULL, vemos que para el MID se consigue muy buen ajuste a diferencial del FULL, observamos que, la curva con el SERNIM está por debajo de los experimentales por ello se añade una tercera contribución y observamos como el ajuste se lleva a cabo muy bien. De nuevo vemos que las muestras MID se ajustan mucho mejor que las muestras FULL. De igual manera se ha llevado a cabo un nuevo y tercer ajuste sin tener en cuenta el uranio para las muestras 42FULL y 54FULL.

El Mo aparece en el CNG en formas químicas diferentes (óxidos precipitados o en estado metálico) (26) y como se dijo, igual que el Tc tiene una elevada sensibilidad redox (Mo II, III, IV, V y VI), por lo que su disolución es condicionada por el reactor o las condiciones del experimento que pueden dar lugar a molibdeno en diferentes estados de oxidación y, por tanto, diferente solubilidad (31) (33). La especie que predomina es el  $MoO_4^{2-}$  si se llega a formar fases sólidas sin importar si es en medio ácido o alcalino sería el  $MoO_2(c)$  (33). Pero se observó en (26) y (33) que la concentración de Mo metal en el CNG va disminuyendo por oxidación durante la irradiación, puesto que, el potencial de oxígeno aumenta con el quemado. Por tanto, tenemos que, para las muestras 42MID y 54MID, un GQ bajo para el primero por lo que tiene una degradación física inferior a la segunda muestra, este hecho limita el acceso al lixiviante. Por ello se debe añadir una terca contribución para representar la disolución de los límites de grano en la muestra 42MID o la formación de óxidos metálicos, a diferencia de la muestra 54MID que no es necesario ya que la degradación de este es mayor y el acceso del lixiviante es más fácil. Para las muestras 42 y 54 FULL, observamos que, no se ajusta como es esperable, esto puede ser debido a que el acceso del lixiviante en las muestras para el caso del 42FULL es más limitado sumando a una preoxidación de la muestra lo que podría generar que el Mo este en diferentes estados de oxidación como podría ser en el caso tanto del 42 como del 54FULL. Y para las muestras 60MID y 60FULL, observamos que la irradiación de estas muestras será mayor y la degradación por ende más

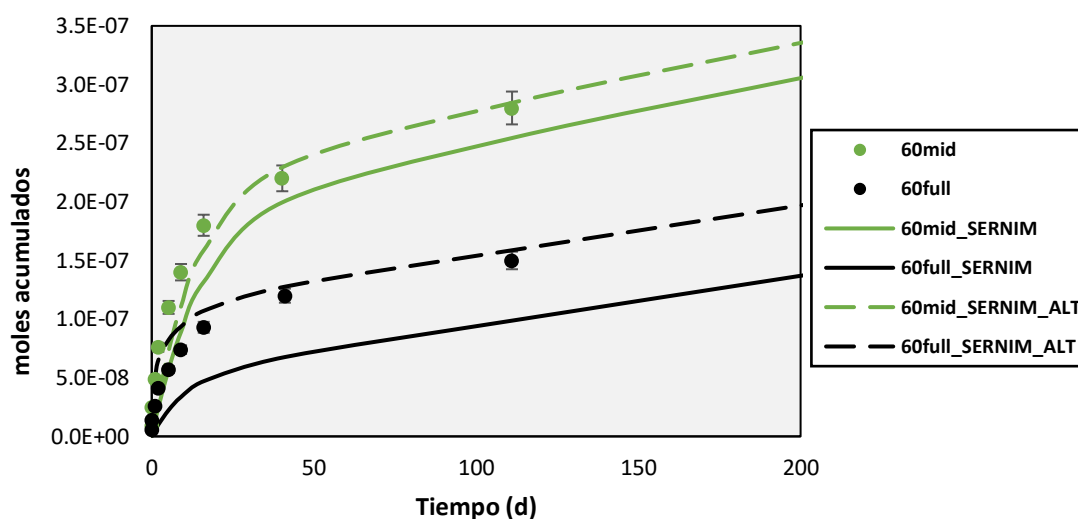
grande lo que va a permitir que el lixiviante pueda acceder mejor por los límites de grano y por otra parte la formación de partículas  $\epsilon$  será muy pequeña o en fases diferentes, como se observa en la gráfica 3.35, las dos muestras se ajustan bien con el modelo SERNIM\_ALT la cual tiene 3 contribuciones, suponiendo que una pequeña parte del Mo está en una diferente fase. Pero esto no quita la congruencia del Mo para estas dos muestras, ya que observamos que la pendiente del SERNIM es totalmente paralela a los calores experimentales, el modelo es capaz de saber cómo evolucionara el Mo.



Gráfica 3.33: Representación de los valores experimentales del Mo y los ajustes pertinentes para GQ (42).



Gráfica 3.34: Representación de los valores experimentales del Mo y los ajustes pertinentes para GQ (54).



Gráfica 3.35: Representación de los valores experimentales del Mo y los ajustes pertinentes para GQ (60).

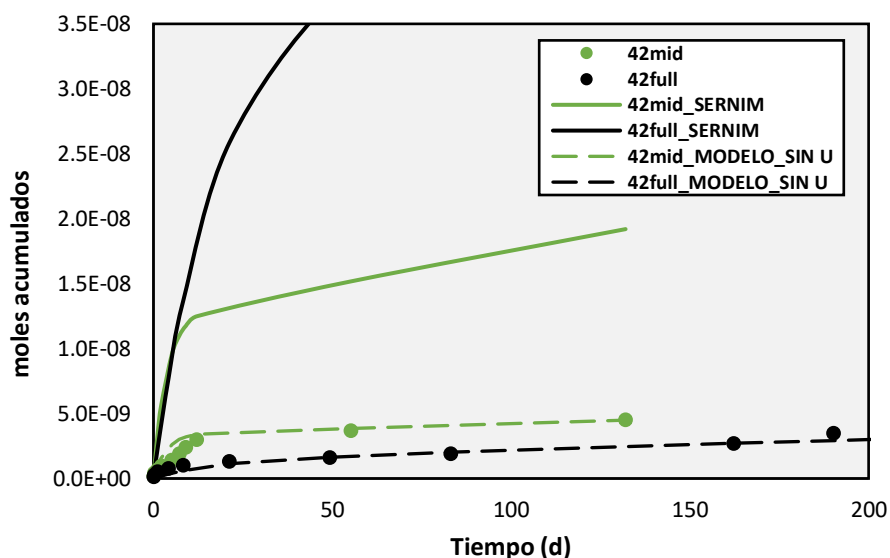
## Grupo 4

### Rutenio

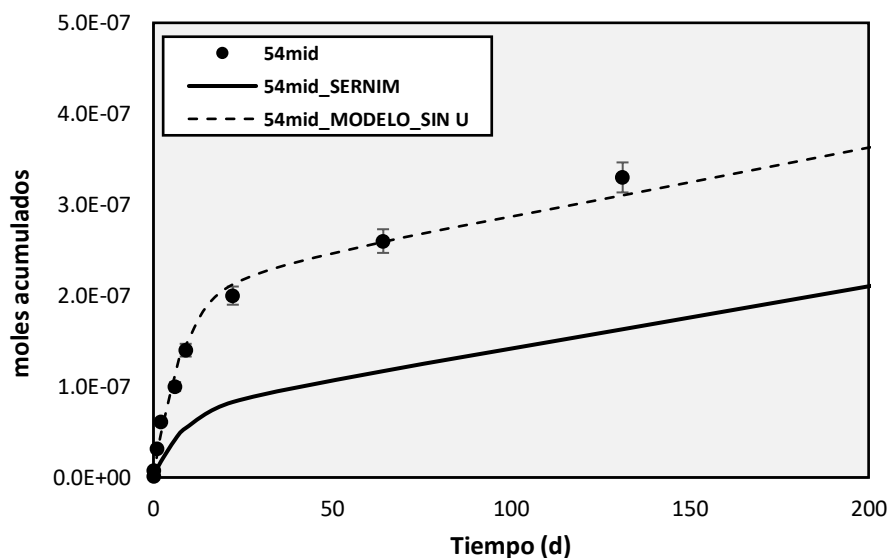
Para el caso del Ru observamos que, los resultados obtenidos con el modelo SERNIM que se puede observar en las gráficas 3.36, 3.37, 3.38 y 3.39, exceptuando la muestra 54MID en el resto de los casos el modelo está por encima de los valores experimentales y como se dijo, la muestra 54MID se comporta al revés, los valores que se obtienen con el modelo SERNIM se encuentran por debajo de los valores experimentales. Que todas las muestras den resultados por encima de los experimentales es debido a que el Ru se disuelve a una velocidad mucho más lenta que el matiz de  $UO_2$ , por ello vemos que tarda más en estabilizarse. Ya que el Ru genera sólidos metálicos que tienen una velocidad de disolución muy baja en comparación al Uranio y por ende la disolución del Ru no vendrá dada por la disolución del CNG. Por lo que hace al 54MID, vemos que los valores del modelo se estabilizan antes que los valores experimentales. Una explicación puede ser porque se disuelve mucha cantidad de uranio lo que hace que el Ru también lo haga en comparación a las demás muestras.

Por ello se hace un nuevo ajuste sin tener en cuenta los valores ni parámetros del U. El Rutenio no es congruente, ciertamente podemos ver que para ningún caso es congruente excepto el modelo 54MID, que, si observamos el modelo SERNIM su pendiente es paralelo a los valores experimentales en la segunda etapa que es la que nos debe importar.

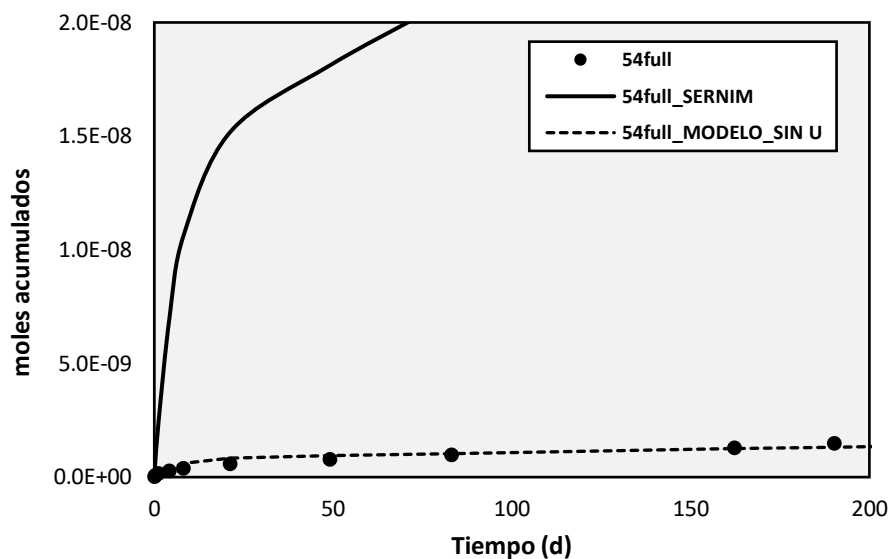
El Rutenio es igual que el Mo y el Tc es un metal de transición que forman precipitados metálicos y de la misma manera se puede encontrar en los límites de grano. Por ello, el hecho de que el SERNIM predijera una liberación superior para casi todos los casos posibles, puede ser debido a la segregación de la matriz, ya que el Ru se disuelve menos que el uranio, por ello conjeturamos que tienen solubilidades diferentes siendo el uranio más soluble que el Rutenio (1). Si analizamos esto, vemos como los resultados que hemos obtenido son lo esperado.



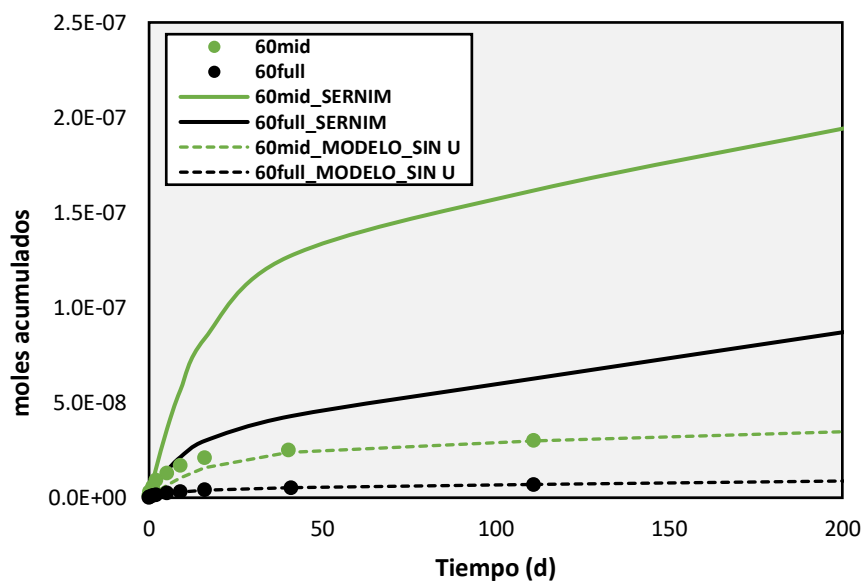
Gráfica 3.36: Representación de los valores experimentales del Ru y los ajustes pertinentes para GQ (42).



Gráfica 3.37: Representación de los valores experimentales del Ru y los ajustes pertinentes para GQ (54mid).



Gráfica 3.38: Representación de los valores experimentales del Ru y los ajustes pertinentes para GQ (54full).



