

Graiciany de Paula Barros

*Estudo inicial de um ADS para a produção de  
 $^{233}\text{U}$  utilizando o código MCNPX*

Belo Horizonte - MG

Agosto / 2009

# **Livros Grátis**

<http://www.livrosgratis.com.br>

Milhares de livros grátis para download.

Graiciany de Paula Barros

*Estudo inicial de um ADS para a produção de  
 $^{233}\text{U}$  utilizando o código MCNPX*

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares como requisito parcial à obtenção do título de Mestre em Ciências e Técnicas Nucleares.

Área de concentração: Engenharia Nuclear e da Energia.

Orientadora: Prof.Dr. Cláudia Pereira Bezerra Lima

Co-orientadora: Prof.Dr. Maria Auxiliadora Fortini Veloso

MESTRADO EM CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES  
DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA NUCLEAR  
ESCOLA DE ENGENHARIA  
UNIVERSIDADE FEDERAL MINAS GERAIS

Belo Horizonte – MG

Agosto / 2009

*Dedico este trabalho  
à minha mãe.*

## *Agradecimentos*

À minha família por todo apoio, em especial a minha mãe por entender minha ausência.

À orientadora Cláudia por toda a paciência, dedicação e entusiasmo contagiante durante a orientação.

À orientadora Maria Auxiliadora pela acolhida e disponibilidade constante.

Ao Fábio pela ajuda constante e empenho em se fazer presente, apesar da distância.

Aos amigos de sempre, Anderson, Eduardo, Iury, Julio, Lorena, Mateus e Vinicius. E aos grandes amigos para a vida que fiz no mestrado, Humberto, Patrícia e Talita.

Aos professores do Departamento de Engenharia Nuclear, em especial a professora Antonella por ser sempre tão prestativa.

Aos funcionários do departamento, Bernadete, Nancy e Vanderlei.

À FAPEMIG, CAPES e CNPq pelo apoio financeiro.

*“Somos o que fazemos repetidamente.  
Por isso o mérito não está na ação e sim no hábito”.*  
*Aristóteles.*

# *Resumo*

Este trabalho propõe a modelagem simplificada de um *Accelerator-driven system* (ADS) para a produção de  $^{233}\text{U}$  e energia. Este tipo de sistema híbrido consiste no acoplamento de um acelerador de partículas e um núcleo de reator subcrítico. O feixe de partículas produzido pelo acelerador é usado para induzir reações de *spallation* em algum tipo de material pesado. Estas reações geram nêutrons que são usados no núcleo subcrítico, possibilitando a manutenção das reações em cadeia. Nesta condição de subcriticalidade e na presença da fonte externa (o acelerador de partículas) é possível produzir energia e também regenerar combustível. Tudo isso com um alto padrão de segurança, já que o sistema é mantido subcrítico durante todo o período de operação. Para esta modelagem é usado o código computacional MCNPX. São analisadas as variações na composição do combustível e no coeficiente de multiplicação efetivo ( $k_{eff}$ ) do sistema. O núcleo subcrítico é abastecido com uma mistura baseada em  $^{232}\text{Th}$  e  $^{233}\text{U}$  e é refrigerado por chumbo. São verificadas a eficiência da utilização de nêutrons com altas energias neste tipo de sistema, bem como uma adequada performance da composição do núcleo utilizada. Entretanto, verifica-se a necessidade da definição de uma fonte mais conveniente aos propósitos de regeneração de combustível no sistema do que a usada neste trabalho.

## *Abstract*

In this work, we propose a modeling approach for an *Accelerator-driven system* (ADS) for the production of  $^{233}\text{U}$  and energy. This type of hybrid system consists of the coupling of a particle accelerator and a subcritical core reactor. The particle beam provided by the accelerator is used to induce spallation reactions in some type of heavy material. These reactions generate neutrons which are used in the subcritical core, enabling sustainability of the chain reactions. Under such subcritical conditions, along with the presence of an external source (the particle accelerator), it is possible to produce energy as well as regeneration fuel. All the modeling is made using the MCNPX code. Analyses of the variation in the fuel composition and the effective multiplication coefficient ( $k_{eff}$ ) of the system are performed. The subcritical core is fueled with a mixture based upon  $^{232}\text{Th}$  and  $^{233}\text{U}$ , and cooled by lead. The efficiency of the use of neutrons with high energy is verified for this type of system, as well as the suitable performance of the core composition used. It is verified, however, the need for a more convenient definition of the source for the purpose of fuel regeneration in the system rather than that used in this work.



# Sumário

<b>Lista de Figuras</b>	p. viii
<b>Lista de Tabelas</b>	p. x
<b>1 Introdução</b>	p. 1
<b>2 Considerações Gerais</b>	p. 4
2.1 O ciclo $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . . . . .	p. 6
2.2 <i>Accelerator Driven Systems</i> . . . . .	p. 8
2.2.1 O espectro de nêutrons . . . . .	p. 8
2.2.2 O combustível . . . . .	p. 12
2.2.3 O alvo para spallation . . . . .	p. 13
2.2.4 Refrigerante . . . . .	p. 16
2.2.5 O acelerador de partículas . . . . .	p. 19
2.3 O código MCNPX . . . . .	p. 20
2.3.1 O método de Monte Carlo e o código MCNPX . . . . .	p. 20
2.3.2 A análise de nêutrons e prótons no código MCNPX . . . . .	p. 21
<b>3 Definição do sistema a ser modelado</b>	p. 23
<b>4 Modelagem</b>	p. 26
4.1 Modelagem de fontes de <i>spallation</i> . . . . .	p. 27
4.1.1 Fonte padrão do código . . . . .	p. 27
4.1.2 Fonte emissora de um feixe parabólico . . . . .	p. 28

4.2	Modelagem do sistema . . . . .	p. 30
<b>5</b>	<b>Resultados e discussão</b>	<b>p. 33</b>
5.1	Resultados para a modelagem com a fonte padrão do código . . . . .	p. 33
5.1.1	Análise da concentração de $^{232}\text{Th}$ durante o período de operação	p. 38
5.1.2	Análise da concentração de $^{233}\text{Pa}$ durante o período de operação	p. 40
5.1.3	Análise da concentração de $^{233}\text{U}$ durante o período de operação	p. 42
5.1.4	Análise da concentração de $^{235}\text{U}$ durante o período de operação	p. 45
5.2	Resultados para a modelagem com a fonte emissora de um feixe parabólico	p. 48
<b>6</b>	<b>Conclusão</b>	<b>p. 51</b>
	<b>Referências Bibliográficas</b>	<b>p. 53</b>

## *Lista de Figuras*

2.1	Ciclo $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ . . . . .	p. 7
2.2	Seção de choque total de absorção para o $^{233}\text{Pa}$ . . . . .	p. 10
2.3	Seção de choque de fissão para o $^{233}\text{Pa}$ . . . . .	p. 10
2.4	Seção de choque total de absorção para o $^{135}\text{Xe}$ . . . . .	p. 11
2.5	Seção de choque de <i>spallation</i> para o $^{208}\text{Pb}$ . . . . .	p. 15
2.6	Seção de choque de <i>spallation</i> para o $^{209}\text{Bi}$ . . . . .	p. 15
2.7	Seção de choque total de absorção para o $^{208}\text{Pb}$ . . . . .	p. 17
2.8	Seção de choque de colisão elástica para o $^{208}\text{Pb}$ . . . . .	p. 17
2.9	Seção de choque de colisão elástica para o $^{209}\text{Bi}$ . . . . .	p. 18
2.10	Representação dos possíveis eventos ocorridos com um nêutron incidente aleatoriamente escolhido. . . . .	p. 21
3.1	Representação esquemática da geometria do sistema simulado. . . . .	p. 24
4.1	Perfil do feixe incidente. . . . .	p. 28
5.1	Evolução da reatividade do nosso sistema operando com a fonte padrão do código. . . . .	p. 35
5.2	Espectro de nêutrons do núcleo. . . . .	p. 37
5.3	Variação de massa para o $^{232}\text{Th}$ . . . . .	p. 38
5.4	Seção de choque total de absorção para o $^{232}\text{Th}$ . . . . .	p. 39
5.5	Seção de choque de captura radiativa para o $^{232}\text{Th}$ . . . . .	p. 39
5.6	Seção de choque de fissão para o $^{232}\text{Th}$ . . . . .	p. 40
5.7	Variação de massa para o $^{233}\text{Pa}$ . . . . .	p. 40
5.8	Seção de choque total de absorção para o $^{233}\text{Pa}$ . . . . .	p. 42

5.9	Seção de choque de captura radiativa para o $^{233}\text{Pa}$ . . . . .	p. 42
5.10	Variação de massa para o $^{233}\text{U}$ . . . . .	p. 43
5.11	Seção de choque total de absorção para o $^{233}\text{U}$ . . . . .	p. 44
5.12	Seção de choque de fissão para o $^{233}\text{U}$ . . . . .	p. 45
5.13	Seção de choque de captura radiativa para o $^{233}\text{U}$ . . . . .	p. 45
5.14	Variação de massa para o $^{235}\text{U}$ . . . . .	p. 46
5.15	Seção de choque de captura radiativa para o $^{234}\text{U}$ . . . . .	p. 46
5.16	Seção de choque total de absorção para o $^{234}\text{U}$ . . . . .	p. 47
5.17	Seção de choque de fissão para o $^{235}\text{U}$ . . . . .	p. 47

## *Lista de Tabelas*

2.1	<i>Reservas mundiais estimadas de tório.</i>	p. 7
3.1	<i>Principais parâmetros de sistema simulado.</i>	p. 25
5.1	<i>Resultados do código para a fonte pontual.</i>	p. 34
5.2	<i>Resultados do código para a fonte emissora de um feixe parabólico.</i>	p. 49

# 1 *Introdução*

A procura por uma melhor qualidade de vida, associada ao aumento da população mundial leva a um crescimento contínuo da demanda energética. Neste cenário, figuram como principais recursos energéticos as fontes hidráulicas, os combustíveis fósseis e os combustíveis nucleares. Entretanto, combustíveis fósseis apresentam diversos problemas, tais como estocagem, transporte e principalmente a emissão de gases altamente poluentes. Além disso, a produção de energia a partir de combustíveis fósseis e fontes hidráulicas já opera próximo à capacidade máxima. Por outro lado, os reatores nucleares tornam-se mais atraentes, quando se consideram as extensas reservas de tório e urânio.

Atualmente, os reatores nucleares de potência mais usados no mundo são os reatores a água leve (*LWR*) e o *Canada deuterium uranium reactor* (Candu). *LWRs* utilizam urânio enriquecido (3 - 5%  $^{235}\text{U}$ ) como combustível, já o *CANDU* utiliza urânio natural que consiste em 0.7% de  $^{235}\text{U}$ . Isto torna o  $^{235}\text{U}$  o principal combustível nuclear físsil. As reservas mundiais de urânio conhecidas serão suficientes para continuar seu uso como combustível nuclear por mais de 200 anos, considerando as taxas atuais de utilização destas reservas. Entretanto, os *LWR* não utilizam de forma eficiente o urânio natural, exploram somente uma pequena fração ( $\approx 1\%$ ) do urânio natural. Quando retirado do reator o combustível queimado ainda possui uma enorme quantidade de material físsil, fissionável e fértil (principalmente  $^{238}\text{U}$ ), que não é utilizada por estes reatores. Além disso, *LWRs* produzem uma substancial quantidade de actínidos tais como *Np*, *Am*, *Cm* que decaem emitindo radiação, fazendo com que a radiotoxicidade do combustível nuclear queimado seja um dos principais problemas destes reatores.

Inúmeras soluções têm sido estudadas para a diminuição do impacto ambiental da disposição final do combustível nuclear, e para o melhor aproveitamento do material fissionável e fértil deste combustível. Uma solução amplamente conhecida para estas questões são os reatores rápidos regeneradores (*FBRs*). Estes reatores são comumente constituídos de um núcleo envolto por um cobertor. O núcleo é abastecido com urânio ou plutônio enriquecidos onde ocorrem fissões em cadeia, e o cobertor com urânio natural.

Os nêutrons produzidos pela fissão são usados para a manutenção das fissões em cadeia e para converter a grande quantidade de material fértil ( $^{238}\text{U}$ ) contida no urânio natural, em material físsil ( $^{239}\text{Pu}$ ). Outros estudos propõem FBRs com cobertores abastecidos com tório natural, para a conversão do  $^{232}\text{Th}$  (o isótopo mais abundante) em  $^{233}\text{U}$ . Portanto, os FBRs além de produzir energia produzem também combustível. Este combustível pode ser usado, por exemplo, em LWRs. Entretanto, reatores regeneradores rápidos não são suficientes para suprir as necessidades de combustível nuclear porque possuem longo tempo de dobramento (10-30 anos).

Outra proposta de extrema relevância para o uso mais eficiente das reservas naturais de urânio e tório são sistemas híbridos regeneradores. Estes sistemas fazem a conversão de material fértil em físsil em um núcleo de reator subcrítico acoplado a uma fonte externa de nêutrons. Esta fonte pode ser nêutrons produzidos por um acelerador de partículas, ou nêutrons produzidos por processos de fusão. Estudos indicam que sistemas híbridos fusão-fissão regeneradores, por exemplo, podem produzir até 30 vezes mais combustível físsil por unidade de energia do que um reator regenerador rápido (Teller, 1981).

Dentre estes sistemas híbridos regeneradores aqueles baseados no acoplamento de um núcleo de reator subcrítico com aceleradores de partículas apresentam a vantagem de serem mais amplamente conhecidos, além de serem tecnologicamente mais factíveis. A fusão apresenta várias dificuldades tecnológicas, enquanto que os aceleradores de partículas são uma tecnologia bem estabelecida.

Nos anos quarenta, já se tinha conhecimento adquirido de pesquisas com aceleradores de partículas, de que o bombardeio de urânio por prótons de alta energia produziria um grande número de nêutrons. E que estes nêutrons poderiam ser usados para a regeneração de material fértil em físsil através de reações nucleares. A partir disso, foi concebida a idéia dos *Accelerator-driven systems* (ADS). Essencialmente, estes sistemas consistem no acoplamento de um acelerador de partículas e um núcleo de reator subcrítico. As partículas produzidas pelo acelerador são usadas para induzir reações de *spallation* em algum tipo de material pesado, resultando na produção de nêutrons. Estes nêutrons são usados no combustível contido no núcleo subcrítico, funcionando como uma fonte externa de nêutrons. Sem essa fonte externa, a condição de subcriticalidade levaria à extinção das reações em cadeia e ocorreria o desligamento do sistema.

Nestas condições de subcriticalidade e na presença desta fonte externa de nêutrons é possível fazer a regeneração de  $^{232}\text{Th}$  e a transmutação do combustível nuclear queimado, altamente radioativo. O isótopo fértil  $^{232}\text{Th}$  ocupa um lugar de relevância dentro do

ciclo do combustível nuclear. É o isótopo mais abundante no tório natural e, como as reservas mundiais de tório são estimadas cerca de três vezes mais abundantes que as de urânio, tem-se um enorme potencial para o seu uso como combustível nuclear. O Brasil, em específico, possui uma das maiores reservas mundiais deste elemento. É também conhecido o fato de que o ciclo do tório contribui para não proliferação nuclear através da baixa produção de rejeitos transurânicos. A possibilidade de queima em ADS de rejeitos nucleares produzidos por reatores convencionais também é de grande importância. Já que os actínídeos presentes neste combustível irradiado podem também ser transmutados em um ADS, diminuindo a meia-vida e radiotoxicidade destes rejeitos.

Neste trabalho, é apresentada uma revisão e uma análise inicial sobre os principais componentes de um ADS propostos dentro da literatura. Com o objetivo de determinar quais são os melhores materiais a serem usados como refrigerante e para o alvo de *spallation*, a faixa do espectro de nêutrons a ser usada e uma descrição da composição isotópica do combustível baseado no ciclo Th/U durante o período de operação. É feita uma modelagem simplificada de um ADS para a produção de energia e regeneração de  $^{232}\text{Th}$  em  $^{233}\text{U}$ . Para tal modelagem é utilizado o código MCNPX, o qual permite acompanhar toda a evolução do combustível durante o período de operação. Através da variação isotópica do combustível é possível acompanhar todo o processo de regeneração do mesmo no sistema. A modelagem é feita definindo-se uma fonte externa (que representa o feixe de partículas geradas pelo acelerador) acoplada a um núcleo abastecido com uma mistura baseada em tório. Os resultados das simulações deste trabalho mostram a necessidade da modelagem de uma fonte mais coerente com os propósitos de regeneração de um ADS.

Este trabalho está organizado da seguinte forma: no Capítulo 2 é feita uma breve revisão e uma pequena análise sobre os componentes de um ADS e sobre o código MCNPX. No Capítulo 3 o modelo proposto para a modelagem é apresentado detalhadamente, e a modelagem do sistema está descrita no Capítulo 4. Os resultados obtidos para os casos simulados são apresentados no Capítulo 5. Finalmente, no Capítulo 6, são apresentadas as considerações finais sobre o trabalho.



## 2 *Considerações Gerais*

Conforme dito anteriormente, dois diferentes sistemas híbridos vêm sendo estudados para a produção de combustível para reatores nucleares convencionais e para a transmutação de rejeitos nucleares. Neles, as fontes externas de nêutrons para a produção de combustível fissil são:

1. Aceleradores de partículas baseados na fragmentação (*spallation*) de núcleos pesados pelo bombardeamento de prótons energéticos ( $\approx 1$  GeV), com liberação de nêutrons altamente energéticos;
2. Reações de fusão (D, T) ou (D, D).

Estes dois mecanismos produzem nêutrons que serão usados para transformar o material fértil em combustível fissil. Por possuírem uma fonte suplementar de nêutrons para a regeneração, estes sistemas podem operar em condições de subcriticalidade. E mesmo sendo sistemas subcríticos, eles podem também ser usados para a produção energética. Esta produção será mais eficiente do que a feita por reatores nucleares comuns, já que ocorrerá simultaneamente a regeneração do combustível.

Comparativamente, a fonte externa proveniente de aceleradores de partículas é mais viável que a fusão, pois o domínio tecnológico da aceleração de partículas é claramente maior do que o domínio da fusão.

O desenvolvimento de ADS vem ao encontro de questões atuais do desenvolvimento do potencial nuclear. Através do acoplamento de duas tecnologias, o acelerador de partículas e a fissão nuclear, estes sistemas permitem a geração de potência e de combustível fissil aliado a altos padrões de segurança, garantidos pela condição de subcriticalidade. Além disso, são uma opção atraente de redução dos problemas com combustível irradiado em LWR, já que podem ser usados para a transmutação de combustível irradiado.

Nos anos quarenta, já se tinha conhecimento adquirido de pesquisas com aceleradores de partículas, de que o bombardeio de urânio por prótons de alta energia produziria um

grande número de nêutrons. É que estes nêutrons poderiam ser usados para a transmutação de material fértil em físsil através de reações nucleares. Em 1941, Glenn Seaborg produziu pela primeira vez plutônio artificial utilizando um acelerador de partículas (*The European Technical Working Group on ADS*, 2001).

Durante o período de 1950 a 1954, o programa MTA (*Materials Testing Accelerator*) do laboratório Lawrence Livermore investigou em detalhes o uso de aceleradores para a produção de material físsil. E em 1960 foi patenteado um acelerador para produção de material físsil por Lawrence *et al.*. A proposta deste sistema era a utilização de urânio natural e tório para a produção de  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{233}\text{U}$ , respectivamente (Lawrence, 1954).

Estudos posteriores (1975-1988) feitos pelo programa *Fertile-to-Fissile Conversion (FERFICON)* - uma colaboração de vários laboratórios - investigaram a dependência de energia, de até 800 MeV, da eficiência de conversão fértil-físsil usando materiais e geometrias mais comumente utilizados (*The European Technical Working Group on ADS*, 2001).

Um conceito relativamente realístico de um acelerador regenerador (ADS) no significado atual, onde a segurança e transmutação de rejeitos nucleares são os principais objetivos, foi desenvolvido por um grupo de pesquisas no *Brookhaven National Laboratory* coordenado por G. Van Tuyle e H. Takahashi (Tuyle *et al.*, 1991).

O primeiro projeto detalhado de um ADS para a transmutação utilizando nêutrons térmicos foi publicado por (Bowman *et al.*, 1992) do grupo Los Alamos, introduzindo o nome *The Accelerator Transmutation of Waste (ATW)*, consistindo em um ADS abastecido e refrigerado por sais fundidos, operando no ciclo Th/U.

Em 1993, um grupo de cientistas do *CERN* liderado por C. Rubbia e F. Carminati apresentou os conceitos básicos do chamado *Energy Amplifier* (Carminati *et al.*, 1993; Rubbia *et al.*, 1995). O *Energy Amplifier* é um sistema nuclear subcrítico baseado no ciclo Th-U, e consiste em um acelerador de prótons de intensidade igual a 1 GeV, diretamente acoplado a um núcleo de reator subcrítico refrigerado a chumbo e abastecido com uma mistura baseada em tório. O objetivo deste sistema é a produção de energia com baixa produção de actínídeos menores e de produtos de fissão de meia-vida longa. Este sistema ocupa ainda um lugar de destaque dentro da literatura especializada.