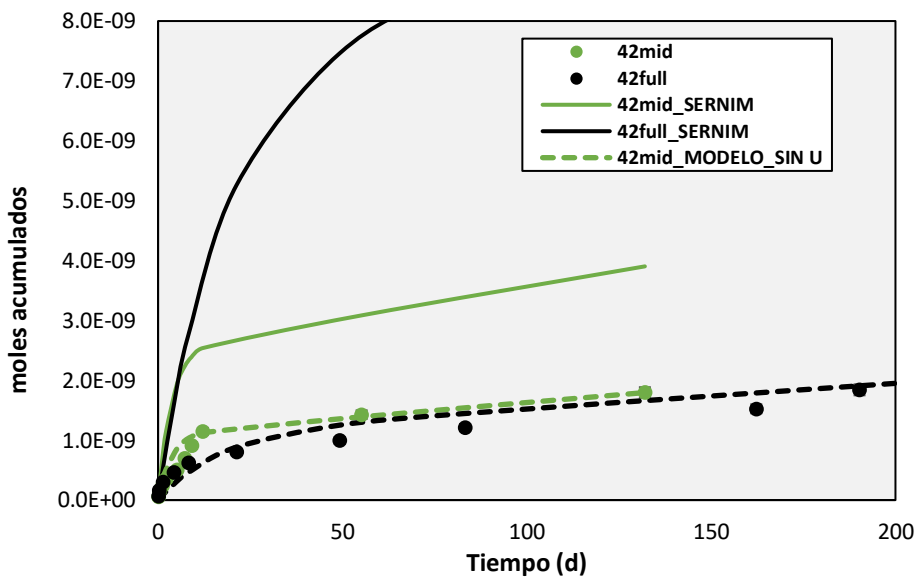
Gráfica 3.39: Representación de los valores experimentales del Ru y los ajustes pertinentes para GQ (60).

## Rodio

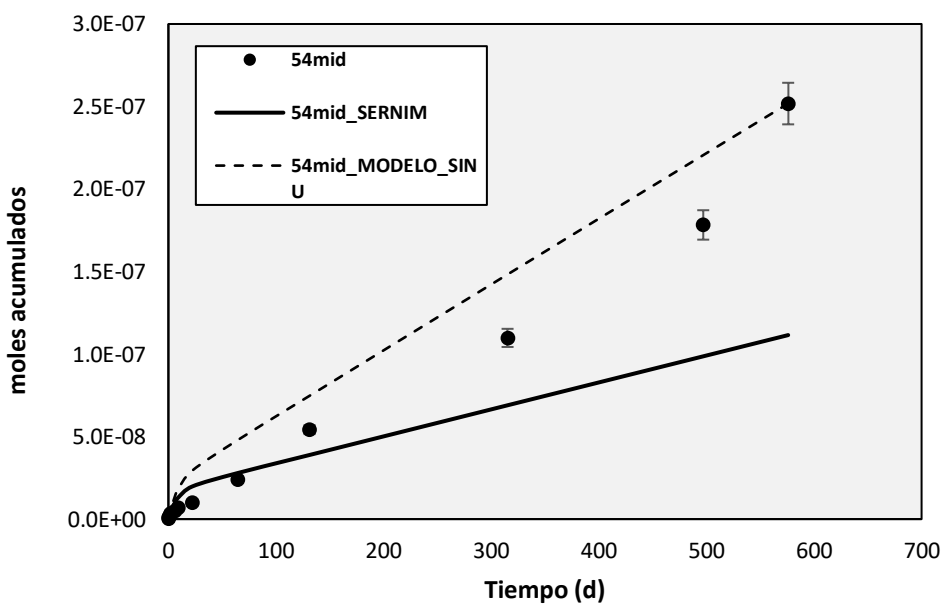
Se espera el mismo comportamiento que el Rh. De entrada, observamos que su comportamiento es igual al Rutenio, el Rodio es totalmente incongruente con el uranio. Como se dijo en el caso del Rutenio, el Rodio se encuentra como precipitado metálico (34) (26). Por ello vuelve a haber esa diferencia de solubilidades como en el caso anterior, de tal manera, no se espera que el Rh contribuya a la IRF debido



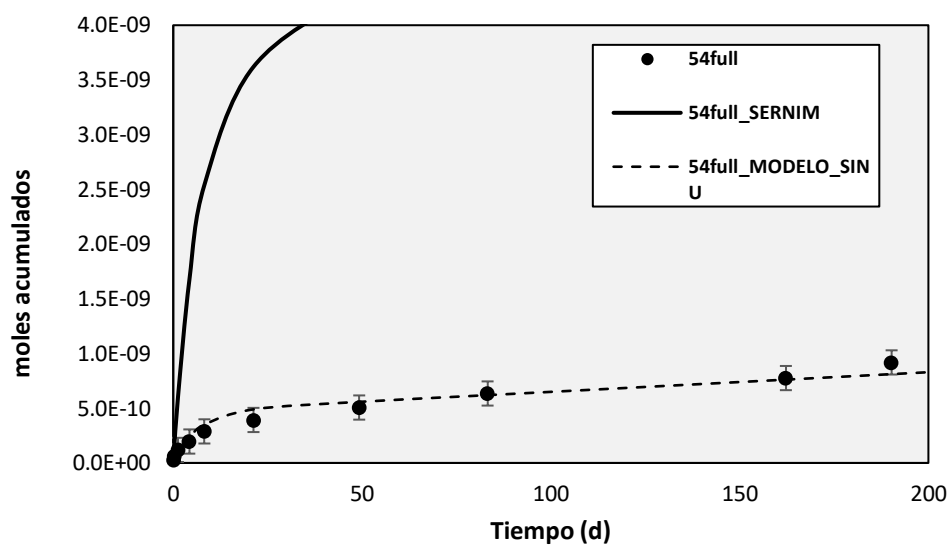
a su baja solubilidad a pesar de que se segrega de la matriz (23) (1) (véase graficas 3.40, 3.41, 3.42 y 3.43).



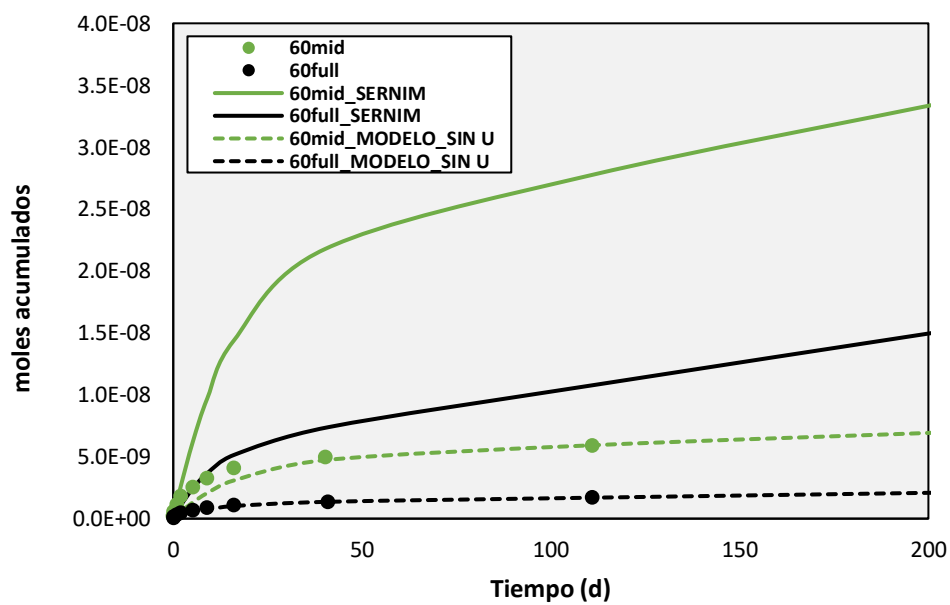
Gráfica 3.40: Representación de los valores experimentales del Rh y los ajustes pertinentes para GQ (42).



Gráfica 3.41: Representación de los valores experimentales del Rh y los ajustes pertinentes para GQ (54mid).



Gráfica 3.42: Representación de los valores experimentales del Rh y los ajustes pertinentes para GQ (54full).



Gráfica 3.43: Representación de los valores experimentales del Rh y los ajustes pertinentes para GQ (60).

## **4. Análisis del impacto ambiental**

Debido a que este trabajo es totalmente teórico, el impacto ambiental generado es nulo. Sin embargo, el objetivo principal de este trabajo es conocer los diferentes compuestos que se forman en un reactor nuclear durante el proceso de irradiación para poder llevar a cabo la gestión más adecuada de los residuos radiactivos y, en caso de que el combustible gastado llegase a entrar en contacto con el agua subterránea, conocer el comportamiento de los radionúclidos que lo forman y qué mecanismos siguen para disolverse y poder prever su liberación. Por lo tanto, aunque este trabajo no tenga impacto ambiental en sí, sí que se estudia el combustible nuclear gastado para el posterior análisis del impacto ambiental. En este sentido, este trabajo permite profundizar en el conocimiento de la liberación de radionucleidos del CG y, en consecuencia, es una parte más de un amplio trabajo multidisciplinar que permitirá mejorar la gestión de los residuos radioactivos de alta actividad



## 5. Conclusiones

Se espera mayor liberación de radionucleidos en los experimentos MID que en los FULL ya que los MID contienen, o se espera que contengan, mayor cantidad de RN por la diferencia de posición de los cortes de las muestras. La conclusión es que, en todos los casos las muestras MID disuelve mayor cantidad de RN que las muestras FULL excepto en las pastillas con un GQ de 42 GWd/tU, se observa como para el U, Tc y el Mo, se disuelve más cantidad en las muestras FULL, y para el Pu y el Nd tanto el MID como el FULL tienen valores muy parecidos. Esto es debido a que hay mayor velocidad de disolución al principio de los experimentos donde se disuelve más uranio por una oxidación previa de la muestra lo que genera mayor cantidad de uranio y por ende mayor cantidad de Pu y Nd lo que a su vez genera que haya estos valores tan similares. De la misma manera, el Tc y el Mo son susceptibles a la oxidación generando una mayor disolución de estos. También observamos que para las muestras 60MID y FULL, el Cs se disuelve más cantidad para la muestra 60FULL.

El GQ no es un factor predominante en la disolución de RN, no hay una correlación clara de a mayor GQ más cantidad se disuelve, es cierto que las muestras 42MID Y FULL suelen disolver cantidades bajas, pero también es cierto que el 54FULL es por lo general la muestra que menos segrega y el 54MID la muestra que en la mayoría de las veces la que más disuelve. Esto es debido a que hay más parámetros para tener en cuenta a la hora de las disoluciones, así como la temperatura o las condiciones del reactor o pretratamientos de la muestra de CNG y también la química y propiedades de los RN presentes.

Por lo que hace la congruencia, se espera que los RN congruentes sean: Pu, Nd, Mo y Tc. Los RN que se encuentra por debajo de los valores experimentales: Cs y Sr y por último aquellos que están por encima: Ru y Rh. Vemos que tanto el Cs como el Sr se cumple lo previsto ya que su disolución no es regida por la matriz del uranio, en particular, es importante el caso del estroncio, radionucleido que durante muchos años se tomó como un indicador de la disolución de la matriz del combustible ya que se disolvía congruentemente con el uranio, en este trabajo se demuestra la no congruencia entre uranio y estroncio. Para los metales de transición como el Ru y Rh también se cumple en casi todos los casos estudiados, menos en la muestra 54MID donde la curva del modelo SERNIM se halla por debajo de los valores obtenidos experimentalmente. En principio no debería suceder tal cosa puesto que la bibliografía nos dice que estos RN forman precipitados sólidos que son muy poco solubles y esta solubilidad no es congruente con la disolución de la matriz  $UO_2$ . Se observa para los dos casos que la muestra 54MID disuelve una gran cantidad de moles, valores que están a la orden de  $10^{-7}$ , cuando lo

normal y en el resto de los casos es que sean valores del orden de  $10^{-9}$  o  $10^{-10}$ . Para el Pu observamos que el modelo SERNIM está por encima de los valores experimentales en las muestras 42MID/FULL y 60MID/FULL y por debajo en las muestras 54MID y 54 FULL. El Nd tiene un comportamiento parecido al Pu en las muestras 42 y 54 FULL el modelo está por encima de los valores experimentales. Se ajusta con el modelo SERNIM en las muestras 42 y 60 MID y para las muestras 54MID y 60 FULL el modelo se encuentra por debajo de los valores experimentales. Observamos que las muestras que se espera una preoxidación, el modelo SERNIM se encuentra por encima de los valores experimentales para los modelos con una preoxidación mucho menor como el 42 y 60 MID se ajusta muy bien. Para el Tc se observa una clara tendencia a estar por debajo de los valores experimentales salvo para las muestras 60 MID y FULL. En el caso del Mo se ve un comportamiento muy parecido al Tc, salvo en la muestra 54MID donde el modelo SERNIM se ajusta a los valores experimentales, en las demás muestras se encuentra por debajo en algunos casos como las muestras 60MID y FULL esta variancia es muy ligera. Las muestras MID se ajustan mejor que los FULL en la mayoría de los casos. Y para la mayoría de RN para un GQ 60 GWd/tU, permite un ajuste mucho mejor con el modelo SERNIM.

Como se ha observado, en muchos casos la muestra suele estar por debajo de los valores experimentales, esto puede ser debido a varios factores en el caso del Cs y el Sr puede ser debido a la complejidad para acceder al lixivante en los límites de grano u otras zonas que también existen estos RN, o la presencia de diferentes fases como el Tc y el Mo fases más o menos solubles o también la contribución de los límites de grano como en los casos anteriores. En los casos donde el modelo ha representado valores por encima de los experimentales como son el Ru y el Rh, es debido a la formación de precipitados metálicos insolubles o de baja solubilidad y para el Pu y el Nd debido a una oxidación previa de las muestras de CNG. Por ello para el Tc, Mo, Cs y el Sr se ha llegado a cabo un segundo ajuste llamado SERNIM\_ALT en la cual se le añade una tercera contribución. Se observó que el Tc y el Mo esta tercera contribución mejoraba el ajuste principalmente para las muestras 60 MID y FULL en cambio para el Cs y el Sr si es cierto que había una mejora, pero no se conseguía ajuste bien en los últimos tramos. Por ello se llevó a cabo un nuevo ajuste suponiendo que sus contribuciones proceden del huelgo (gap en inglés) y los límites de grano (GB) y se observa que los ajustes son muy buenos para los dos RN.