No Brasil existem algumas publicações sobre o assunto, mas a maioria delas foca apenas uma parte destes sistemas. Frequentemente, simulam apenas o alvo de *spallation* de um ADS (Rossi and Maiorino, 2007).

A seguir serão descritos os aspectos referentes ao ciclo tório/urânio, os aspectos referentes a escolha dos componentes de um ADS e sobre o código computacional MCNPX.

## 2.1 O ciclo $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$

Dentro deste cenário, os estudos de sistemas híbridos para a transmutação de  $^{232}\text{Th}$  em  $^{233}\text{U}$  têm tido merecido destaque, uma vez que o ciclo  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  possui vantagens quando comparado ao ciclo  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ . O ciclo  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  apresenta menor radiotoxicidade do que o ciclo  $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ . No primeiro ciclo há uma menor produção de actínídeos menores ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$  e  $^{244}\text{Am}$ ), pois o tório possui número de massa menor que o urânio. Estes actínídeos apresentam alta radiotoxicidade e meia-vida muito grande o que contribui para um aumento na radiotoxicidade do combustível queimado. Além disso, a conversão de  $^{232}\text{Th}$  em  $^{233}\text{U}$  contribui para não proliferação nuclear, através da baixa produção de transurânicos. Todavia, a corroboração principal ao uso do tório é o fato de suas reservas mundiais serem estimadas cerca de três vezes mais abundantes que as de urânio natural. Além disso, o Brasil possui uma das maiores reservas mundiais de tório, como mostrado na Tabela 2.1.

A maior parte dos elementos radioativos que ocorrem na natureza é membro de uma de três séries radioativas: a do urânio (em que o pai é  $^{238}\text{U}$ ), do actínio (cujo pai é o  $^{235}\text{U}$ ) e do tório ( $^{232}\text{Th}$ ). O tório é um metal descoberto em 1828 pelo químico sueco Jons Jakob Berzelius, que denominou-o Thor, o deus nórdico do trovão. É um metal encontrado em pequenas quantidades em muitos solos e rochas. Solos, em geral, contém cerca de 6 partes por milhão (ppm) de tório. O tório ocorre em diversos minerais, sendo o mais comum o mineral terra rara de tório-fosfato (como as de Catalão-Ouvidor em Goiás), e a monazita, que contém até 12% de óxido de tório.

O tório, assim como o urânio, pode ser usado como combustível nuclear. Embora não seja físsil, o isótopo  $^{232}\text{Th}$  pode capturar um nêutron para produzir o  $^{233}\text{U}$ , o qual é físsil. Então o  $^{232}\text{Th}$ , bem como o  $^{238}\text{U}$ , é um isótopo fértil. Na Figura 2.1, tem-se ilustrado o ciclo  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ .

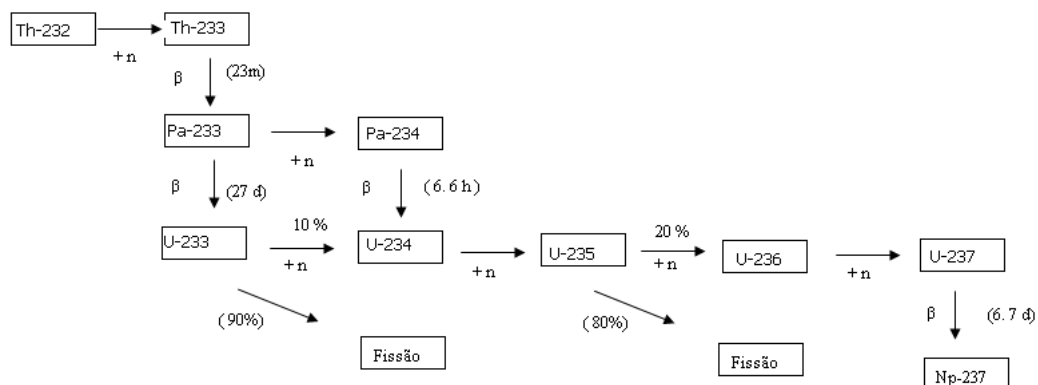
O uso de  $^{233}\text{U}$  é significativamente melhor que o uso de  $^{235}\text{U}$  e  $^{239}\text{Pu}$ , devido a sua maior produção de nêutrons por nêutron absorvido. O  $^{232}\text{Th}$  absorve um nêutron e rapidamente decai para o  $^{233}\text{Pa}$ , por decaimento beta, e este decai mais lentamente para o  $^{233}\text{U}$ . Este material físsil produzido pode ser usado na geração de energia no próprio sistema, caso o ADS em questão seja também gerador de potência. Ou então, este combustível irradiado

Tabela 2.1: Reservas mundiais estimadas de tório.

Pais	Toneladas	% mundial
Austrália	452000	18
USA	400000	16
Turquia	344000	13
Índia	319000	12
Venezuela	300000	12
Brasil	302000	12
Noruega	132000	5
Egito	100000	4
Rússia	75000	3
Groenlândia	54000	2
Canadá	44000	2
África do Sul	18000	1
Outros países	33000	1
Total mundial	2573000	

**Fonte:** OECD/NEA Uranium 2007: Resources, Production and Demand (Red Book) 2008.

pode passar por um processo de separação, a partir do qual o urânio é separado dos demais elementos. Este urânio será usado para o carregamento de um reator gerador de potência.

Figura 2.1: Ciclo  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$

## 2.2 Accelerator Driven Systems

*Accelerator Driven Systems* (ADS) representam uma forma atrativa para a transmutação de resíduos nucleares e também de tório. Conceitualmente estes sistemas consistem no acoplamento entre um acelerador de partículas e o núcleo de um reator subcrítico. Dentre as vantagens de um ADS podem-se citar sua baixa produção de actínídeos de vida-média longa, sua eficiência na queima de actínídeos menores e, além disso, são sistemas de baixa pressão (WNA, 2008).

Em contraste aos reatores convencionais críticos, os quais necessitam manter a reação em cadeia no nível de criticalidade, ADS possuem uma fonte suplementar de nêutrons podendo operar em condições de subcriticalidade. Esses nêutrons suplementares provêm de reações de *spallation* induzidas por prótons altamente energéticos produzidos por um acelerador de partículas.

Tanto a geometria quanto a composição de um ADS são projetadas de forma que estes sistemas sejam sempre subcríticos. Esta condição de subcriticalidade permite um fácil controle destes sistemas. Além disso, sendo a fonte suplementar responsável pela continuidade das fissões em cadeia, seu desligamento implicará na interrupção das reações em cadeia. O que proporciona elevados padrões de segurança. Inúmeras propostas têm sido feitas para os *Accelerator Driven Systems*, com variações nos componentes destes sistemas. As principais escolhas a serem feitas para o projeto desses sistemas são:

- 1) O tipo de espectro de nêutrons: rápido ou térmico.
- 2) O tipo de combustível: sólidos (metálicos, óxidos, nitretos, etc.) ou líquidos (fluoretos, cloretos).
- 3) O tipo de alvo de *spallation*: chumbo, chumbo-bismuto, tungstênio, sal fundido, etc.
- 4) A natureza do refrigerante: gás, metal líquido, sal fundido.
- 5) O acelerador de partículas: cíclotrons ou aceleradores lineares.

A seguir serão detalhados cada um destes itens.

### 2.2.1 O espectro de nêutrons

Já foi apontada a existência de nítidas limitações para o fluxo de nêutrons em ADS que operam com nêutrons de energias térmicas, (Carminati *et al.*, 1993). Segundo Carminati,

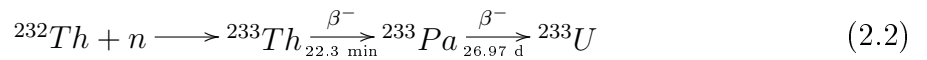
para nêutrons térmicos ( $E = 0.025$  eV), um ADS operando com uma potência de  $\rho = 15.0$  W/g tem fluxo ótimo igual a  $\phi = 2.7 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Enquanto que para o mesmo valor de potência, o fluxo de nêutrons em um ADS que opera na faixa rápida do espectro é aproximadamente 20 vezes maior. Na prática o valor do fluxo depende dos materiais constituintes do sistema e do espectro de energia dos nêutrons, a qual depende da presença ou não de material moderador.

Para se comparar sistemas *Accelerator Driven Systems* do ciclo (Th/U) operando em distintas regiões do espectro, é preciso saber que trata-se de uma competição entre as seções de choque de absorção ( $\sigma_a$ ) e de fissão ( $\sigma_f$ ), já que para a regeneração é necessário um valor apreciável do fator de reprodução do sistema. O fator de reprodução ( $\eta$ ) de um sistema nuclear é definido como sendo o número médio de nêutrons rápidos emitidos por fissão por cada nêutron térmico absorvido pelo combustível. Sendo então, dado pelo produto do número de nêutrons produzidos por fissão ( $\nu$ ) e a razão entre as seções de choque de fissão e de absorção (Equação 2.1).

$$\eta = \nu \frac{\bar{\Sigma}_f}{\bar{\Sigma}_a} \quad (2.1)$$

Em um ADS térmico  $\eta \approx 2.2$  para o  $^{233}\text{U}$ , um valor muito próximo ao valor mínimo ( $\eta = 2$ ) necessário para que ocorra regeneração. Enquanto que para um ADS rápido  $\eta \approx 2.5$ . Ou seja, os sistemas térmicos, apesar de apresentarem alta seção de choque de absorção, não são muito eficientes na regeneração. Isto porque muitas das absorções não geram fissões, e sim reações de capturas radiativas dentre outras.

Uma questão relevante na escolha do espectro de nêutrons é o efeito protactínio. O  $^{233}\text{U}$  é formado quando o  $^{232}\text{Th}$  captura um nêutron, e logo em seguida sofre dois decaimentos  $\beta$ :



A presença do protactínio impõe limites para o fluxo de nêutrons. Esta limitação ocorre devido aos seguintes efeitos do protactínio:

1) O protactínio captura nêutrons, pois possui uma alta seção de choque de absorção de nêutrons (Figura 2.2). Mas como possui pequena seção de choque de fissão (Figura 2.3), acaba causando um decréscimo na reatividade do sistema.