Al ser las muestras pastillas el agua o lixivante de turno le es difícil de acceder por los huelgos o granos de la pastilla a diferencia de muestras en polvo que el acceso a estos granos es más asequible y permite

un mejor ajuste. A medida que se aumenta los GQ, mejor se ajusta el modelo esto es debido al desgaste y deterioro de las muestras de CNG permitiendo una mayor accesibilidad del agua.

En resumen:

- El modelo SERNIM es válido para modelizar la disolución del uranio en pastillas de CNG para diversos rangos de GQ y sección de pastilla.
- Los experimentos MID disuelven en su mayoría más cantidad de RN que las muestras FULL. La muestra 54MID es la que más disuelve en la mayoría de los casos y la muestra 54FULL la que menos.
- No se ve una relación entre el GQ y la liberación de los RN, sino que se debería tener en cuenta más factores como la química de los RN o las condiciones o el estado físico en el que se encuentra el combustible.
- El acceso del lixiviante en los límites de grano es mucho más complejo en muestras de pastilla que no en muestras en polvo, por ello más factible un buen ajuste en muestras polvo que no en pastilla.
- El Pu, Nd, Mo y Tc son congruentes con la matriz de uranio en la mayoría de las muestras. Tanto el Cs como el Sr son segregados de la matriz y contribuyen al IRF. Los resultados obtenidos del Ru y Rh son acordes a la literatura, observándose una disolución más baja que el uranio.
- La dificultad de poder modelizar todas estas muestras es elevada, debido a la complejidad de las pastillas de CNG, donde se debe tener en cuenta muchas variables desde el simple hecho de ser una pastilla y no polvo o el hecho de que el corte sea de una zona diferente a la otra, así como el GQ, temperatura, condiciones de los experimentos y la química de los RN (factor muy importante) entre otros.

## 6. Presupuesto y/o Análisis Económico

A continuación, se lleva a cabo un estudio económico de este proyecto. Como se dijo es un trabajo totalmente teórico, los costes materiales han sido mínimos, por lo que solamente se tiene en cuenta los costes asociados a recursos humanos. Los cálculos de este coste se han realizado teniendo en cuenta los recursos mostrados en la Tabla 6.1.

**Tabla 6.1:** Presupuesto económico del proyecto.

Recursos	Tiempo invertido (h)	Precio (€/h)	Coste (€)
Búsqueda y lectura bibliográfica	200	14	2800
Tratamiento de datos (modelización)	300	14	4200
Redacción de la memoria	300	14	4200
Dirección del proyecto	44	35	1540

Vemos que el coste total de este proyecto sería de 12.740 €.



## Bibliografía

1. *Study of near field processes involved in the oxidative dissolution of the spent nuclear fuel and radionuclides release*. Gascon, Alexandra Espriu. [ed.] Universitat Politècnica de Catalunya. Departament d'Enginyeria Civil i Ambiental. Barcelona : s.n., 17 / Julio / 2017.
2. foronuclear. [En línea] 13 / Julio / 2022. <https://www.foronuclear.org/publicaciones-archivo/energia-archivo/2019-version-online/>.
3. Penalonga, Laura Rodríguez. MODELO PARA LA GESTIÓN SOSTENIBLE DEL COMBUSTIBLE NUCLEAR GASTADO. Madrid : s.n., Diciembre / 2019.
4. *Why is China going nuclear?* Zhou, Yun. 7, 2010, [www.elsevier.com/locate/enpol](http://www.elsevier.com/locate/enpol), Vol. 38, p. 3755-3762.
5. Din, Zaheer Ud. Electrochemical studies of gadolinium doped. *Trabajo fin de grado*. Barcelona, España : UPC. Departamento de química, Junio / 2022. p. 87.
6. Pascual, María. newtral. <https://www.newtral.es/energia-nuclear-ue-europa-consumo-produccion-desciende/20210821/>. [En línea] 15 / Julio / 2022. <https://www.newtral.es/>.
7. *Economical analysis of an alternative strategy for CO2 mitigation based on nuclear power*. Gustavo, Alonso i Edmundo, del Valle. 1 / Abril / 2013, [journals.elsevier](http://journals.elsevier.com), Vol. 52, p. 66-76. 0360-5442.
8. Blanco, FREDERIC CLARENS I. Efecto de la radiólisis y de los productos radiolíticos en la disolución del UO<sub>2</sub>: Aplicación al modelo de alteración de la matriz del combustible nuclear gastado. Barcelona : UPC, Departamento de Proyectos de Ingeniería, Mayo / 2004. 8468905720.
9. Alcácer, Adriana Mateu. Comportamiento de los productos de fisión en el combustible nuclear gastado: El caso del Molibdeno. [Trabajo final de grado]. Barcelona : Universitat Politecnica de Catalunya, Junio / 2020.
10. B.Krauskopf, Konrad. Aqueous geochemistry of radioactive waste disposal. 1 Enero-Febrero / 1986. Vol. 1, p. 15-26. 0883-2927.
11. Gregory Choppin, Jan-Olov Liljenzin, JAN RYDBERG, Christian Ekberg. *Radiochemistry and Nuclear Chemistry*. s.l. : Butterworth-Heinemann, 1995. p. 583-638. Vol. 2nd Edition of Nuclear Chemistry, Theory and Applications. 9781483293462.
12. Súnico, Alfonso de la Torre Fernández del Pozo y Luis Palacios. Cuestiones Sobre la Energía. 2 [Documento]. Madrid : Foro de la Industria Nuclear Española., Enero / 2007. p. 210-221.

13. *Conversión núcleo-eléctrica: una aproximación desde la ingeniería física*. Suárez-Ántola, Roberto. 6-19, s.l. : Edición especial, 2011.
14. Arana, José Manuel Jiménez. dialnet. [En línea] Capitulo II, 1991. [Data: 23 / Julio / 2022.] <https://dialnet.unirioja.es/ejemplar/205008>.
15. Ocón, Ana María Vico. Metodología para la desclasificación radiológica de instalaciones del ciclo del combustible nuclear. [Documento]. Madrid : Universidad Complutense de Madrid, 2019. Vol. I, p. 163.
16. *The Economics of the Nuclear Fuel Cycle*. OECD/NEA. NEA#386, Paris, France : OECD/NEA, Enero / 1994.
17. Pastor, Rosa Maria Sureda. Disolución del combustible nuclear gastado en un almacén geológico profundo. Efecto de los productos radiolíticos y de formación de fase secundaria. Barcelona : Universidad Politecnica de Catalunya, Diciembre / 2011. p. 29-36.
18. *Lifetime Predictions for Nuclear Waste Disposal Containers*. King, Fraser & Kolar, Miroslav. 3, Setiembre / 2018, CORROSION, Vol. 75, p. 309-323. 0010-9312.
19. *Post-closure safety*. SKB-SR97. Estocolmo : SKB, Noviembre / 1999.
20. ENRESA. Almacenamiento Geológico Profundo de Residuos Radiactivos de Alta Actividad (AGP). Diseños conceptuales genéricos. *PT-11-95, 1995, pp. 106*. Madrid, España : s.n., 1995. 11-95, p. 106.
21. Calvo, José Luis García. Desarrollo de materiales de construcción con cemento de bajo pH, compatibles con la barrera de ingeniería de un almacenamiento geológico profundo de residuos radiactivos de alta actividad. Madrid, España : Universidad Autónoma de Madrid. Facultad de Ciencias; CSIC. Instituto de Ciencias de la Construcción Eduardo Torroja (IETcc), 2012. p. 291.
22. *Small-strain shear stiffness of compacted bentonites for engineered barrier system*. X. Pintado, E. Romero, J. Suriol, A. Lloret, y B. N. Madhusudhan. s.l. : elsevier, Junio / 2018, Vol. 18, p. 1-12.
23. Alexandra Espriu-Gascon, Albert Martínez-Torrents, Daniel Serrano-Purroy, Javier Giménez, Joan de Pablo, Ignasi Casas. Contribution of phases segregated from the UO<sub>2</sub> matrix to the release of radionuclides from spent nuclear fuel and duration of the Instant Release Fraction (IRF). Barcelona : s.n., 2020. Vol. 532, 152066. 0022-3115.
24. *Thermal evolution near heat-generating nuclear waste canisters disposed in horizontal drillholes*. S. Finsterle, R. A. Muller, R. Baltzer, J. Payer, y J. W. Rector. 4, Knoxville : ANS conference proceedings, Abril / 2019, Vol. 12 , p. 596.

25. *Long-term storage of spent nuclear fuel*. Ewing, Rodney C. 14, 2015, p. 252-257.
26. *The chemical state of the fission products in oxide fuels*. Kleykamp, H. 2-3, Amsterdam : s.n., 1985, elsevier, Vol. 131, p. 221-246.
27. Shoesmith, D.W. i Sunder, S. The prediction of nuclear fuel (UO<sub>2</sub>) dissolution rates under waste disposal conditions. s.l. : Elsevier, 2 / agosto / 1992. Vol. 190, p. 20-35.
28. *EFFECTS OF AIR OXIDATION ON THE DISSOLUTION RATE OF LWR SPENT FUEL*. Gray, W. J., Thomas, L. E. i Einzige, R. E. 47, 1992, Vol. 294.
29. Esther, Cera, Juan, Merino i Jordi, Bruno. Liberación de los radionucleidos e isótopos estables contenidos en la matriz del combustible. Modelo conceptual y modelo matemático del comportamiento del residuo. Madrid : TransEdit, Junio / 2000. p. 21-23. 1134-380X.
30. *Rapid aqueous release of fission products from high burn-up LWR fuel: Experimental results and correlations with fission gas release*. Johnson, L., et al. s.l. : Elsevier, 2012, Vol. 420, p. 54-62.
31. Albert Martínez-Torrents, Daniel Serrano-Purroy, Rosa Sureda, Ignasi Casas, Joan de Pablo. Instant release fraction corrosion studies of commercial UO<sub>2</sub> BWR spent nuclear fuel. [Artículo científico]. Barcelona : Journal of Nuclear Materials, 2017. Vol. 488. 0022-3115.
32. *Influence of the interpellet space to the Instant Release Fraction determination of a commercial UO<sub>2</sub> Boiling Water Reactor Spent Nuclear Fuel*. Martinez, A., Serrano-Purroy, D., Casas, I., De Pablo, J. Barcelona : Elsevier, Febrero / 2018, Journal of nuclear materials, Vol. 499, p. 9-17.
33. Serrano, J.A. *Caracterización y lixiviación de combustibles nucleares irradiados y de sus análogos químicos*. Madrid : Enresa, 2000. 1134-380X.
34. *METALLIC FISSION-PRODUCT INCLUSIONS IN IRRADIATED OXIDE FUELS*. J. I. BRAMMAN, R. M. SHARPE, D. THOM and G. YATES. 25, Amsterdam : Journal of Nuclear Materials, 1968, p. 201-215.
35. Nuclear Energy Agency. <https://www.oecd.org/>. [En línea] 10 / Septiembre / 2010. [Data: 15 / Julio / 2010.]
36. El País. <https://elpais.com>. [En línea] 22 / Junio / 2011. [Data: 15 / Julio / 2022.] [https://elpais.com/diario/2011/06/22/opinion/1308693611\\_850215.html](https://elpais.com/diario/2011/06/22/opinion/1308693611_850215.html).



## Anexo A

### A1. Valores experimentales

Tabla A. 1: Valores experimentales de la muestra 42MID.

Tiempo(d)	0,06	0,21	1,20	2,19	5,20	7,23	9,08	12,17	55,21	132,03
Cs	2,39E-07	3,81E-07	4,66E-07	4,82E-07	5,02E-07	5,09E-07	5,14E-07	5,20E-07	5,26E-07	5,66E-07
Sr	1,23E-09	2,71E-09	6,09E-09	7,12E-09	9,35E-09	1,01E-08	1,08E-08	1,15E-08	1,32E-08	2,20E-08
Nd	9,57E-10	1,15E-09	1,66E-09	2,04E-09	2,87E-09	3,64E-09	4,25E-09	4,48E-09	8,07E-09	1,07E-08
U	4,72E-08	5,80E-08	1,06E-07	1,47E-07	2,77E-07	3,68E-07	4,42E-07	5,31E-07	5,96E-07	7,11E-07
Pu	7,69E-10	9,53E-10	1,62E-09	2,05E-09	2,99E-09	3,65E-09	4,10E-09	4,36E-09	5,37E-09	6,85E-09
Mo	1,63E-09	2,72E-09	3,99E-09	4,57E-09	6,13E-09	7,03E-09	7,83E-09	8,70E-09	1,11E-08	3,16E-08
Tc	2,73E-10	4,03E-10	6,31E-10	7,48E-10	1,02E-09	1,18E-09	1,37E-09	1,65E-09	5,81E-09	4,91E-08
Ru	1,76E-10	2,27E-10	2,83E-10	3,09E-10	3,98E-10	4,67E-10	5,34E-10	5,80E-10	7,00E-10	8,17E-10
Rh	5,89E-11	7,75E-11	1,05E-10	1,19E-10	1,42E-10	1,99E-10	2,15E-10	2,32E-10	2,79E-10	3,68E-10

Tabla A. 2: Valores experimentales de la muestra 42FULL.