2) Após o desligamento do sistema, o  $^{233}\text{Pa}$  acumulado decai em  $^{233}\text{U}$ , levando a um aumento na reatividade e no valor do fator de multiplicação  $k$ , podendo levar o sistema

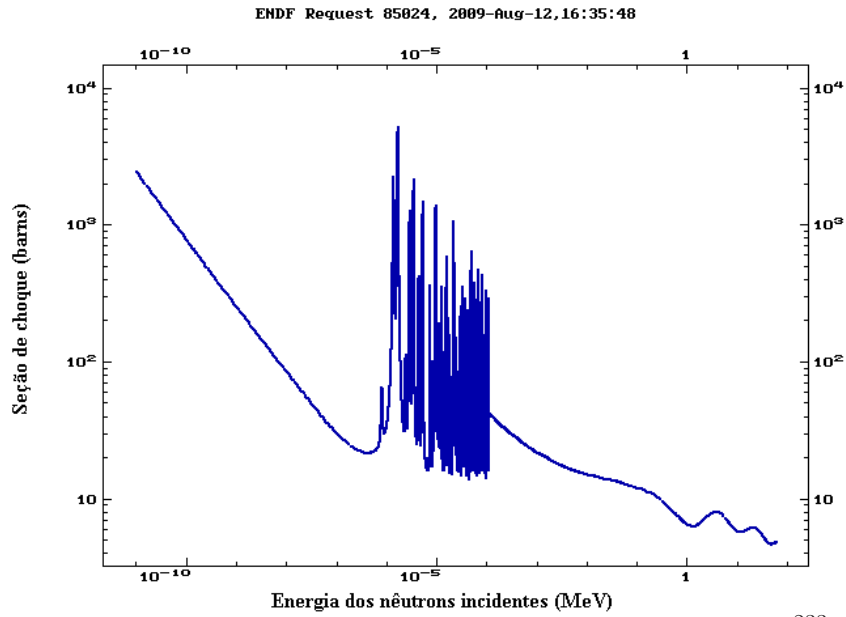


Figura 2.2: Seção de choque total de absorção para o  $^{233}\text{Pa}$ .

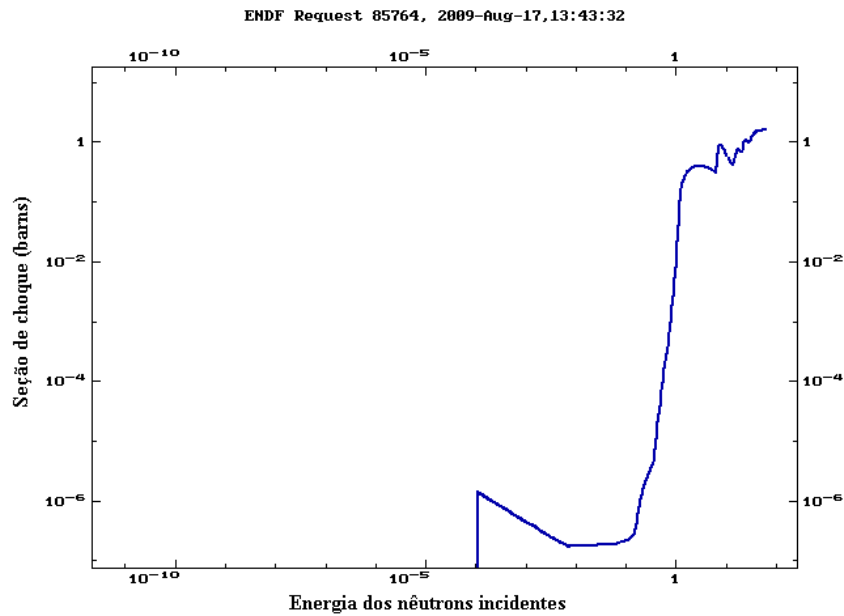


Figura 2.3: Seção de choque de fissão para o  $^{233}\text{Pa}$ .

a um estado de criticalidade. Isto ocorrerá após transcorrido um tempo próximo a meia vida do  $^{233}\text{Pa}$ , que é de cerca de um mês, sendo, então, necessárias ações corretivas através da inserção de reatividade negativa. Portanto, as vantagens no quesito segurança passiva de sistemas subcríticos serão reduzidas, quando é de grande interesse mantê-los constantemente em condições de subcriticalidade.

A seção de choque de absorção para nêutrons térmicos do protactínio é  $\sigma = 43$  barns e para nêutrons rápidos  $\sigma = 1.12$  barns. Ou seja, em reatores térmicos o efeito protactínio será mais pronunciado, reduzindo consideravelmente o fluxo de nêutrons. O que leva a conclusão de que o efeito protactínio favorece o uso de um espectro rápido. Esta é uma

das principais justificativas para a utilização do espectro rápido feita por (Rubbia *et al.*, 1995).

Outro efeito que deve ser levado em conta na escolha do espectro de nêutrons a ser utilizado é o efeito xenônio. Perdas de nêutrons devido ao  $^{135}\text{Xe}$  são amplamente esclarecidas (Duderstadt, 1942). O  $^{135}\text{Xe}$  é um dos mais importantes venenos em sistemas nucleares, devido a sua alta seção de choque de absorção para nêutrons térmicos (cerca de  $2.65 \times 10^6$  b), já para nêutrons rápidos os valores de sua seção de choque de absorção são bem baixos (Figura 2.4).

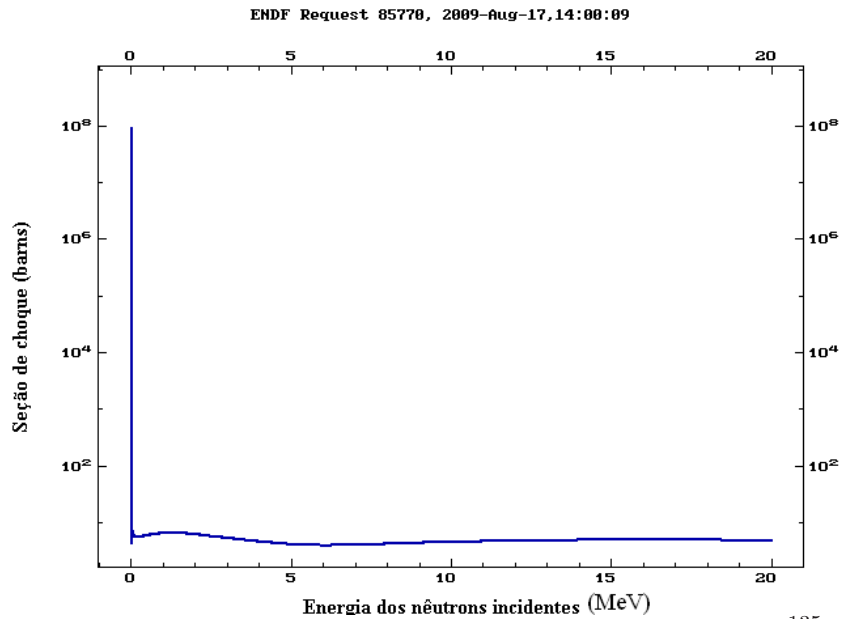
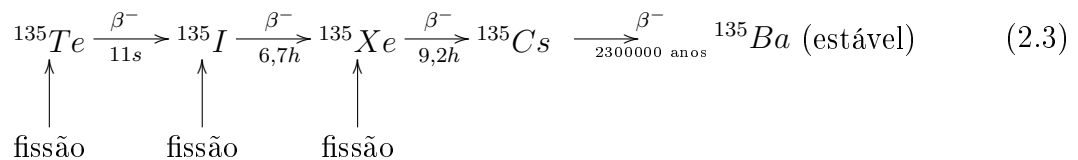


Figura 2.4: Seção de choque total de absorção para o  $^{135}\text{Xe}$ .

O isótopo  $^{135}\text{Xe}$  é formado pelo decaimento do  $^{135}\text{I}$  e também é formado diretamente pela fissão. O  $^{135}\text{I}$  é também formado pela fissão e pelo decaimento do  $^{135}\text{Te}$ . Estes processos e suas meias-vidas estão esquematizados a seguir:



Como o decaimento do  $^{135}\text{Te}$  para o  $^{135}\text{I}$  é muito rápido, pode-se supor que todo o  $^{135}\text{I}$  é produzido diretamente pela fissão. Uma vez que as meias vidas do  $^{135}\text{Xe}$  e do  $^{135}\text{I}$  são curtas e a seção de choque de absorção do xenônio é muito grande, as concentrações destes isótopos em todos os reatores, exceto para aqueles que estejam operando com um fluxo de nêutrons muito baixo, atingirão rapidamente a saturação ou valor de equilíbrio.

Esta situação de equilíbrio também ocorre em um ADS. De acordo com (Rubbia *et al.*,



1995), para nêutrons térmicos e em situação de equilíbrio, a fração de nêutrons capturados pelo  $^{135}\text{Xe}$  é de 0.021 para um fluxo de  $\phi = 2.7 \times 10^{13} n \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ .

Embora a criação do xenônio pelas fissões termine após o desligamento do sistema, este isótopo continua a ser produzido pelo decaimento do iodo presente e não é mais destruído pela absorção de nêutrons. Assim, a concentração do xenônio, após o desligamento do sistema, cresce e, depois começa a decrescer devido ao seu decaimento radioativo. O máximo da concentração ocorre depois de 10 a 12 horas do desligamento do sistema. O comportamento do crescimento da reatividade provocada pela presença do xenônio é de pouca importância para sistemas operados com valores baixos do fluxo, mas pode trazer alguns problemas para os sistemas que operam com alto valor do fluxo. Se em algum instante após o desligamento, a reatividade positiva disponível pela retirada das barras de controle for menor que a reatividade negativa devida ao xenônio, o sistema não poderá ser religado até que o xenônio tenha decaído. Este período é chamado de tempo morto.

Todos estes problemas gerados pelo  $^{135}\text{Xe}$  são praticamente inexistentes em ADS rápidos. Nestes sistemas os efeitos do xenônio e do protactínio no fluxo de nêutrons são bem menores do que em um ADS térmico. Isto porque as seções de choque de absorção destes dois venenos do combustível são bem maiores para nêutrons térmicos, o que torna favorável a utilização de nêutrons rápidos, pois a menor redução no fluxo de nêutrons implica uma maior capacidade de regeneração.

### 2.2.2 O combustível

Combustíveis sólidos, especialmente os óxidos, têm a vantagem de serem bem conhecidos e documentados dentro da literatura, tendo-se disponível uma variedade de opções para o reprocessamento destes combustíveis. Entretanto, possuem o problema do progressivo envenenamento por produtos de fissão. E como estes sistemas objetivam a regeneração, a economia de nêutrons é de extrema importância, já que uma baixa disponibilidade de nêutrons implica em uma menor taxa de regeneração. Como consequência, é necessário um maior número de reprocessamentos do combustível. Ou seja, para produzir uma dada quantidade de material fissil será necessário um maior número de recargas de combustível do que se o fluxo de nêutrons fosse maior. Aumentando os custos da produção.

Uma das principais propostas de utilização de combustíveis sólidos foi feita por (Rubbia *et al.*, 1995). Esta proposta consiste em um acelerador de prótons de intensidade de 1 GeV, acoplado diretamente a um núcleo de reator subcrítico refrigerado a chumbo e abastecido com uma mistura baseada em tório. O objetivo deste sistema é a produção

de energia e de  $^{233}\text{U}$  com baixa produção de actínídeos menores e de produtos de fissão de meia-vida longa. Além de propor a queima de transurânicos produzido em PWRs, diminuindo a meia-vida e radiotoxicidade destes rejeitos.

Por outro lado, os combustíveis líquidos como sais fundidos permitem uma contínua monitoração e retirada dos produtos de fissão, garantindo uma maior disponibilidade de nêutrons para a regeneração do combustível. Isto torna os combustíveis líquidos uma opção atraente. As desvantagens do uso de sal fundido são o alto índice de corrosão causada pelos sais e também o fato de o combustível circular fora do núcleo levando consigo os precursores de nêutrons atrasados, tornando radioativos os tubos de circulação o que aumenta a necessidade de manutenção para cumprir os requisitos de radioproteção.

Dentre as propostas de combustíveis líquidos possui relevância o sistema a sal fundido de (Bowman *et al.*, 1992) do grupo Los Alamos. Consiste em um ADS abastecido e refrigerado por sais fundidos, operando no ciclo Th/U.

Apesar de certos desafios tecnológicos, tais como o controle da corrosão, sais fundidos aparecem como uma promissora opção para uma nova geração de reatores nucleares, subcríticos ou não.

### 2.2.3 O alvo para spallation

O alvo de espalhamento é provavelmente o mais importante componente de um ADS, porque ele representa o acoplamento entre o acelerador de partículas e o núcleo subcrítico.

Prótons, ao serem desacelerados em um alvo, podem induzir reações nucleares. Reações nucleares de *spallation* podem ocorrer quando partículas com altas energias interagem com um núcleo pesado, estas partículas podem ser, por exemplo, prótons ou dêuterons. A energia das partículas incidentes para a geração dessas reações varia de cerca de 100 MeV a poucos GeV. Em uma primeira aproximação este processo de interação pode ser dividido em dois estágios (Mongelli *et al.*, 2005).

Em um primeiro estágio, conhecido como *intranuclear cascade*, as núcleons incidentes espalham de forma incoerente os núcleons do alvo, depositando uma fração de suas energias. Os núcleons incidentes, por sua alta energia, possuem pequeno comprimento de onda e por isso interagem diretamente com os núcleons dos núcleos alvo. Este rápido estágio de espalhamento núcleon-núcleon leva a ejeção de núcleons (incluindo uma grande quantidade de nêutrons) do alvo e a excitação do núcleo residual que se irá desexcitar em um segundo estágio.

A desexcitação do núcleo residual pode ocorrer de dois modos: evaporação ou fissão. Na evaporação a desexcitação do núcleo resulta na emissão pelo núcleo residual de núcleons ou partículas leves como o D, T, He,  $\alpha$ , Li e Be. O segundo modo de desexcitação é a fissão. Neste processo, o núcleo residual dá origem a dois outros núcleos de diferentes massas e são emitidos nêutrons. Geralmente, o destino do núcleo é a sua fragmentação. Estes processos de *spallation* produzem uma grande quantidade de nêutrons, além de outros núcleons e partículas carregadas.

A probabilidade de ocorrência de reações de *spallation* cresce com a energia da partícula incidente, e cresce também com o número de massa do núcleo alvo. E só ocorrem após um limiar de energia, porque para energias menores que este valor os prótons não conseguem vencer o potencial coulombiano e interagir com o núcleo para a liberação de nêutrons.

Devido a necessidade de alta produção de nêutrons somente alvos de grande número atômico são considerados. Chumbo (Rubbia *et al.*, 1995), ou muitas vezes, chumbo-bismuto (Hill *et al.*, 1999), têm sido propostos como alvos líquidos. As Figuras 2.5 e 2.6 a seguir mostram as variações das seções de choque para reações de *spallation*  $Z(p, xn)$  para os isótopos mais abundantes do chumbo e bismuto, respectivamente. A análise dessas figuras permite verificar a presença da energia limiar, e que os valores das seções de choque para estes isótopos são bem altos para energias de cerca 1000 MeV. Além disso, pode-se perceber que os valores de seção de choque destes dois isótopos são bem próximos entre si. Ou seja, a escolha do uso de um ou outro não é favorecida pelos valores de seção de choque. Então, o uso combinado de Pb e Bi não é privilegiado em relação ao uso de apenas de chumbo por questões de seção de choque.

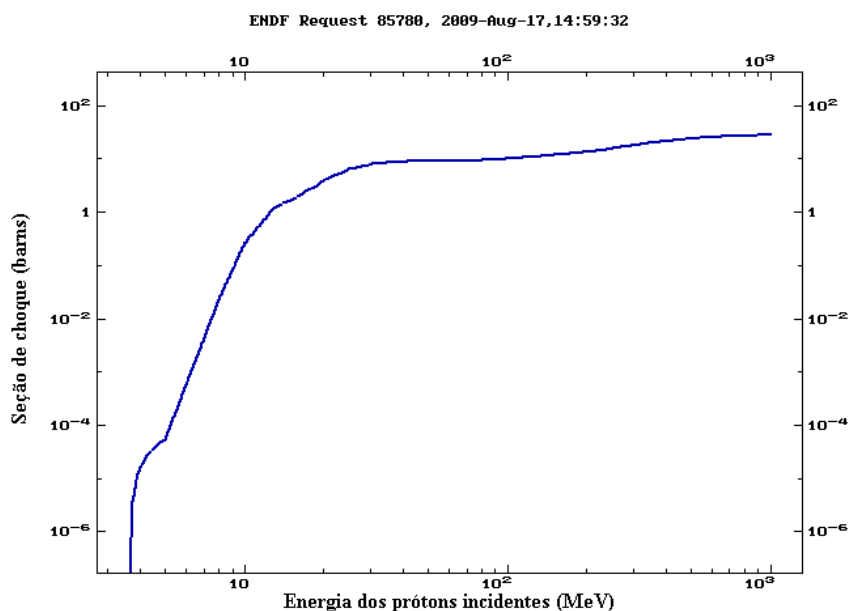


Figura 2.5: Seção de choque de *spallation* para o  $^{208}\text{Pb}$ .

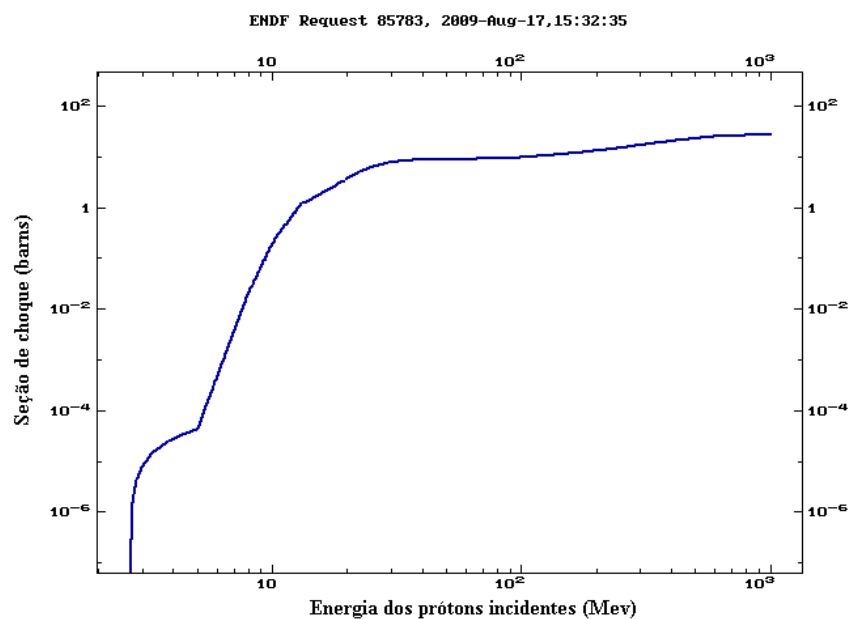


Figura 2.6: Seção de choque de *spallation* para o  $^{209}\text{Bi}$ .

O chumbo possui uma temperatura de fusão muito alta ( $327^\circ\text{C}$ ), o que acarreta altos custos para mantê-lo no estado líquido todo o tempo. Já o chumbo-bismuto tem uma temperatura de fusão de apenas  $123.5^\circ\text{C}$ . O uso de bismuto leva a uma ampla produção de  $^{210}\text{Po}$  que é altamente radioativo e volátil, entretanto, o uso de apenas chumbo também leva a produção deste isótopo em menor quantidade. Como a temperatura usada para o chumbo-bismuto é bem menor que a usada para o chumbo, a taxa de evaporação de  $^{210}\text{Po}$  será similar. Isso faz com que prevaleça a vantagem da menor temperatura de fusão do uso combinado dos dois elementos.

Entretanto, o bismuto é um material de custo mais elevado que o chumbo. Talvez

por isso, e pela facilidade da utilização de um único elemento, um grande número de trabalhos de relevância fazem o uso apenas do chumbo (Rubbia *et al.*, 1995; David *et al.*, 2000). Também porque de acordo com (Rossi and Maiorino, 2007) a maior produção de nêutrons por partícula incidente no alvo de chumbo-bismuto não se faz tão significativa. Para um feixe de prótons de 75 MeV incidindo no chumbo a produção média de nêutrons por próton é  $1.84 \times 10^{-01}$ ; para o alvo de Pb-Bi esse valor é  $1.90 \times 10^{-01}$ . Quando o feixe é composto por dêuterons, a produção média é de  $1.46 \times 10^{-01}$  e  $7.96 \times 10^{-02}$  para o chumbo e para o Pb-Bi, respectivamente.

### 2.2.4 Refrigerante

Alguns recentes projetos de ADS têm sido inspirados nos reatores refrigerados a gás de alta temperatura (Carlucci, 1999). Estes reatores apresentam boas características:

- A alta temperatura permite alta eficiência termodinâmica.
- Para reatores não muito grandes, este tipo de refrigerante evita a fusão dos elementos estruturais.
- Altas taxas de queima do combustível podem ser obtidas.