Tiempo (d)	0,08	0,25	1,25	4,25	8,25	21,25	49,25	83,25	162,25	190,25	362,25
Cs	1,5E-08	2,3E-08	2,9E-08	3,3E-08	4,6E-08	5,5E-08	6,2E-08	7,1E-08	8,5E-08	9,6E-08	1,8E-07
Sr	4,6E-10	1,0E-09	1,7E-09	2,2E-09	3,4E-09	5,0E-09	6,4E-09	8,5E-09	1,2E-08	1,4E-08	3,4E-08
Nd	1,1E-09	1,7E-09	2,5E-09	2,7E-09	3,0E-09	3,5E-09	3,8E-09	5,2E-09	1,2E-08	1,3E-08	3,4E-08
U	1,1E-07	2,3E-07	4,0E-07	5,2E-07	7,5E-07	1,1E-06	1,5E-06	1,8E-06	2,0E-06	2,1E-06	2,7E-06
Pu	1,3E-09	2,1E-09	3,1E-09	3,5E-09	4,0E-09	4,7E-09	5,4E-09	6,6E-09	8,1E-09	9,3E-09	2,4E-08
Mo	5,8E-09	1,1E-08	1,7E-08	2,1E-08	3,0E-08	4,2E-08	5,5E-08	6,8E-08	8,5E-08	1,0E-07	2,1E-07
Tc	1,3E-09	2,0E-09	2,9E-09	3,5E-09	4,9E-09	7,1E-09	9,4E-09	1,2E-08	1,5E-08	1,8E-08	4,4E-08
Ru	1,1E-10	1,7E-10	2,2E-10	2,5E-10	2,7E-10	2,8E-10	3,0E-10	3,2E-10	7,8E-10	7,8E-10	9,3E-10
Rh	6,3E-11	9,7E-11	1,4E-10	1,6E-10	1,6E-10	1,8E-10	1,9E-10	2,1E-10	3,1E-10	3,2E-10	8,0E-10

Tabla A. 3: Valores experimentales de la muestra 54MID.

Tiempo (d)	0,05	0,19	1,03	2,05	6,05	9,01	22,19	64,21	131,18	315,23	497,08	576,03
Cs	7,1E-07	9,4E-07	1,1E-06	1,1E-06	1,2E-06	1,2E-06	1,2E-06	1,3E-06	1,4E-06	1,4E-06	1,7E-06	1,8E-06
Sr	4,8E-09	1,4E-08	2,2E-08	2,3E-08	2,9E-08	3,1E-08	4,2E-08	6,5E-08	8,1E-08	9,7E-08	1,5E-07	1,6E-07
Nd	7,9E-09	1,8E-08	2,9E-08	3,4E-08	5,0E-08	5,7E-08	8,5E-08	1,3E-07	1,7E-07	1,9E-07	2,9E-07	3,1E-07
U	3,9E-07	6,6E-07	1,1E-06	1,4E-06	2,0E-06	2,2E-06	3,4E-06	5,9E-06	7,7E-06	1,0E-05	1,7E-05	1,9E-05
Pu	4,0E-09	9,8E-09	1,7E-08	2,0E-08	2,7E-08	2,9E-08	3,3E-08	4,1E-08	5,3E-08	6,2E-08	7,9E-08	8,7E-08
Mo	4,3E-09	6,3E-09	1,0E-08	1,2E-08	1,5E-08	1,9E-08	2,8E-08	5,8E-08	1,0E-07	2,3E-07	2,3E-07	2,7E-07
Tc	2,4E-09	3,5E-09	6,9E-09	7,9E-09	1,0E-08	1,1E-08	2,0E-08	6,4E-08	1,2E-07	1,9E-07	2,6E-07	2,8E-07
Ru	1,6E-09	6,5E-09	2,3E-08	3,0E-08	4,0E-08	4,3E-08	5,2E-08	6,3E-08	7,0E-08	9,0E-08	1,1E-07	1,2E-07
Rh	3,1E-10	6,6E-10	1,2E-09	1,3E-09	1,6E-09	1,8E-09	2,9E-09	1,4E-08	3,0E-08	5,6E-08	6,8E-08	7,4E-08

**Tabla A. 4:** Valores experimentales de la muestra 54FULL.

Tiempo (d)	0,08	0,25	1,25	4,25	8,25	21,25	49,25	83,25	162,25	190,25	362,25
<b>Cs</b>	1,9E-08	4,0E-08	8,5E-08	9,9E-08	1,3E-07	1,8E-07	2,1E-07	2,5E-07	2,8E-07	2,9E-07	3,9E-07
<b>Sr</b>	2,5E-10	7,2E-10	2,0E-09	2,6E-09	4,3E-09	6,9E-09	9,6E-09	1,5E-08	1,8E-08	2,0E-08	3,1E-08
<b>Nd</b>	2,3E-10	3,0E-10	5,3E-10	1,0E-09	1,4E-09	2,0E-09	2,5E-09	3,6E-09	4,4E-09	4,6E-09	9,2E-09
<b>U</b>	2,9E-08	7,0E-08	1,7E-07	2,8E-07	4,9E-07	7,2E-07	8,3E-07	8,9E-07	1,0E-06	1,1E-06	1,2E-06
<b>Pu</b>	1,9E-10	2,6E-10	4,4E-10	5,9E-10	8,8E-10	1,2E-09	1,8E-09	2,7E-09	3,3E-09	3,8E-09	6,2E-09
<b>Mo</b>	5,2E-09	7,9E-09	1,0E-08	1,3E-08	1,8E-08	2,6E-08	3,8E-08	5,3E-08	7,0E-08	7,8E-08	1,4E-07
<b>Tc</b>	7,3E-10	1,3E-09	1,7E-09	2,1E-09	4,0E-09	7,9E-09	1,4E-08	2,2E-08	2,8E-08	3,2E-08	5,8E-08
<b>Ru</b>	3,6E-11	5,2E-11	8,1E-11	1,1E-10	1,3E-10	1,8E-10	2,0E-10	2,2E-10	2,5E-10	2,5E-10	2,7E-10
<b>Rh</b>	2,5E-11	3,8E-11	5,6E-11	7,7E-11	9,2E-11	1,0E-10	1,1E-10	1,3E-10	1,4E-10	1,4E-10	2,0E-10

**Tabla A. 5:** Valores experimentales de la muestra 60MID.

Tiempo(d)	0,05	0,16	1,06	2,03	5,21	9,03	16,02	40,24	111,03	210,07
<b>Cs</b>	2,7E-07	4,1E-07	8,2E-07	1,0E-06	1,5E-06	1,7E-06	1,8E-06	1,9E-06	2,0E-06	2,1E-06
<b>Sr</b>	2,1E-09	3,5E-09	5,7E-09	8,4E-09	1,7E-08	2,2E-08	2,7E-08	3,4E-08	4,1E-08	4,8E-08
<b>Nd</b>	3,8E-09	8,0E-09	1,1E-08	1,4E-08	1,7E-08	2,1E-08	2,8E-08	4,5E-08	6,3E-08	7,6E-08
<b>U</b>	3,3E-07	6,5E-07	9,3E-07	1,1E-06	1,4E-06	1,7E-06	2,0E-06	2,8E-06	3,8E-06	4,7E-06
<b>Pu</b>	3,3E-09	7,2E-09	1,0E-08	1,2E-08	1,4E-08	1,5E-08	1,7E-08	1,9E-08	2,2E-08	2,5E-08
<b>Mo</b>	9,0E-09	1,6E-08	2,4E-08	2,8E-08	3,1E-08	3,4E-08	3,7E-08	4,5E-08	6,0E-08	7,7E-08
<b>Tc</b>	1,7E-09	2,5E-09	4,3E-09	4,9E-09	5,4E-09	5,7E-09	6,1E-09	7,2E-09	1,1E-08	2,3E-08
<b>Ru</b>	1,1E-09	2,1E-09	2,8E-09	3,3E-09	3,6E-09	3,8E-09	3,9E-09	4,4E-09	4,9E-09	5,4E-09
<b>Rh</b>	2,1E-10	3,9E-10	5,5E-10	6,6E-10	7,2E-10	7,6E-10	7,9E-10	8,7E-10	9,6E-10	1,1E-09

**Tabla A. 6:** Valores experimentales de la muestra 60MFULL.

Tiempo(d)	0,06	0,17	1,07	2,05	5,23	9,04	16,03	41,05	111,04	210,06
<b>Cs</b>	2,9E-07	5,5E-07	9,2E-07	1,1E-06	1,7E-06	1,8E-06	1,9E-06	2,0E-06	2,1E-06	2,1E-06
<b>Sr</b>	2,0E-10	3,5E-10	1,1E-09	2,9E-09	1,2E-08	1,6E-08	2,0E-08	2,5E-08	3,1E-08	3,9E-08
<b>Nd</b>	3,0E-10	3,9E-10	4,7E-10	7,4E-10	3,4E-09	9,4E-09	1,9E-08	3,8E-08	5,2E-08	6,0E-08
<b>U</b>	3,6E-08	5,4E-08	8,2E-08	1,2E-07	3,2E-07	5,5E-07	8,9E-07	1,6E-06	2,5E-06	2,7E-06
<b>Pu</b>	2,8E-10	3,8E-10	4,8E-10	7,9E-10	1,8E-09	2,8E-09	4,3E-09	6,9E-09	9,5E-09	1,1E-08
<b>Mo</b>	5,7E-09	8,3E-09	1,2E-08	1,5E-08	1,6E-08	1,7E-08	1,8E-08	2,3E-08	3,4E-08	3,9E-08
<b>Tc</b>	8,5E-10	1,3E-09	1,7E-09	1,9E-09	2,1E-09	2,3E-09	2,5E-09	3,1E-09	5,8E-09	1,3E-08
<b>Ru</b>	1,9E-10	3,2E-10	4,8E-10	5,7E-10	6,9E-10	7,9E-10	9,5E-10	1,3E-09	1,8E-09	2,0E-09
<b>Rh</b>	5,6E-11	9,9E-11	1,5E-10	1,7E-10	1,9E-10	2,1E-10	2,3E-10	2,7E-10	3,4E-10	4,1E-10

Tabla A. 7: Valores moles acumulativos de la muestra 42MID.

Tiempo(d)	0,06	0,21	1,2	2,19	5,2	7,23	9,08	12,17	55,21	132,03
<b>Cs</b>	2,4E-07	6,2E-07	1,1E-06	1,6E-06	2,1E-06	2,6E-06	3,1E-06	3,6E-06	4,1E-06	4,7E-06
<b>Sr</b>	1,2E-09	3,9E-09	1,0E-08	1,7E-08	2,6E-08	3,7E-08	4,7E-08	5,9E-08	7,2E-08	9,4E-08
<b>Nd</b>	9,6E-10	2,1E-09	3,8E-09	5,8E-09	8,7E-09	1,2E-08	1,7E-08	2,1E-08	2,9E-08	4,0E-08
<b>U</b>	4,7E-08	1,1E-07	2,1E-07	3,6E-07	6,3E-07	1,0E-06	1,4E-06	2,0E-06	2,6E-06	3,3E-06
<b>Pu</b>	7,7E-10	1,7E-09	3,3E-09	5,4E-09	8,4E-09	1,2E-08	1,6E-08	2,0E-08	2,6E-08	3,3E-08
<b>Mo</b>	1,6E-09	4,4E-09	8,4E-09	1,3E-08	1,9E-08	2,6E-08	3,4E-08	4,3E-08	5,4E-08	8,5E-08
<b>Tc</b>	2,7E-10	6,8E-10	1,3E-09	2,1E-09	3,1E-09	4,3E-09	5,6E-09	7,3E-09	1,3E-08	6,2E-08
<b>Ru</b>	1,8E-10	4,0E-10	6,9E-10	9,9E-10	1,4E-09	1,9E-09	2,4E-09	3,0E-09	3,7E-09	4,5E-09
<b>Rh</b>	5,9E-11	1,4E-10	2,4E-10	3,6E-10	5,0E-10	7,0E-10	9,2E-10	1,1E-09	1,4E-09	1,8E-09

Tabla A. 8: Valores moles acumulativos de la muestra 42FULL.

Tiempo (d)	0,08	0,25	1,25	4,25	8,25	21,25	49,25	83,25	162,25	190,25	362,25
<b>Cs</b>	1,5E-08	3,8E-08	6,7E-08	1,0E-07	1,5E-07	2,0E-07	2,6E-07	3,3E-07	4,2E-07	5,2E-07	7,0E-07
<b>Sr</b>	4,6E-10	1,5E-09	3,1E-09	5,3E-09	8,8E-09	1,4E-08	2,0E-08	2,9E-08	4,0E-08	5,5E-08	8,9E-08
<b>Nd</b>	1,1E-09	2,8E-09	5,3E-09	8,0E-09	1,1E-08	1,5E-08	1,8E-08	2,4E-08	3,6E-08	4,9E-08	8,3E-08
<b>U</b>	1,1E-07	3,4E-07	7,4E-07	1,3E-06	2,0E-06	3,1E-06	4,7E-06	6,5E-06	8,5E-06	1,1E-05	1,3E-05
<b>Pu</b>	1,3E-09	3,5E-09	6,5E-09	1,0E-08	1,4E-08	1,9E-08	2,4E-08	3,1E-08	3,9E-08	4,8E-08	7,3E-08
<b>Mo</b>	5,8E-09	1,6E-08	3,3E-08	5,4E-08	8,4E-08	1,3E-07	1,8E-07	2,5E-07	3,3E-07	4,4E-07	6,4E-07
<b>Tc</b>	1,3E-09	3,3E-09	6,1E-09	9,6E-09	1,5E-08	2,2E-08	3,1E-08	4,3E-08	5,8E-08	7,5E-08	1,2E-07
<b>Ru</b>	1,1E-10	2,8E-10	5,1E-10	7,5E-10	1,0E-09	1,3E-09	1,6E-09	1,9E-09	2,7E-09	3,5E-09	4,4E-09
<b>Rh</b>	6,3E-11	1,6E-10	3,0E-10	4,6E-10	6,2E-10	8,1E-10	1,0E-09	1,2E-09	1,5E-09	1,8E-09	2,6E-09

Tabla A. 9: Valores moles acumulativos de la muestra 54MID.