Entretanto existem algumas limitações, tais como, baixa densidade de potência devido a pequena capacidade térmica do gás e também uma significativa probabilidade de perda acidental do refrigerante.

Também existem propostas de sistemas que utilizam o chumbo como agente refrigerante e também como alvo para *spallation* (Rubbia *et al.*, 1995). Este tipo de projeto oferece muitas vantagens como, por exemplo, a aparente simplicidade e também sua segurança passiva. O chumbo também possui pequena seção de choque de absorção de nêutrons (ver Figura 2.7), uma das propriedades exigidas para desempenhar bem a função de refrigerante. Na região rápida do espectro o valor da seção de choque de absorção é ainda menor. Finalmente, é um excelente material para blindagem, fazendo com que grande parte da radiação produzida pelo núcleo do ADS seja facilmente e rapidamente absorvida, não havendo necessidade de adicionar mais refletores internos para proteger elementos estruturais importantes, como no caso do uso de sódio líquido. Com o uso de chumbo a dose de radiação transmitida para o exterior do núcleo do sistema é muito baixa.

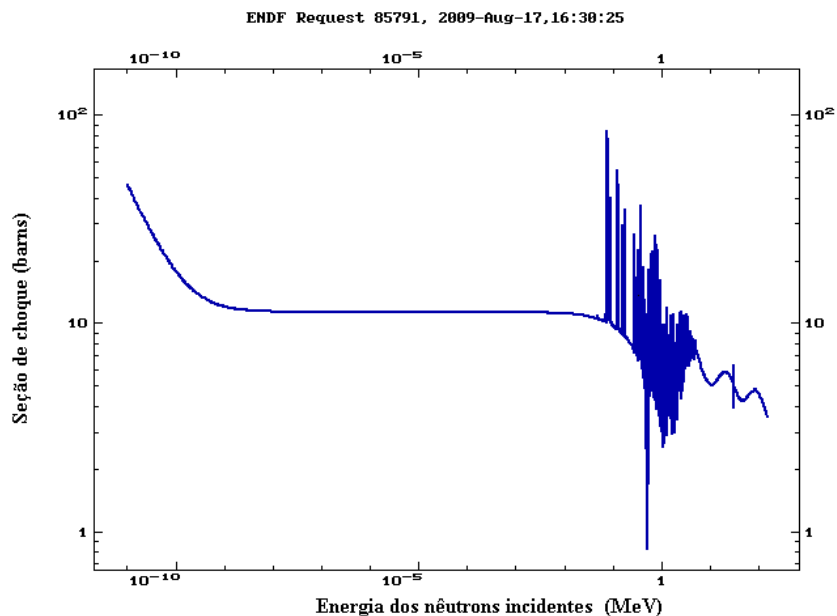


Figura 2.7: Seção de choque total de absorção para o  $^{208}\text{Pb}$ .

O chumbo é um material refrigerante propício a ser usado em sistemas rápidos. Isto porque ele não modera os nêutrons, já que a moderação de nêutrons é feita através de colisões elásticas com os núcleos, e o  $^{208}\text{Pb}$  (o mais abundante dos isótopos do chumbo) possui baixa seção de choque para colisões elásticas, conforme mostrado na Figura 2.8.

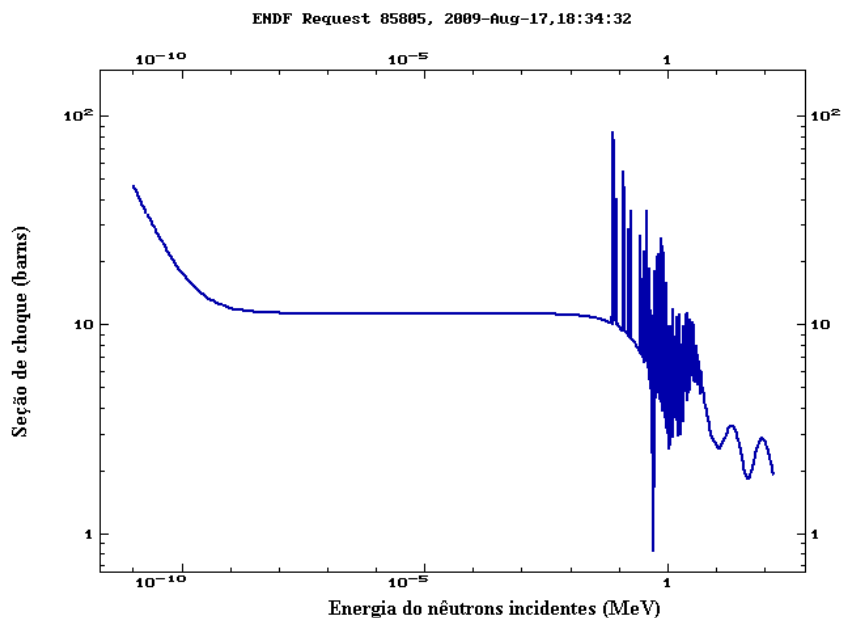


Figura 2.8: Seção de choque de colisão elástica para o  $^{208}\text{Pb}$ .

Todavia, o uso do refrigerante chumbo apresenta algumas difíceis questões. Por exemplo, como citado na seção anterior o chumbo necessita de uma temperatura muito alta para ser mantido no estado líquido. Além disso, existem os efeitos de corrosão causados pelo chumbo fundido, pois muitos materiais apresentam alta solubilidade neste material,

a qual cresce com a temperatura. Como consequência disso, após um prolongado tempo de imersão alguns metais e ligas apresentam uma significativa deterioração.

Outra proposta relevante são os sistemas refrigerados a sal fundido (Bowman *et al.*, 1992). Sais fundidos dão a possibilidade de um contínuo gerenciamento do combustível gerando um bom controle da reatividade, e gerando também uma economia de nêutrons através da retirada dos venenos do combustível. Entretanto, a separação química do protactínio e dos produtos de fissão e a reinserção de combustível são processos bastante complexos. Além disso, estes sistemas apresentam grande índice de corrosão e, como são usados simultaneamente como combustível e refrigerante, propiciam a contaminação do circuito secundário.

Devido a alta temperatura de fusão do chumbo tem sido proposto o uso da mistura eutética de chumbo-bismuto como refrigerante (Hill *et al.*, 1999). Este refrigerante permite que o sistema opere no mesmo nível de temperatura do refrigerante sódio, que é muito menor do que aquela necessária para o uso exclusivo de chumbo. E também permite o uso de nêutrons rápidos, pois seus constituintes não são moderadores, o que não é possível com a utilização do sódio, já que tanto o Pb (Figura 2.8), quanto o Bi (Figura 2.9) possuem baixa seção de choque de colisão elástica. Enquanto que o sódio, por seu relativamente baixo número atômico, modera consideravelmente os nêutrons. As propriedades térmicas

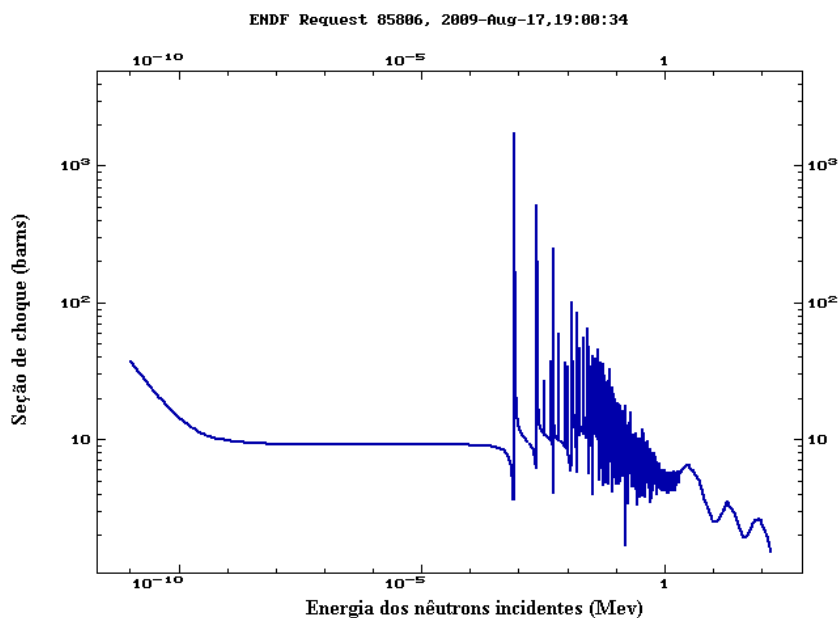


Figura 2.9: Seção de choque de colisão elástica para o  $^{209}\text{Bi}$ .

e mecânicas do PbBi permitem operar em uma ampla faixa de temperatura ( funde a  $123.5^{\circ}\text{C}$  e evapora a  $1670^{\circ}\text{C}$  ). Além disso, como o PbBi é quimicamente inerte ocorre uma redução no número de acidentes. Algumas outras vantagens do PbBi são:

- Baixa pressão de vapor em condições de funcionamento.
- Elevado número atômico permitindo a utilização do espectro rápido.
- Baixa seção de choque de captura, portanto, boa economia de nêutrons ( mais nêutrons poderão ser usados para transmutação do cobertor subcrítico ).
- Bom refletor de nêutrons e boa blindagem para a radiação gama.
- Mantém a maioria dos actínídeos e produtos de fissão no caso de liberação para o refrigerante.
- Pequena modificação de volume com a solidificação.

Naturalmente, como acontece com qualquer opção, existem algumas características indesejáveis no PbBi. As três principais preocupações são sua corrosividade, a sua radioatividade após a irradiação e sua toxicidade. A mistura PbBi pode dissolver aços contidos nos materiais estruturais e propiciando a contaminação desta mistura. Esta questão da corrosividade tem sido tratada na Rússia, através do desenvolvimento de materiais estruturais adequados e o uso de oxigênio para permitir a utilização de um revestimento de óxido para a proteção dos materiais. O controle de oxigênio é problemático, uma vez que muito altas e muito baixas concentrações de oxigênio podem causar problemas. A experiência russa provém da utilização de PbBi em reatores de submarinos. O bismuto ao capturar um nêutron cria o  $^{210}\text{Po}$  com uma meia-vida de 138 dias. Esta meia-vida suficientemente curta faz com que o  $^{210}\text{Po}$  não seja uma preocupação para a deposição dos resíduos, mas sim uma preocupação operacional. Felizmente, grande parte do  $^{210}\text{Po}$  permanece no PbBi refrigerante. Além disso, Chumbo e Bismuto são ambos metais pesados. Quando irradiados, eles representam um "misto" de resíduos que complica ainda mais sua disposição final.

### 2.2.5 O acelerador de partículas

O propósito do acelerador é a produção eficiente de nêutrons secundários, através de colisões entre o feixe produzido pelo acelerador e os núcleos do material do alvo. A eficiência dessa produção está intimamente ligada à natureza e energia das partículas do feixe. Quando o feixe incidente é composto por dêuterons, verifica-se uma produção de nêutrons 10% maior do que quando são usados prótons. Entretanto, por uma questão de facilidade, são geralmente usado prótons (Carminati *et al.*, 1993). A energia transportada pelo feixe de prótons pode variar muito, podendo atingir até centenas de MeV, dando uma



produção de nêutrons proporcional a energia e intensidade do feixe. Ou seja, acelerador deve ser também energeticamente eficiente, atingindo altas intensidades, de forma que o número de prótons transportados pelo feixe seja o maior possível.

Para o acelerador de partículas podem ser considerados tanto os cíclotrons quanto os aceleradores lineares. Cíclotrons são mais compactos, requerem menos espaço e são mais econômicos. Entretanto, existem dificuldades na geração de feixes com intensidades superiores a 10 mA através de cíclotrons. E como muitos projetos de ADS exigem feixes com intensidade acima deste limite, aceleradores lineares são a opção mais comum.

## 2.3 O código MCNPX

### 2.3.1 O método de Monte Carlo e o código MCNPX

O método de Monte Carlo fornece soluções aproximadas para uma variedade de problemas de física e matemática. Em um problema de transporte de partículas, trajetórias individuais de partículas são simuladas e o resultado de desse histórico individual (ou seja, o comportamento das partículas) é registrado e é utilizado para determinar o comportamento médio das partículas transportadas.

No código MCNP (Monte Carlo N-Particle transport code), são escolhidas aleatoriamente partículas que têm sua história de vida determinada a partir da distribuição de probabilidades dos eventos físicos possíveis (fissão, espalhamento, captura, etc), utilizando os dados das bibliotecas de seções de choque. Cada partícula escolhida é seguida desde a sua criação até o fim de sua vida. O código gera o percurso de vida de cada partícula escolhida. Se uma partícula interage, novos percursos são gerados para a partícula com sua nova direção (e energia), e para as novas partículas criadas na interação (ver Figura 2.10). Para determinar se e quando um determinado evento ocorre, dados (por exemplo, seções de choque e densidade) e modelos físicos são utilizados.

O MCNPX (MCNP eXtended) é um código escrito na linguagem Fortran90 (F90), e é um código que transporta quase todas as partículas em quase todas as energias. Ele pode ser usado para o transporte de radiação e para modelagem dos fenômenos de interação da radiação com a matéria. Uma das principais características deste código é a capacidade de queima (*depletion/burnup*). Esta capacidade é baseada no CINDER90, que foi escrito por William B. Wilson, e no MonteBurns, que foi escrito por Holly R. Trellue.

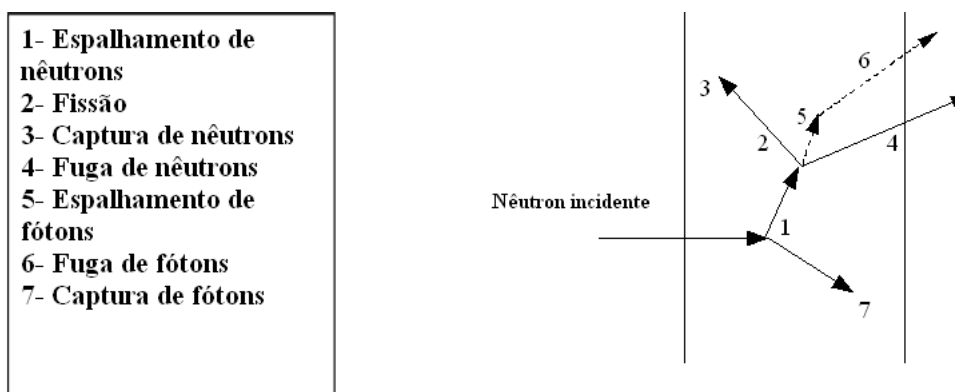


Figura 2.10: Representação dos possíveis eventos ocorridos com um nêutron incidente aleatoriamente escolhido.

### 2.3.2 A análise de nêutrons e prótons no código MCNPX

Para cada elemento ou isótopo, são exigidas bibliotecas de seção de choque para todas as interações possíveis para a energia em questão. Dados de seção de choque para energias térmicas são necessários se os nêutrons são transportados em energias suficientemente baixas onde ligações químicas e moleculares são importantes. Dados de dosimetria são opcionais e podem ser utilizados quando se pretende determinar as taxas de reação. Quando o MCNPX é executado, as histórias de vida das partículas escolhidas arbitrariamente são computadas evento por evento. Se uma partícula colide com um núcleo uma sequência padrão é seguida pelo código. Para o caso de nêutrons a sequência é a seguinte:

1. O MCNPX indentifica o nuclídeo com o qual ocorre a colisão por consideração da seção de choque total  $\sigma_T$ .
2. Partículas criadas nas colisões são geradas para subsequente transporte.
3. A captura de nêutrons é prevista levando em consideração a seção de choque de absorção  $\sigma_a$ .
4. Se o tratamento térmico não é usado, são levados em conta os espalhamentos elásticos ou colisões inelásticas (incluindo fissão), e as novas energias e direções são determinadas. A seleção de eventos de espalhamento elástico baseia-se na probabilidade:

$$\frac{\sigma_{el}}{\sigma_{el} + \sigma_{in}} = \frac{\sigma_{el}}{\sigma_T - \sigma_a} \quad (2.4)$$

Onde  $\sigma_{el}$  é a seção de choque para espalhamento elástico,  $\sigma_{in}$  é a seção de choque para espalhamento inelástico e  $\sigma_T$  é a seção de choque total ( $\sigma_{el} + \sigma_{in} + \sigma_a$ ).

5. Se a energia do nêutron é inferior a um limiar pré-definido (nêutrons térmicos) e seções de choque para a faixa térmica são disponíveis, a colisão é modelada por tratamento térmico ao invés do processo descrito na etapa 4.

O código MCNPX pode ser usado para avaliar a eficiência na queima do combustível, pois esse código permite prever a variação temporal da composição do combustível durante o período de operação, possibilitando acompanhar todo o processo de decaimento dos núcleos de interesse, por exemplo, todo o processo de decaimento do  $^{232}\text{Th}$  em  $^{233}\text{U}$ ; desde o momento em que o  $^{232}\text{Th}$  captura um nêutron pode ser acompanhado pelo MCNPX. Sendo assim, é possível quantificar a taxa de regeneração do sistema, o que é uma medida direta da eficiência de regeneração.

De maneira semelhante ao que ocorre com nêutrons, prótons também podem ser transportados pelo MCNPX, sendo necessárias bibliotecas de seção de choque para reações entre prótons e os núcleos em questão. Por exemplo, para a simulação de reações de *spallation* ( $Z(p, xn)$ ) são necessárias bibliotecas de seção de choque para este tipo de reação produtora de nêutrons entre prótons com a energia de interesse e um determinado núclideo Z. Dessa forma, o código consegue seguir toda a trajetória dos prótons escolhidos arbitrariamente, além de acompanhar as partículas geradas nas colisões destes prótons com os núcleos em questão.

### 3 *Definição do sistema a ser modelado*

Conforme descrito anteriormente são muitas as opções para cada componente de um ADS. Tendo em vista as vantagens e desvantagens de cada escolha e também levando-se em consideração sistemas de relevância dentro da literatura foram escolhidos cada componente do sistema modelado.

Neste trabalho inicial tenta-se modelar de forma simplificada um ADS, sem se preocupar com a produção dos prótons. A modelagem é feita a partir da incidência dos prótons no alvo para *spallation*, supondo que estes prótons provém de um acelerador de partículas (um acelerador linear, por exemplo). A utilização de prótons é guiada pelo fato dessa ser a escolha mais documentada dentro da literatura.

A geometria mais comumente adotada para a modelagem deste tipo de sistema é a geometria cilíndrica. A geometria adotada neste trabalho também é cilíndrica e é composta por três cilindros coaxiais e concêntricos de mesma altura. O cilindro mais interno forma o alvo para *spallation*, o cilindro intermediário é o núcleo do sistema (combustível + refrigerante) e o cilindro externo é composto de material refletor.

A Figura 3.1, a seguir, mostra uma visão esquemática da geometria do ADS simulado. Nêutrons são produzidos pela incidência dos prótons produzidos pela fonte no alvo cilíndrico de chumbo natural. A utilização do chumbo é guiada por suas boas propriedades citadas na Seção 2.2.3. Este cilindro mais interno possui 15 cm de raio e 50 cm de altura. Essas dimensões são resultados de uma otimização que permite maior produção de nêutrons e menor fuga através da seção circular do alvo (David *et al.*, 2000).

O cilindro intermediário representa o núcleo do sistema. Esta região cilíndrica possui altura de 50 cm e raio (dado pela diferença entre os raios dos dois cilindros) igual a 145 cm. No núcleo o refrigerante e o combustível formam uma mistura homogênea.

Para o refrigerante escolhemos o chumbo por suas boas propriedades para a refrige-

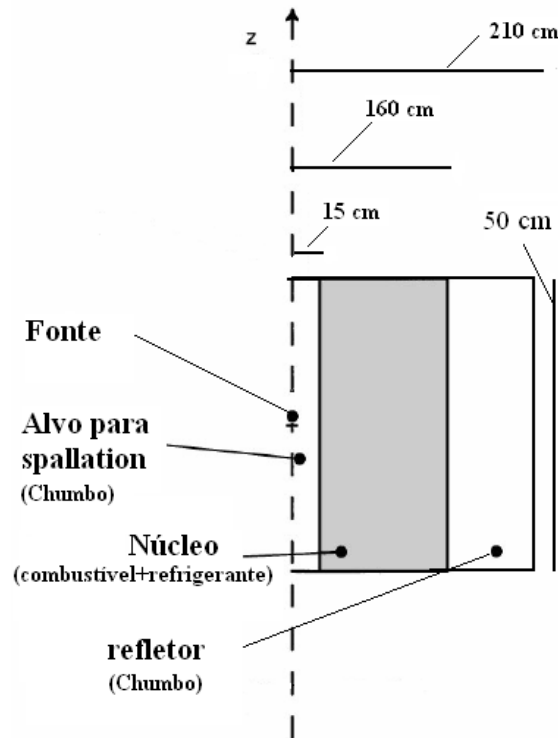


Figura 3.1: Representação esquemática da geometria do sistema simulado.

ração citadas na Seção 2.2.4. Para o combustível é usada uma mistura sólida de óxidos de  $^{232}\text{Th}$  e  $^{233}\text{U}$ .