Tiempo (d)	0,05	0,19	1,03	2,05	6,05	9,01	22,19	64,21	131,18	315,23	497,08	576,03
<b>Cs</b>	7,1E-07	1,7E-06	2,8E-06	3,9E-06	5,1E-06	6,3E-06	7,5E-06	8,8E-06	1,0E-05	1,2E-05	1,3E-05	1,5E-05
<b>Sr</b>	4,8E-09	1,9E-08	4,0E-08	6,4E-08	9,2E-08	1,2E-07	1,7E-07	2,3E-07	3,1E-07	4,1E-07	5,5E-07	7,1E-07
<b>Nd</b>	7,9E-09	2,6E-08	5,4E-08	8,8E-08	1,4E-07	2,0E-07	2,8E-07	4,1E-07	5,8E-07	7,8E-07	1,1E-06	1,4E-06
<b>U</b>	3,9E-07	1,1E-06	2,2E-06	3,6E-06	5,6E-06	7,9E-06	1,1E-05	1,7E-05	2,5E-05	3,5E-05	5,2E-05	7,1E-05
<b>Pu</b>	4,0E-09	1,4E-08	3,1E-08	5,1E-08	7,8E-08	1,1E-07	1,4E-07	1,8E-07	2,3E-07	3,0E-07	3,8E-07	4,6E-07
<b>Mo</b>	4,3E-09	1,1E-08	2,1E-08	3,2E-08	4,8E-08	6,7E-08	9,4E-08	1,5E-07	2,5E-07	4,8E-07	7,2E-07	9,8E-07
<b>Tc</b>	2,4E-09	5,9E-09	1,3E-08	2,1E-08	3,1E-08	4,2E-08	6,2E-08	1,3E-07	2,4E-07	4,3E-07	6,9E-07	9,7E-07
<b>Ru</b>	1,6E-09	8,0E-09	3,2E-08	6,1E-08	1,0E-07	1,4E-07	2,0E-07	2,6E-07	3,3E-07	4,2E-07	5,3E-07	6,5E-07
<b>Rh</b>	3,1E-10	9,7E-10	2,1E-09	3,5E-09	5,1E-09	6,8E-09	9,8E-09	2,4E-08	5,4E-08	1,1E-07	1,8E-07	2,5E-07

**Tabla A. 10:** Valores moles acumulativos de la muestra 54FULL.

Tiempo(d)	0,06	0,21	1,20	2,19	5,20	7,23	9,08	12,17	55,21	132,03
<b>Cs</b>	1,9E-08	5,9E-08	1,4E-07	2,4E-07	3,8E-07	5,6E-07	7,6E-07	1,0E-06	1,3E-06	1,6E-06
<b>Sr</b>	2,5E-10	9,7E-10	3,0E-09	5,6E-09	9,8E-09	1,7E-08	2,6E-08	4,1E-08	5,9E-08	7,9E-08
<b>Nd</b>	2,3E-10	5,3E-10	1,1E-09	2,1E-09	3,5E-09	5,5E-09	8,0E-09	1,2E-08	1,6E-08	2,1E-08
<b>U</b>	2,9E-08	9,9E-08	2,7E-07	5,6E-07	1,0E-06	1,8E-06	2,6E-06	3,5E-06	4,5E-06	5,6E-06
<b>Pu</b>	1,9E-10	4,5E-10	8,8E-10	1,5E-09	2,4E-09	3,6E-09	5,4E-09	8,1E-09	1,1E-08	1,5E-08
<b>Mo</b>	5,2E-09	1,3E-08	2,3E-08	3,6E-08	5,4E-08	8,0E-08	1,2E-07	1,7E-07	2,4E-07	3,2E-07
<b>Tc</b>	7,3E-10	2,0E-09	3,7E-09	5,8E-09	9,8E-09	1,8E-08	3,2E-08	5,4E-08	8,2E-08	1,1E-07
<b>Ru</b>	3,6E-11	8,8E-11	1,7E-10	2,8E-10	4,1E-10	5,9E-10	7,9E-10	1,0E-09	1,3E-09	1,5E-09
<b>Rh</b>	2,5E-11	6,3E-11	1,2E-10	2,0E-10	2,9E-10	3,9E-10	5,1E-10	6,3E-10	7,8E-10	9,2E-10

**Tabla A. 11:** Valores moles acumulativos de la muestra 60MID.

Tiempo(d)	0,05	0,16	1,06	2,03	5,21	9,03	16,02	40,24	111,03	210,07
<b>Cs</b>	2,7E-07	6,7E-07	1,5E-06	2,5E-06	4,0E-06	5,6E-06	7,4E-06	9,3E-06	1,1E-05	1,3E-05
<b>Sr</b>	2,1E-09	5,6E-09	1,1E-08	2,0E-08	3,7E-08	5,9E-08	8,6E-08	1,2E-07	1,6E-07	2,1E-07
<b>Nd</b>	3,8E-09	1,2E-08	2,3E-08	3,7E-08	5,4E-08	7,5E-08	1,0E-07	1,5E-07	2,1E-07	2,9E-07
<b>U</b>	3,3E-07	9,8E-07	1,9E-06	3,0E-06	4,5E-06	6,2E-06	8,2E-06	1,1E-05	1,5E-05	2,0E-05
<b>Pu</b>	3,3E-09	1,0E-08	2,1E-08	3,3E-08	4,7E-08	6,2E-08	7,9E-08	9,8E-08	1,2E-07	1,5E-07
<b>Mo</b>	9,0E-09	2,5E-08	4,9E-08	7,6E-08	1,1E-07	1,4E-07	1,8E-07	2,2E-07	2,8E-07	3,6E-07
<b>Tc</b>	1,7E-09	4,2E-09	8,5E-09	1,3E-08	1,9E-08	2,4E-08	3,1E-08	3,8E-08	4,9E-08	7,3E-08
<b>Ru</b>	1,1E-09	3,2E-09	6,0E-09	9,3E-09	1,3E-08	1,7E-08	2,1E-08	2,5E-08	3,0E-08	3,5E-08
<b>Rh</b>	2,1E-10	6,0E-10	1,2E-09	1,8E-09	2,5E-09	3,3E-09	4,1E-09	5,0E-09	5,9E-09	7,0E-09

**Tabla A. 12:** Valores moles acumulativos de la muestra 60FULL.

Tiempo(d)	0,06	0,17	1,07	2,05	5,23	9,04	16,03	41,05	111,04	210,06
<b>Cs</b>	2,9E-07	8,4E-07	1,8E-06	2,9E-06	4,5E-06	6,4E-06	8,3E-06	1,0E-05	1,2E-05	1,4E-05
<b>Sr</b>	2,0E-10	5,5E-10	1,6E-09	4,5E-09	1,6E-08	3,3E-08	5,3E-08	7,8E-08	1,1E-07	1,5E-07
<b>Nd</b>	3,0E-10	6,9E-10	1,2E-09	1,9E-09	5,3E-09	1,5E-08	3,4E-08	7,2E-08	1,2E-07	1,8E-07
<b>U</b>	3,6E-08	8,9E-08	1,7E-07	2,9E-07	6,2E-07	1,2E-06	2,1E-06	3,7E-06	6,2E-06	8,9E-06
<b>Pu</b>	2,8E-10	6,6E-10	1,1E-09	1,9E-09	3,7E-09	6,6E-09	1,1E-08	1,8E-08	2,7E-08	3,9E-08
<b>Mo</b>	5,7E-09	1,4E-08	2,6E-08	4,1E-08	5,7E-08	7,4E-08	9,3E-08	1,2E-07	1,5E-07	1,9E-07
<b>Tc</b>	8,5E-10	2,1E-09	3,8E-09	5,7E-09	7,9E-09	1,0E-08	1,3E-08	1,6E-08	2,2E-08	3,4E-08
<b>Ru</b>	1,9E-10	5,1E-10	9,9E-10	1,6E-09	2,3E-09	3,0E-09	4,0E-09	5,3E-09	7,0E-09	9,0E-09
<b>Rh</b>	5,6E-11	1,6E-10	3,1E-10	4,8E-10	6,7E-10	8,8E-10	1,1E-09	1,4E-09	1,7E-09	2,1E-09



## A2. Valores modelo SERNIM

### A2.1. Ajuste con el modelo SERNIM

Tabla A. 13: Valores modelo SERNIM para la muestra 42MID.

Tiempo(d)	0,06	0,21	1,2	2,19	5,2	7,23	9,08	12,17	55,21	132,03
<b>Cs</b>	2,2E-10	7,1E-10	3,6E-09	5,8E-09	9,8E-09	1,1E-08	1,2E-08	1,3E-08	1,5E-08	2,0E-08
<b>Sr</b>	1,1E-10	3,5E-10	1,8E-09	2,9E-09	4,8E-09	5,5E-09	5,9E-09	6,3E-09	7,6E-09	9,7E-09
<b>Nd</b>	4,4E-10	1,4E-09	7,0E-09	1,1E-08	1,9E-08	2,2E-08	2,3E-08	2,5E-08	3,0E-08	3,8E-08
<b>U</b>	3,8E-08	1,2E-07	6,0E-07	9,7E-07	1,6E-06	1,9E-06	2,0E-06	2,1E-06	2,6E-06	3,3E-06
<b>Pu</b>	5,0E-10	1,6E-09	8,1E-09	1,3E-08	2,2E-08	2,5E-08	2,7E-08	2,9E-08	3,5E-08	4,4E-08
<b>Mo</b>	4,4E-10	1,4E-09	7,0E-09	1,1E-08	1,9E-08	2,2E-08	2,3E-08	2,5E-08	3,0E-08	3,8E-08
<b>Tc</b>	9,3E-11	2,9E-10	1,5E-09	2,4E-09	4,0E-09	4,6E-09	4,9E-09	5,3E-09	6,4E-09	8,1E-09
<b>Ru</b>	2,2E-10	6,9E-10	3,5E-09	5,7E-09	9,6E-09	1,1E-08	1,2E-08	1,2E-08	1,5E-08	1,9E-08
<b>Rh</b>	4,5E-11	1,4E-10	7,2E-10	1,2E-09	2,0E-09	2,2E-09	2,4E-09	2,5E-09	3,1E-09	3,9E-09

Tabla A. 14: Valores modelo SERNIM para la muestra 42FULL.

Tiempo (d)	0,08	0,25	1,25	4,25	8,25	21,25	49,25	83,25	162,25	190,25	362,25
<b>Cs</b>	1,7E-10	5,2E-10	2,5E-09	7,9E-09	1,4E-08	2,6E-08	3,7E-08	4,3E-08	5,4E-08	5,7E-08	7,9E-08
<b>Sr</b>	8,6E-11	2,6E-10	1,2E-09	3,9E-09	6,8E-09	1,3E-08	1,8E-08	2,1E-08	2,6E-08	2,8E-08	3,9E-08
<b>Nd</b>	3,4E-10	1,0E-09	4,9E-09	1,5E-08	2,7E-08	5,1E-08	7,3E-08	8,4E-08	1,0E-07	1,1E-07	1,5E-07
<b>U</b>	2,8E-08	8,4E-08	4,1E-07	1,3E-06	2,3E-06	4,3E-06	6,2E-06	7,2E-06	9,0E-06	9,6E-06	1,3E-05
<b>Pu</b>	3,9E-10	1,2E-09	5,7E-09	1,8E-08	3,1E-08	5,9E-08	8,4E-08	9,7E-08	1,2E-07	1,3E-07	1,8E-07
<b>Mo</b>	3,4E-10	1,0E-09	4,9E-09	1,5E-08	2,7E-08	5,1E-08	7,3E-08	8,4E-08	1,0E-07	1,1E-07	1,5E-07
<b>Tc</b>	7,2E-11	2,1E-10	1,0E-09	3,3E-09	5,7E-09	1,1E-08	1,5E-08	1,8E-08	2,2E-08	2,4E-08	3,3E-08
<b>Ru</b>	1,7E-10	5,1E-10	2,5E-09	7,8E-09	1,4E-08	2,6E-08	3,7E-08	4,2E-08	5,3E-08	5,6E-08	7,8E-08
<b>Rh</b>	3,5E-11	1,0E-10	5,0E-10	1,6E-09	2,8E-09	5,3E-09	7,5E-09	8,6E-09	1,1E-08	1,1E-08	1,6E-08

Tabla A. 15: Valores modelo SERNIM para la muestra 54MID.

Tiempo (d)	0,05	0,19	1,03	2,05	6,05	9,01	22,19	64,21	131,18	315,23	497,08	576,03
<b>Cs</b>	5,3E-10	2,0E-09	1,0E-08	2,0E-08	4,7E-08	6,1E-08	9,4E-08	1,3E-07	1,8E-07	3,3E-07	4,7E-07	5,3E-07
<b>Sr</b>	2,8E-10	1,0E-09	5,4E-09	1,0E-08	2,4E-08	3,2E-08	4,9E-08	6,9E-08	9,5E-08	1,7E-07	2,4E-07	2,7E-07
<b>Nd</b>	9,4E-10	3,5E-09	1,8E-08	3,5E-08	8,3E-08	1,1E-07	1,7E-07	2,3E-07	3,3E-07	5,8E-07	8,3E-07	9,3E-07
<b>U</b>	7,1E-08	2,6E-07	1,4E-06	2,6E-06	6,3E-06	8,2E-06	1,3E-05	1,8E-05	2,5E-05	4,4E-05	6,2E-05	7,1E-05
<b>Pu</b>	1,0E-10	3,7E-10	2,0E-09	3,7E-09	8,9E-09	1,2E-08	1,8E-08	2,5E-08	3,5E-08	6,2E-08	8,8E-08	1,0E-07
<b>Mo</b>	9,0E-10	3,3E-09	1,8E-08	3,3E-08	8,0E-08	1,0E-07	1,6E-07	2,2E-07	3,1E-07	5,5E-07	7,9E-07	8,9E-07
<b>Tc</b>	1,9E-10	7,2E-10	3,8E-09	7,1E-09	1,7E-08	2,2E-08	3,4E-08	4,8E-08	6,7E-08	1,2E-07	1,7E-07	1,9E-07
<b>Ru</b>	4,7E-10	1,7E-09	9,2E-09	1,7E-08	4,2E-08	5,4E-08	8,3E-08	1,2E-07	1,6E-07	2,9E-07	4,1E-07	4,7E-07
<b>Rh</b>	1,1E-10	4,2E-10	2,2E-09	4,1E-09	1,0E-08	1,3E-08	2,0E-08	2,8E-08	3,9E-08	6,9E-08	9,9E-08	1,1E-07

**Tabla A. 16:** Valores modelo SERNIM para la muestra 54FULL.

Tiempo (d)	0,08	0,25	1,25	4,25	8,25	21,25	49,25	83,25	162,25	190,25	362,25
<b>Cs</b>	2,0E-10	6,0E-10	2,8E-09	7,8E-09	1,2E-08	1,7E-08	2,0E-08	2,4E-08	3,1E-08	3,4E-08	5,1E-08
<b>Sr</b>	1,1E-10	3,2E-10	1,5E-09	4,1E-09	6,2E-09	8,9E-09	1,1E-08	1,2E-08	1,6E-08	1,8E-08	2,6E-08
<b>Nd</b>	3,6E-10	1,1E-09	5,0E-09	1,4E-08	2,1E-08	3,0E-08	3,6E-08	4,2E-08	5,6E-08	6,0E-08	9,0E-08
<b>U</b>	2,8E-08	8,2E-08	3,8E-07	1,1E-06	1,6E-06	2,3E-06	2,7E-06	3,2E-06	4,2E-06	4,6E-06	6,8E-06
<b>Pu</b>	3,9E-11	1,2E-10	5,4E-10	1,5E-09	2,3E-09	3,2E-09	3,9E-09	4,5E-09	5,9E-09	6,5E-09	9,6E-09
<b>Mo</b>	3,5E-10	1,0E-09	4,8E-09	1,3E-08	2,0E-08	2,9E-08	3,5E-08	4,0E-08	5,3E-08	5,8E-08	8,6E-08
<b>Tc</b>	7,5E-11	2,2E-10	1,0E-09	2,9E-09	4,4E-09	6,2E-09	7,4E-09	8,6E-09	1,1E-08	1,2E-08	1,8E-08
<b>Ru</b>	1,8E-10	5,4E-10	2,5E-09	7,0E-09	1,1E-08	1,5E-08	1,8E-08	2,1E-08	2,8E-08	3,0E-08	4,5E-08
<b>Rh</b>	4,4E-11	1,3E-10	6,0E-10	1,7E-09	2,5E-09	3,6E-09	4,3E-09	5,0E-09	6,6E-09	7,2E-09	1,1E-08

**Tabla A. 17:** Valores modelo SERNIM para la muestra 60MID.

Tiempo(d)	0,05	0,16	1,06	2,03	5,21	9,03	16,02	40,24	111,03	210,07
<b>Cs</b>	3,7E-10	1,1E-09	7,0E-09	1,3E-08	3,1E-08	4,8E-08	7,0E-08	1,1E-07	1,4E-07	1,7E-07
<b>Sr</b>	1,6E-10	4,9E-10	3,1E-09	5,8E-09	1,4E-08	2,1E-08	3,1E-08	4,7E-08	6,0E-08	7,4E-08
<b>Nd</b>	5,3E-10	1,6E-09	1,0E-08	1,9E-08	4,4E-08	6,9E-08	1,0E-07	1,5E-07	2,0E-07	2,4E-07
<b>U</b>	4,3E-08	1,3E-07	8,2E-07	1,5E-06	3,6E-06	5,6E-06	8,3E-06	1,3E-05	1,6E-05	2,0E-05
<b>Pu</b>	5,4E-10	1,6E-09	1,0E-08	1,9E-08	4,5E-08	7,0E-08	1,0E-07	1,6E-07	2,0E-07	2,5E-07
<b>Mo</b>	6,8E-10	2,1E-09	1,3E-08	2,4E-08	5,7E-08	8,9E-08	1,3E-07	2,0E-07	2,5E-07	3,1E-07
<b>Tc</b>	1,5E-10	4,5E-10	2,9E-09	5,4E-09	1,3E-08	2,0E-08	2,9E-08	4,4E-08	5,6E-08	6,8E-08
<b>Ru</b>	4,3E-10	1,3E-09	8,3E-09	1,6E-08	3,6E-08	5,7E-08	8,4E-08	1,3E-07	1,6E-07	2,0E-07
<b>Rh</b>	7,5E-11	2,2E-10	1,4E-09	2,7E-09	6,2E-09	9,7E-09	1,4E-08	2,2E-08	2,8E-08	3,4E-08

**Tabla A. 18:** Valores modelo SERNIM para la muestra 60FULL.

Tiempo(d)	0,06	0,17	1,07	2,05	5,23	9,04	16,03	41,05	111,04	210,06
<b>Cs</b>	1,7E-10	5,0E-10	2,9E-09	5,4E-09	1,2E-08	1,8E-08	2,5E-08	3,6E-08	5,3E-08	7,5E-08
<b>Sr</b>	7,7E-11	2,2E-10	1,3E-09	2,4E-09	5,3E-09	8,0E-09	1,1E-08	1,6E-08	2,3E-08	3,4E-08
<b>Nd</b>	2,5E-10	7,2E-10	4,2E-09	7,8E-09	1,7E-08	2,6E-08	3,7E-08	5,3E-08	7,7E-08	1,1E-07
<b>U</b>	2,0E-08	5,8E-08	3,4E-07	6,3E-07	1,4E-06	2,1E-06	3,0E-06	4,2E-06	6,2E-06	8,9E-06
<b>Pu</b>	2,6E-10	7,3E-10	4,3E-09	7,9E-09	1,8E-08	2,7E-08	3,7E-08	5,3E-08	7,8E-08	1,1E-07
<b>Mo</b>	3,2E-10	9,3E-10	5,5E-09	1,0E-08	2,2E-08	3,4E-08	4,7E-08	6,8E-08	9,9E-08	1,4E-07
<b>Tc</b>	7,1E-11	2,0E-10	1,2E-09	2,2E-09	4,9E-09	7,4E-09	1,0E-08	1,5E-08	2,2E-08	3,1E-08
<b>Ru</b>	2,1E-10	5,9E-10	3,5E-09	6,4E-09	1,4E-08	2,1E-08	3,0E-08	4,3E-08	6,3E-08	9,0E-08
<b>Rh</b>	3,5E-11	1,0E-10	6,0E-10	1,1E-09	2,5E-09	3,7E-09	5,1E-09	7,4E-09	1,1E-08	1,5E-08

## A2.2. Ajuste modelo SERNIM\_ALT

Tabla A. 19: Valores modelo SERNIM\_ALT para la muestra 42MID.

Tiempo(d)	0,06	0,21	1,2	2,19	5,2	7,23	9,08	12,17	55,21	132,03
<b>Cs</b>	5,2E-08	1,7E-07	8,8E-07	1,5E-06	2,8E-06	3,3E-06	3,7E-06	4,1E-06	4,6E-06	4,6E-06
<b>Sr</b>	1,2E-09	3,7E-09	1,9E-08	3,1E-08	5,2E-08	6,0E-08	6,4E-08	6,8E-08	7,2E-08	7,4E-08
<b>Mo</b>	1,1E-09	3,3E-09	1,7E-08	2,8E-08	4,9E-08	5,7E-08	6,1E-08	6,6E-08	7,4E-08	8,2E-08
<b>Tc</b>	1,90E-10	5,90E-10	3,00E-09	4,90E-09	8,30E-09	9,60E-09	1,00E-08	1,10E-08	1,20E-08	1,40E-08

Tabla A. 20: Valores modelo SERNIM\_ALT para la muestra 42FULL.

Tiempo(d)	0,08	0,25	1,25	4,25	8,25	21,25	49,25	83,25	162,25	190,25	362,25
<b>Cs</b>	1,5E-09	4,3E-09	2,1E-08	6,8E-08	1,2E-07	2,4E-07	3,5E-07	3,8E-07	4,0E-07	4,1E-07	4,3E-07
<b>Sr</b>	1,2E-10	3,7E-10	1,8E-09	5,8E-09	1,0E-08	2,1E-08	3,3E-08	4,0E-08	4,9E-08	5,1E-08	6,2E-08
<b>Mo</b>	1,5E-09	4,4E-09	2,1E-08	6,1E-08	1,0E-07	1,6E-07	1,9E-07	2,0E-07	2,2E-07	2,3E-07	2,7E-07
<b>Tc</b>	1,6E-10	4,8E-10	2,3E-09	7,5E-09	1,3E-08	2,7E-08	4,2E-08	5,0E-08	5,7E-08	5,8E-08	6,8E-08

Tabla A. 21: Valores modelo SERNIM\_ALT para la muestra 54MID.

Tiempo (d)	0,05	0,19	1,03	2,05	6,05	9,01	22,19	64,21	131,18	315,23	497,08	576,03
<b>Cs</b>	3,8E-08	1,4E-07	7,7E-07	1,5E-06	3,7E-06	5,0E-06	8,2E-06	1,0E-05	1,0E-05	1,0E-05	1,0E-05	1,1E-05
<b>Sr</b>	7,2E-10	2,7E-09	1,4E-08	2,8E-08	7,3E-08	1,0E-07	1,8E-07	2,8E-07	3,2E-07	4,0E-07	4,7E-07	5,0E-07
<b>Nd</b>	2,9E-09	1,1E-08	5,7E-08	1,1E-07	2,5E-07	3,3E-07	4,7E-07	5,6E-07	6,6E-07	9,1E-07	1,2E-06	1,3E-06
<b>Pu</b>	5,4E-10	2,0E-09	1,1E-08	2,1E-08	5,7E-08	7,9E-08	1,5E-07	2,4E-07	2,6E-07	2,9E-07	3,2E-07	3,3E-07
<b>Mo</b>	1,1E-09	4,3E-09	2,3E-08	4,3E-08	1,1E-07	1,4E-07	2,3E-07	3,3E-07	4,3E-07	6,7E-07	9,1E-07	1,0E-06
<b>Tc</b>	5,1E-10	1,9E-09	1,0E-08	2,0E-08	5,2E-08	7,2E-08	1,4E-07	2,3E-07	2,7E-07	3,3E-07	3,8E-07	4,0E-07
<b>Ru</b>	1,0E-09	3,8E-09	2,0E-08	3,8E-08	9,8E-08	1,3E-07	2,3E-07	3,3E-07	3,8E-07	5,1E-07	6,3E-07	6,9E-07
<b>Rh</b>	1,5E-10	5,5E-10	2,9E-09	5,6E-09	1,4E-08	1,9E-08	3,3E-08	5,7E-08	7,7E-08	1,1E-07	1,4E-07	1,5E-07

Tabla A. 22: Valores modelo SERNIM\_ALT para la muestra 54FULL.

Tiempo(d)	0,08	0,25	1,25	4,25	8,25	21,25	49,25	83,25	162,25	190,25	362,25
<b>Cs</b>	9,2E-09	2,7E-08	1,3E-07	3,7E-07	5,8E-07	8,5E-07	9,2E-07	9,2E-07	9,3E-07	9,3E-07	9,5E-07
<b>Sr</b>	2,3E-10	6,9E-10	3,3E-09	9,8E-09	1,6E-08	2,9E-08	3,9E-08	4,4E-08	4,8E-08	5,0E-08	5,8E-08
<b>Pu</b>	5,5E-11	1,6E-10	7,8E-10	2,3E-09	3,8E-09	6,6E-09	9,8E-09	1,2E-08	1,5E-08	1,5E-08	1,9E-08
<b>Mo</b>	7,5E-10	2,2E-09	1,1E-08	3,2E-08	5,4E-08	9,8E-08	1,4E-07	1,6E-07	1,7E-07	1,8E-07	2,1E-07
<b>Tc</b>	2,1E-10	6,3E-10	3,0E-09	9,3E-09	1,6E-08	3,2E-08	4,9E-08	5,8E-08	6,5E-08	6,6E-08	7,2E-08

**Tabla A. 23:** Valores modelo SERNIM\_ALT para la muestra 60MID.

Tiempo(d)	0,05	0,16	1,06	2,03	5,21	9,03	16,02	40,24	111,03	210,07
<b>Cs</b>	3,5E-08	1,1E-07	6,7E-07	1,3E-06	2,9E-06	4,5E-06	6,6E-06	9,4E-06	1,0E-05	1,0E-05
<b>Sr</b>	3,5E-10	1,1E-09	6,9E-09	1,3E-08	3,1E-08	5,0E-08	7,7E-08	1,3E-07	1,8E-07	1,9E-07
<b>Mo</b>	9,1E-10	2,7E-09	1,7E-08	3,2E-08	7,3E-08	1,1E-07	1,6E-07	2,3E-07	2,8E-07	3,4E-07

**Tabla A. 24:** Valores modelo SERNIM\_ALT para la muestra 60FULL.

Tiempo(d)	0,06	0,17	1,07	2,05	5,23	9,04	16,03	41,05	111,04	210,06
<b>Cs</b>	4,4E-08	1,3E-07	7,5E-07	1,4E-06	3,3E-06	5,1E-06	7,5E-06	1,1E-05	1,2E-05	1,2E-05
<b>Sr</b>	2,9E-10	8,4E-10	5,1E-09	9,4E-09	2,2E-08	3,5E-08	5,3E-08	8,6E-08	1,1E-07	1,2E-07
<b>Nd</b>	6,9E-10	2,0E-09	1,2E-08	2,1E-08	4,6E-08	6,7E-08	8,9E-08	1,1E-07	1,4E-07	1,7E-07
<b>Mo</b>	4,6E-09	1,2E-08	4,9E-08	6,5E-08	8,2E-08	9,4E-08	1,1E-07	1,3E-07	1,6E-07	2,0E-07

### A2.3. Ajuste MODELO\_SIN U

**Tabla A. 25:** Valores modelo MODELO\_SIN U para la muestra 42MID.

Tiempo(d)	0,06	0,21	1,2	2,19	5,2	7,23	9,08	12,17	55,21	132,03
<b>Cs</b>	6,4E-08	2,0E-07	1,0E-06	1,7E-06	2,8E-06	3,2E-06	3,4E-06	3,6E-06	4,1E-06	4,7E-06
<b>Sr</b>	1,1E-09	3,6E-09	1,8E-08	3,0E-08	5,0E-08	5,7E-08	6,1E-08	6,5E-08	7,7E-08	9,4E-08
<b>Pu</b>	3,9E-10	1,2E-09	6,3E-09	1,0E-08	1,7E-08	2,0E-08	2,1E-08	2,2E-08	2,6E-08	3,3E-08
<b>Tc</b>	1,2E-10	3,7E-10	2,0E-09	3,3E-09	6,1E-09	7,5E-09	8,6E-09	1,0E-08	2,9E-08	6,2E-08
<b>Ru</b>	6,1E-11	1,9E-10	9,7E-10	1,6E-09	2,6E-09	3,0E-09	3,2E-09	3,4E-09	3,9E-09	4,5E-09
<b>Rh</b>	2,0E-11	6,2E-11	3,2E-10	5,1E-10	8,7E-10	9,9E-10	1,1E-09	1,1E-09	1,4E-09	1,8E-09

**Tabla A. 26:** : Valores modelo MODELO\_SIN U para la muestra 42FULL.

Tiempo (d)	0,08	0,25	1,25	4,25	8,25	21,25	49,25	83,25	162,25	190,25	362,25
<b>Cs</b>	1,3E-09	3,9E-09	1,9E-08	5,9E-08	1,0E-07	2,0E-07	2,9E-07	3,4E-07	4,5E-07	4,8E-07	7,0E-07
<b>Sr</b>	1,3E-10	3,7E-10	1,8E-09	5,7E-09	1,0E-08	2,0E-08	3,0E-08	3,7E-08	5,2E-08	5,7E-08	8,9E-08
<b>Nd</b>	8,1E-11	2,4E-10	1,2E-09	3,7E-09	6,7E-09	1,3E-08	2,2E-08	2,9E-08	4,4E-08	5,0E-08	8,3E-08
<b>Pu</b>	1,3E-10	3,9E-10	1,9E-09	6,0E-09	1,0E-08	2,0E-08	2,9E-08	3,5E-08	4,6E-08	5,0E-08	7,3E-08
<b>Mo</b>	7,2E-10	2,1E-09	1,0E-08	3,3E-08	5,9E-08	1,2E-07	1,8E-07	2,4E-07	3,5E-07	3,9E-07	6,4E-07
<b>Tc</b>	1,4E-10	4,2E-10	2,1E-09	6,5E-09	1,2E-08	2,3E-08	3,6E-08	4,6E-08	6,7E-08	7,4E-08	1,2E-07
<b>Ru</b>	7,2E-12	2,2E-11	1,0E-10	3,3E-10	5,8E-10	1,1E-09	1,7E-09	2,0E-09	2,7E-09	2,9E-09	4,4E-09
<b>Rh</b>	5,8E-12	1,7E-11	8,5E-11	2,7E-10	4,6E-10	8,8E-10	1,3E-09	1,4E-09	1,8E-09	1,9E-09	2,6E-09

**Tabla A. 27:** : Valores modelo MODELO\_SIN U para la muestra 54MID.

Tiempo (d)	0,05	0,19	1,03	2,05	6,05	9,01	22,19	64,21	131,18	315,23	497,08	576,03
<b>Cs</b>	6,0E-08	2,2E-07	1,2E-06	2,2E-06	5,2E-06	6,7E-06	9,5E-06	1,1E-05	1,1E-05	1,3E-05	1,4E-05	1,5E-05
<b>Sr</b>	1,4E-09	5,1E-09	2,7E-08	5,0E-08	1,2E-07	1,5E-07	2,2E-07	2,7E-07	3,3E-07	4,9E-07	6,4E-07	7,1E-07
<b>Pu</b>	1,4E-09	5,2E-09	2,7E-08	5,1E-08	1,2E-07	1,6E-07	2,2E-07	2,6E-07	2,8E-07	3,6E-07	4,3E-07	4,6E-07
<b>Tc</b>	7,3E-10	2,7E-09	1,4E-08	2,7E-08	6,6E-08	8,6E-08	1,4E-07	2,1E-07	3,1E-07	5,8E-07	8,5E-07	9,7E-07
<b>Rh</b>	1,5E-10	5,6E-10	3,0E-09	5,6E-09	1,4E-08	1,8E-08	2,9E-08	4,8E-08	7,5E-08	1,5E-07	2,2E-07	2,5E-07

**Tabla A. 28:** : Valores modelo MODELO\_SIN U para la muestra 54FULL.

Tiempo (d)	0,08	0,25	1,25	4,25	8,25	21,25	49,25	83,25	162,25	190,25	362,25
<b>Cs</b>	1,0E-08	3,0E-08	1,4E-07	3,8E-07	5,8E-07	8,1E-07	9,4E-07	1,0E-06	1,3E-06	1,4E-06	2,0E-06
<b>Sr</b>	2,9E-10	8,5E-10	4,0E-09	1,1E-08	1,7E-08	2,5E-08	3,3E-08	4,2E-08	6,1E-08	6,8E-08	1,1E-07
<b>Nd</b>	1,0E-10	3,0E-10	1,4E-09	3,9E-09	5,9E-09	8,6E-09	1,1E-08	1,3E-08	1,8E-08	1,9E-08	3,0E-08
<b>Pu</b>	7,6E-11	2,2E-10	1,0E-09	2,9E-09	4,4E-09	6,4E-09	7,8E-09	9,3E-09	1,3E-08	1,4E-08	2,1E-08
<b>Mo</b>	1,5E-09	4,4E-09	2,0E-08	5,7E-08	8,7E-08	1,3E-07	1,6E-07	1,9E-07	2,7E-07	2,9E-07	4,6E-07
<b>Tc</b>	3,1E-10	9,3E-10	4,3E-09	1,2E-08	1,9E-08	3,0E-08	4,2E-08	5,7E-08	8,9E-08	1,0E-07	1,7E-07
<b>Ru</b>	1,0E-11	3,1E-11	1,4E-10	3,9E-10	5,9E-10	8,3E-10	9,3E-10	1,0E-09	1,2E-09	1,3E-09	1,8E-09
<b>Rh</b>	6,1E-12	1,8E-11	8,4E-11	2,3E-10	3,5E-10	4,9E-10	5,6E-10	6,2E-10	7,6E-10	8,1E-10	1,1E-09

**Tabla A. 29:** : Valores modelo MODELO\_SIN U para la muestra 60MID.

Tiempo(d)	0,05	0,16	1,06	2,03	5,21	9,03	16,02	40,24	111,03	210,07
<b>Cs</b>	3,2E-08	9,5E-08	6,1E-07	1,1E-06	2,6E-06	4,1E-06	6,1E-06	9,1E-06	1,1E-05	1,3E-05
<b>Pu</b>	3,8E-10	1,2E-09	7,4E-09	1,4E-08	3,2E-08	5,0E-08	7,3E-08	1,1E-07	1,3E-07	1,5E-07
<b>Ru</b>	8,0E-11	2,4E-10	1,5E-09	2,9E-09	6,7E-09	1,1E-08	1,6E-08	2,4E-08	3,0E-08	3,5E-08
<b>Rh</b>	1,6E-11	4,7E-11	3,0E-10	5,6E-10	1,3E-09	2,1E-09	3,1E-09	4,7E-09	5,9E-09	7,0E-09

**Tabla A. 30:** : Valores modelo MODELO\_SIN U para la muestra 60FULL.

Tiempo(d)	0,06	0,17	1,07	2,05	5,23	9,04	16,03	41,05	111,04	210,06
<b>Cs</b>	6,0E-08	1,7E-07	1,0E-06	1,8E-06	4,1E-06	6,0E-06	8,2E-06	1,1E-05	1,2E-05	1,4E-05
<b>Pu</b>	7,1E-11	2,0E-10	1,2E-09	2,2E-09	5,0E-09	7,5E-09	1,1E-08	1,6E-08	2,6E-08	3,9E-08
<b>Ru</b>	2,8E-11	8,1E-11	4,7E-10	8,7E-10	1,9E-09	2,9E-09	4,0E-09	5,4E-09	6,9E-09	9,0E-09
<b>Rh</b>	7,3E-12	2,1E-11	1,2E-10	2,3E-10	5,0E-10	7,4E-10	1,0E-09	1,4E-09	1,7E-09	2,1E-09

### A3. Valores Inventario

Tabla A. 31: Valores inventario muestras 42MID y 42FULL.

	$M_{muestra(MID)}$	$M_{muestra(FULL)}$	$H_U$	$MW$	$\frac{M_{muestra(MID)} \cdot H_U}{MW}$	$\frac{M_{muestra(FULL)} \cdot H_U}{MW}$
Cs	4,65	1,79	2,6E-03	135	8,9E-05	3,5E-05
Sr	4,65	1,79	8,5E-04	89	4,4E-05	1,7E-05
Nd	4,65	1,79	5,5E-03	145	1,8E-04	6,7E-05
U	4,65	1,79	7,7E-01	238	1,5E-02	5,8E-03
Pu	4,65	1,79	1,0E-02	240	2,0E-04	7,8E-05
Mo	4,65	1,79	3,7E-03	98	1,7E-04	6,7E-05
Tc	4,65	1,79	7,9E-04	99	3,7E-05	1,4E-05
Ru	4,65	1,79	1,9E-03	102	8,8E-05	3,4E-05
Rh	4,65	1,79	4,0E-04	103	1,8E-05	6,9E-06

Tabla A. 32: Valores inventario muestras 54MID y 54FULL.

	$M_{muestra(MID)}$	$M_{muestra(FULL)}$	$H_U$	$MW$	$\frac{M_{muestra(MID)} \cdot H_U}{MW}$	$\frac{M_{muestra(FULL)} \cdot H_U}{MW}$
Cs	2,06	1,64	3,9E-03	135	5,9E-05	4,7E-05
Sr	2,06	1,64	1,3E-03	89	3,1E-05	2,4E-05
Nd	2,06	1,64	7,3E-03	145	1,0E-04	8,3E-05
U	2,06	1,64	9,1E-01	238	7,9E-03	6,3E-03
Pu	2,06	1,64	1,3E-03	240	1,1E-05	8,9E-06
Mo	2,06	1,64	4,7E-03	98	9,9E-05	7,9E-05
Tc	2,06	1,64	1,0E-03	99	2,1E-05	1,7E-05
Ru	2,06	1,64	2,6E-03	102	5,2E-05	4,2E-05
Rh	2,06	1,64	6,2E-04	103	1,2E-05	9,9E-06

Tabla A. 33: Valores inventario muestras 60MID y 60FULL.

	$M_{muestra(MID)}$	$M_{muestra(FULL)}$	$H_U$	$MW$	$\frac{M_{muestra(MID)} \cdot H_U}{MW}$	$\frac{M_{muestra(FULL)} \cdot H_U}{MW}$
Cs	2,51	2,62	3,9E-03	135	7,3E-05	7,6E-05
Sr	2,51	2,62	1,2E-03	89	3,3E-05	3,4E-05
Nd	2,51	2,62	6,1E-03	145	1,1E-04	1,1E-04
U	2,51	2,62	8,2E-01	238	8,6E-03	9,0E-03
Pu	2,51	2,62	1,0E-02	240	1,1E-04	1,1E-04
Mo	2,51	2,62	5,3E-03	98	1,4E-04	1,4E-04
Tc	2,51	2,62	1,2E-03	99	3,0E-05	3,1E-05
Ru	2,51	2,62	3,5E-03	102	8,7E-05	9,1E-05
Rh	2,51	2,62	6,1E-04	103	1,5E-05	1,6E-05

## A4. Parámetros

### A4.1. Teniendo en cuenta el Uranio

**Tabla A. 34:** Parámetros modelos SERNIM y SERNIM\_ALT para la muestra 42MID.

Muestra	m(seg) (mol)	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	kseg (d-1)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	4,60E-06	1,25E-08	8,52E-05	0,18	0,28	5,95E-07
Sr	6,40E-08	6,18E-09	4,43E-05	0,26	0,28	5,95E-07
Nd		2,44E-08	1,75E-04	0,22	0,28	5,95E-07
U		2,10E-06	1,51E-02		0,28	5,95E-07
Pu		2,81E-08	2,01E-04	0,24	0,28	5,95E-07
Mo	4,40E-08	2,43E-08	1,74E-04	0,22	0,28	5,95E-07
Tc	6,00E-09	5,17E-09	3,71E-05	0,24	0,28	5,95E-07
Ru		1,23E-08	8,81E-05	0,19	0,28	5,95E-07
Rh		2,50E-09	1,79E-05	0,21	0,28	5,95E-07

**Tabla A. 35:** Parámetros modelos SERNIM y SERNIM\_ALT para la muestra 42FULL.

Muestra	m(seg) (mol)	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	Kseg (d-1)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	3,50E-07	3,28E-08	3,42E-05	0,04	0,06	3,72E-06
Sr	2,30E-08	1,62E-08	1,70E-05	0,02	0,06	3,72E-06
Nd		6,39E-08	6,73E-05		0,06	3,72E-06
U		5,50E-06	5,79E-03		0,06	3,72E-06
Pu		7,35E-08	7,74E-05		0,06	3,72E-06
Mo	1,20E-07	6,37E-08	6,69E-05	0,11	0,06	3,72E-06
Tc	3,50E-08	1,35E-08	1,43E-05	0,03	0,06	3,72E-06
Ru		3,22E-08	3,39E-05		0,06	3,72E-06
Rh		6,54E-09	6,89E-06		0,06	3,72E-06

**Tabla A. 36:** Parámetros modelos SERNIM y SERNIM\_ALT para la muestra 54MID.

Muestra	m(seg) (mol)	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	Kseg (d-1)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	1,00E-05	8,23E-08	5,88E-05	0,08	0,12	1,32E-05
Sr	2,30E-07	4,27E-08	3,05E-05	0,04	0,12	1,32E-05
Nd	3,30E-07	1,45E-07	1,04E-04	0,12	0,12	1,32E-05
U		1,10E-05	7,86E-03		0,12	1,32E-05
Pu	2,30E-07	1,55E-08	1,11E-05	0,04	0,12	1,32E-05
Mo	1,20E-07	1,39E-07	9,93E-05	0,04	0,12	1,32E-05
Tc	2,10E-07	2,99E-08	2,14E-05	0,03	0,12	1,32E-05
Ru	2,20E-07	7,28E-08	5,21E-05	0,05	0,12	1,32E-05
Rh	4,30E-08	1,74E-08	1,24E-05	0,02	0,12	1,32E-05

**Tabla A. 37:** Parámetros modelos SERNIM y SERNIM\_ALT para la muestra 54FULL.

Muestra	m(seg) (mol)	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	Kseg (d-1)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	9,00E-07	1,57E-08	4,69E-05	0,13	0,15	2,07E-06
Sr	3,20E-08	8,14E-09	2,43E-05	0,12	0,15	2,07E-06
Nd		2,77E-08	8,28E-05	0,05	0,15	2,07E-06
U		2,10E-06	6,27E-03	0,13	0,15	2,07E-06
Pu	9,00E-09	2,97E-09	8,85E-06		0,15	2,07E-06
Mo	1,20E-07	2,65E-08	7,92E-05	0,02	0,15	2,07E-06
Tc	5,40E-08	5,71E-09	1,70E-05	0,04	0,15	2,07E-06
Ru		1,39E-08	4,15E-05	0,03	0,15	2,07E-06
Rh		3,31E-09	9,89E-06	0,10	0,15	2,07E-06

**Tabla A. 38:** Parámetros modelos SERNIM y SERNIM\_ALT para la muestra 60MID.

Muestra	m(seg) (mol)	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	Kseg (d-1)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	1,00E-05	1,02E-07	7,31E-05	0,07	0,06	4,18E-06
Sr	1,20E-07	4,54E-08	3,25E-05	0,03	0,06	4,18E-06
Nd		1,48E-07	1,06E-04	0,26	0,06	4,18E-06
U		1,20E-05	8,59E-03		0,06	4,18E-06
Pu		1,51E-07	1,08E-04	0,06	0,06	4,18E-06
Mo	3,00E-08	1,91E-07	1,37E-04	0,14	0,06	4,18E-06
Tc		4,19E-08	3,00E-05	0,06	0,06	4,18E-06
Ru		1,21E-07	8,69E-05	0,14	0,06	4,18E-06
Rh		2,09E-08	1,49E-05	0,14	0,06	4,18E-06

**Tabla A. 39:** Parámetros modelos SERNIM y SERNIM\_ALT para la muestra 60FULL.

Muestra	m(seg) (mol)	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	Kseg (d-1)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	1,20E-05	2,72E-08	7,64E-05	0,06	0,10	3,01E-06
Sr	8,40E-08	1,21E-08	3,40E-05	0,04	0,10	3,01E-06
Nd	6,10E-08	3,96E-08	1,11E-04	0,12	0,10	3,01E-06
U		3,20E-06	8,97E-03		0,10	3,01E-06
Pu		4,02E-08	1,13E-04		0,10	3,01E-06
Mo	6,00E-08	5,09E-08	1,43E-04	1,22	0,10	3,01E-06
Tc		1,12E-08	3,13E-05		0,10	3,01E-06
Ru		3,24E-08	9,08E-05		0,10	3,01E-06
Rh		5,56E-09	1,56E-05		0,10	3,01E-06



## A4.2. Sin tener en cuenta el Uranio.

**Tabla A. 40:** Parámetros MODELO\_SIN U para la muestra 42MID.

Muestra	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	3,60E-06	8,62E-05	0,28	9,78E-05
Sr	6,40E-08	4,43E-05	0,28	5,13E-06
Nd	2,20E-08	1,75E-04	0,28	7,72E-07
U	2,10E-06	1,51E-02	0,28	5,95E-07
Pu	2,20E-08	2,01E-04	0,28	4,03E-07
Mo	4,40E-08	1,74E-04	0,28	1,80E-06
Tc	5,10E-09	3,71E-05	0,28	1,17E-05
Ru	3,40E-09	8,81E-05	0,28	9,38E-08
Rh	1,10E-09	1,79E-05	0,28	2,94E-07

**Tabla A. 41:** Parámetros MODELO\_SIN U para la muestra 42FULL.

Muestra	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	2,40E-07	3,43E-05	0,06	3,73E-05
Sr	2,20E-08	1,70E-05	0,06	1,09E-05
Nd	1,30E-08	6,74E-05	0,06	2,86E-06
U	5,50E-06	5,79E-03	0,06	3,72E-06
Pu	2,40E-08	7,74E-05	0,06	1,73E-06
Mo	1,20E-07	6,70E-05	0,06	2,16E-05
Tc	2,40E-08	1,42E-05	0,06	1,85E-05
Ru	1,30E-09	3,39E-05	0,06	2,54E-07
Rh	1,10E-09	6,89E-06	0,06	6,16E-07

**Tabla A. 42:** Parámetros MODELO\_SIN U para la muestra 54MID.

Muestra	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	4,89E-05	3,96E-05	0,12	1,93E-04
Sr	3,03E-05	2,43E-05	0,12	2,83E-05
Nd	1,04E-04	9,64E-05	0,12	1,78E-05
U	7,86E-03	8,32E-03	0,12	1,32E-05
Pu	1,09E-05	1,11E-04	0,12	3,73E-05
Mo	9,94E-05	9,63E-05	0,12	1,52E-05
Tc	2,13E-05	2,04E-05	0,12	7,14E-05
Ru	5,19E-05	4,85E-05	0,12	1,47E-05
Rh	1,24E-05	9,88E-06	0,12	3,24E-05

**Tabla A. 43:** Parámetros MODELO\_SIN U para la muestra 54FULL.

Muestra	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	7,70E-07	4,61E-05	0,15	7,31E-05
Sr	2,10E-08	2,43E-05	0,15	1,01E-05
Nd	7,60E-09	8,28E-05	0,15	7,38E-07
U	2,10E-06	6,27E-03	0,15	2,07E-06
Pu	5,70E-09	8,85E-06	0,15	4,90E-06
Mo	1,10E-07	7,91E-05	0,15	1,22E-05
Tc	2,20E-08	1,70E-05	0,15	2,44E-05
Ru	8,00E-10	4,15E-05	0,15	6,57E-08
Rh	4,70E-10	9,90E-06	0,15	1,82E-07

**Tabla A. 44:** Parámetros MODELO\_SIN U para la muestra 60MID.

Muestra	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	8,90E-06	6,43E-05	0,06	3,44E-04
Sr	9,70E-08	3,24E-05	0,06	1,64E-05
Nd	1,00E-07	1,06E-04	0,06	8,39E-06
U	1,20E-05	8,59E-03	0,06	4,18E-06
Pu	1,10E-07	1,08E-04	0,06	1,54E-06
Mo	2,30E-07	1,37E-04	0,06	4,53E-06
Tc	3,70E-08	3,00E-05	0,06	5,67E-06
Ru	2,40E-08	8,70E-05	0,06	6,17E-07
Rh	4,70E-09	1,49E-05	0,06	7,42E-07

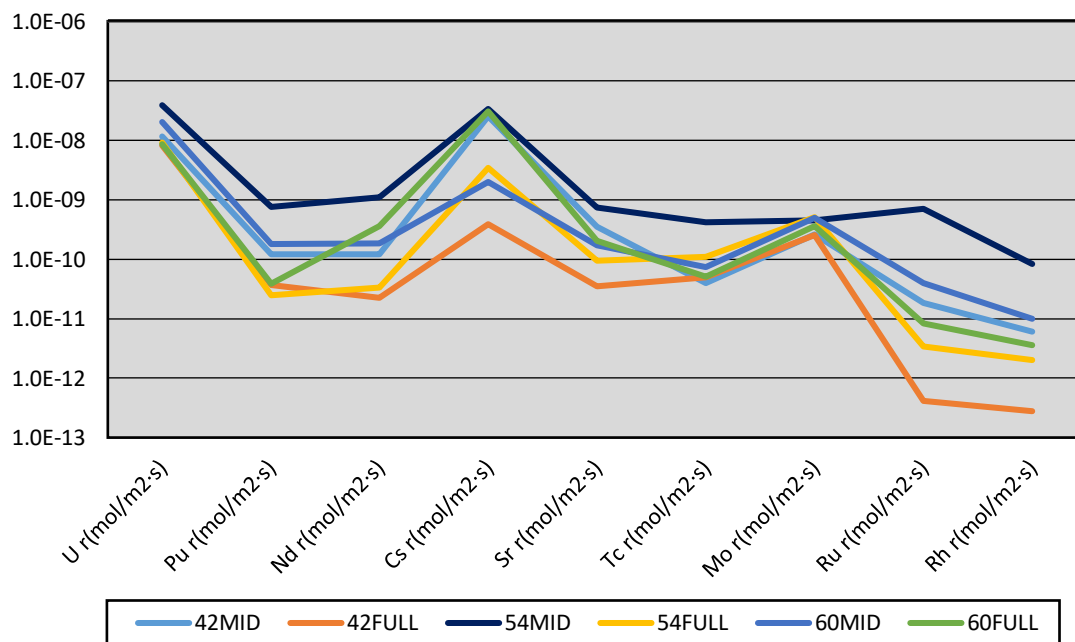
**Tabla A. 45:** Parámetros MODELO\_SIN U para la muestra 60FULL.

Muestra	m (ox, U) (mol)	m(ma) (mol)	kox, U (d-1)	kma (d-1)
Cs	1,00E-05	6,64E-05	0,10	3,34E-04
Sr	6,09E-08	3,39E-05	0,10	1,23E-05
Nd	3,06E-08	1,11E-04	0,10	6,55E-06
U	3,20E-06	8,97E-03	0,10	3,01E-06
Pu	1,08E-08	1,13E-04	0,10	1,18E-06
Mo	1,20E-07	1,43E-04	0,10	2,26E-06
Tc	1,20E-08	3,13E-05	0,10	3,41E-06
Ru	4,60E-09	9,08E-05	0,10	2,32E-07
Rh	1,20E-09	1,56E-05	0,10	2,83E-07

## A5. Cálculo velocidad de disolución

Tabla A. 46: Velocidades de reacción para todas las muestras con el ajuste MODELO\_SIN U.

Modelo	42MID	42FULL	54MID	54FULL	60MID	60FULL
U r(mol/m <sup>2</sup> ·s)	1,2E-08	8,1E-09	3,9E-08	9,1E-09	2,0E-08	8,5E-09
Pu r(mol/m <sup>2</sup> ·s)	1,2E-10	3,6E-11	7,6E-10	2,5E-11	1,8E-10	3,9E-11
Nd r(mol/m <sup>2</sup> ·s)	1,2E-10	2,3E-11	1,1E-09	3,3E-11	1,8E-10	3,6E-10
Cs r(mol/m <sup>2</sup> ·s)	2,5E-08	3,9E-10	3,3E-08	3,4E-09	2,0E-09	3,1E-08
Sr r(mol/m <sup>2</sup> ·s)	3,5E-10	3,5E-11	7,4E-10	9,5E-11	1,7E-10	2,0E-10
Tc r(mol/m <sup>2</sup> ·s)	3,9E-11	4,9E-11	4,1E-10	1,1E-10	7,3E-11	5,1E-11
Mo r(mol/m <sup>2</sup> ·s)	2,6E-10	2,5E-10	4,5E-10	5,1E-10	5,0E-10	3,6E-10
Ru r(mol/m <sup>2</sup> ·s)	1,9E-11	4,2E-13	7,1E-10	3,4E-12	4,0E-11	8,2E-12
Rh r(mol/m <sup>2</sup> ·s)	6,0E-12	2,8E-13	8,3E-11	2,0E-12	9,9E-12	3,6E-12



Gráfica A. 1: Representación de las Velocidades de disolución de la tabla A46.