A composição do núcleo (combustível + refrigerante) simulado neste trabalho, para critérios de comparação, é a mesma usada por (David *et al.*, 2000). Esta escolha é justificada principalmente pelo fato de que a proposta de David *et al.* é embasada no importante conceito estabelecido por (Rubbia *et al.*, 1995, Carminati *et al.*, 1993). O refrigerante usado é o chumbo com fração volumétrica de 50% e o combustível inicial é composto por uma mistura de  $^{232}\text{ThO}_2 + 9.5\% ^{233}\text{UO}_2$ .

Conforme foi descrito na Seção 2.2.1 o uso de nêutrons rápidos favorece a regeneração do combustível, pois diminui o efeito negativo sobre a reatividade causado pela presença do protactínio e do xenônio. Visto que a seção de choque de captura de nêutrons para estes isótopos é menor na faixa rápida do espectro de energia dos nêutrons, escolhemos utilizar o espectro rápido, não adicionando nenhum material moderador ao núcleo do sistema.

O cilindro externo é composto por material refletor. Para a função de refletor também é usado o chumbo, já que é um bom material para a blindagem. A espessura deste refletor foi mantida fixa em 50 cm. Os principais parâmetros de operação de nosso sistema podem ser vistos na Tabela 3.1.

Tabela 3.1: *Principais parâmetros de sistema simulado.*

ADS operando no ciclo $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$	
Volume do núcleo	4.0 $m^3$
Combustível (inicial)	$^{232}\text{ThO}_2 + 9.5\% ^{233}\text{UO}_2$
Massa de combustível	15.6 t
Potência térmica	515 $\text{MW}_t$

## 4 *Modelagem*

Para simular um dado sistema no código MCNPX, é preciso criar uma entrada (*input*) que modele o sistema em uma linguagem que possa ser lida pelo código. Essa entrada contém todas as informações que descrevem o sistema em questão, informando sobre sua geometria, os materiais constituintes e as características operacionais do sistema. A entrada é organizada da seguinte forma:

- Título do problema
- Cartões de células
- Linha em branco
- Cartões de superfícies
- Linha em branco
- Cartões de dados

A configuração da geometria é dividida em células que são regiões específicas dentro da geometria. Os cartões de células contém informações sobre o material, a densidade e a geometria das células. Eles podem também conter informações sobre a importância das partículas dentro daquela célula. Os cartões de superfícies definem todas as superfícies do problema. Estas superfícies são utilizadas para definir as células, fontes, etc. Os cartões de dados contém informações sobre a fonte (como a posição, a energia, a direção), sobre o número de partículas a ser simulado e o que deve ser impresso no arquivo de saída do código.

Como o MCNPX apenas apresenta os dados no arquivo de saída que foram previamente solicitados no arquivo de entrada, o usuário precisa especificar, com os chamados contadores (*tallies*), os aspectos de interesse. O MCNPX é capaz de simular o fluxo das partículas, a corrente de partículas e a energia depositada sobre superfícies ou células da geometria.

A seguir serão descritas as principais tentativas de modelagem feitas neste trabalho. Primeiramente serão descritas as duas opções de fonte simuladas, para então mostrar como foi feita a modelagem geral do sistema.

## 4.1 Modelagem de fontes de *spallation*

O código MCNPX permite a definição de vários tipos de fonte. Dentre elas, a SDEF (*source specification*), que permite a modelagem de fontes externas. Dentro do cartão de uma SDEF é possível definir o tipo de partícula emitida pela fonte (nêutrons, prótons e etc), a energia com a qual as partículas são emitidas, a posição da fonte emissora, dentre outras. A forma menos trabalhosa de definição de uma SDEF é a utilização da definição padrão do código. Entretanto, para fins de utilização em ADS são geralmente usadas fontes emissoras de feixes de partículas. A utilização de fontes emissoras de feixes parabólicos, com prótons de energia de 1 GeV é bem documentada dentro da literatura (David *et al.*, 2000). A descrição da definição destas duas fontes está apresentada a seguir.

### 4.1.1 Fonte padrão do código

A utilização do cartão SDEF, sem a definição de uma distribuição geométrica para o feixe emitido, gera uma fonte pontual para o sistema simulado. Esta é a forma de definição de fonte que primeiro utilizamos, já que é a forma menos trabalhosa de se definir uma fonte no código MCNPX.

Definimos assim uma fonte pontual de prótons situada no centro do alvo para *spallation* (um cilindro com raio igual a 15 cm e altura igual a 50 cm), conforme esquematizado na Figura 3.1. A energia das partículas emitidas é de 1 GeV. Conforme já citado este valor tão alto de energia é uma exigência para as reações de *spallation*, uma vez que a produção de nêutrons cresce com o aumento da energia das partículas incidentes. A utilização de feixes com energia de 1 GeV é bastante documentada (David *et al.*, 2000; Rubbia *et al.*, 1995).

Neste estudo, as simulações são divididas em duas etapas. Na primeira, consideramos apenas a fonte, para quantificarmos sua eficiência na produção de nêutrons. E então, numa segunda fase, adicionamos o combustível e refrigerante às simulações.



### 4.1.2 Fonte emissora de um feixe parabólico

O alvo para as reações de *spallation* é novamente um cilindro de chumbo de raio e altura iguais a 15 e 50 cm, respectivamente. Entretanto, esta definição de fonte produz um feixe de prótons de energia igual a 1 GeV, que incide no cilindro de chumbo. O feixe é emitido no mesmo eixo no qual está orientado o cilindro, e possui um alcance de cerca de 7 cm no cilindro e seu perfil espacial é parabólico, conforme ilustrado na Figura 4.1 a seguir.

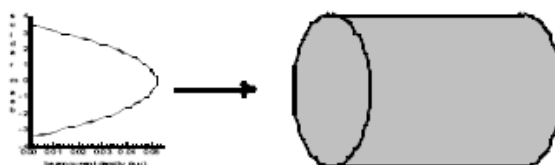


Figura 4.1: Perfil do feixe incidente.

O código MCNPX é uma combinação do MCNP e o LAHET (*The Los Alamos High Energy Transport Code*). O LAHET pode ser usado para o transporte de uma infinidade de partículas com altas energias. O MCNPX oferece opções de transporte baseadas em três modelos: BERTINI e ISABEL (ambos são opções contidas no LAHET) e o pacote CEM. Neste trabalho é usado o modelo BERTINI para o transporte de partículas, por ser um caso demonstrado no manual do código MCNPX (Pelowitz, 2008).

Em um ADS, nêutrons são produzidos como resultado de reações nucleares em cascatas iniciadas por prótons acelerados interagindo com um alvo. Estas reações são chamadas de reações de *spallation*. A análise deste tipo de reação é feita através de três fases: na primeira fase, partículas incidentes interagem com o núcleo através de sucessivas colisões nucleon-nucleon. Nesta primeira fase partículas de alta energia são emitidas e o modelo de *Intranuclear cascade* (INC) é utilizado. Depois da fase INC o núcleo é deixado em estado excitado. Este é o ponto de partida para a segunda fase de *pre-equilibrium*. Na terceira fase, a fase de *evaporation*, o núcleo é desexcitado.

Conforme dito anteriormente, as simulações deste estudo são divididas em duas fases. Na primeira fase, somente o alvo para *spallation* e o feixe de prótons são considerados. E somente na segunda fase o sistema completo (com o material combustível e o refrigerante) é analisado. Para essa primeira fase é feita uma entrada que permite o cálculo da produção de nêutrons no alvo de *spallation* (Pelowitz, 2008).

No MCNPX, a produção líquida de nêutrons é implicitamente registrada, e pode ser fornecida por um problema padrão para contagem de nêutrons produzidos. Este problema mostra a produção de nêutrons resultante das interações nucleares ocorridas (a produção de nêutrons pode ser contada para todas as partículas transportadas usando INC / *Preequilibrium* / *Evaporation*) e as resultantes de reações em cadeia (n, xn) (nêutrons criados em reações nucleares inelástica, avaliadas utilizando dados nucleares).

A entrada para esta primeira fase está esquematizada a seguir:

Entrada para o código MCNPX (Alvo para *spallation*)

```

c
c Definição das células
c
1 1 -11.4 1 -2 -3 $ Alvo para spallation
c
2 0 (-1:2:3) -4 $ esfera exterior ao cilindro
c
3 0 4 $ restante do universo
c
c Definição das superfícies
c
1 pz 0
2 pz 50
3 cz 15
4 so 90
c
c Definição da fonte de spallation ( feixe de prótons de 1-GeV e perfil parabólico)
c
mode n h /
imp:n,h,/ 1 1r 0
phys:n 1000. j j
phys:h 1000. j j
lca j j j
nps 20000
sdef sur 1 erg 1000. dir 1 vec 0. 0. 1. rad d1 pos 0. 0. 0. par 9
sil a 0.0 0.1 0.2 0.3 0.4 0.5 0.6 0.7 0.8 0.9 1.0 1.1 1.2 1.3

```

```

1.4 1.5 1.6 1.7 1.8 1.9 2.0 2.1 2.2 2.3 2.4 2.5 2.6 2.7
2.8 2.9 3.0 3.1 3.2 3.3 3.4 3.5
sp1      0.00000 0.09992 0.19935 0.29780 0.39478 0.48980 0.58237
0.67200 0.75820 0.84049 0.91837 0.99135 1.05894 1.12065
1.17600 1.22449 1.26563 1.29894 1.32392 1.34008 1.34694
1.34400 1.33078 1.30678 1.27151 1.22449 1.16522 1.09322
1.00800 0.90906 0.79592 0.66808 0.52506 0.36637 0.19151
0.00000
c
c Definição do material do alvo (chumbo natural)
c
m1 82206 0.255 82207 0.221 82208 0.524 nlib=.66c hlib=.24h

```

## 4.2 Modelagem do sistema

Dividimos o sistema descrito no Capítulo 3 em quatro células, cada uma delas descrevendo uma região do sistema. Na definição de cada célula são usadas suas características geométricas (dizendo quais são as geometrias limitantes dessas células), o material constituinte da célula em questão e a densidade deste material.

A primeira célula definida descreve o cilindro interno, que forma o alvo para *spallation*, cujo material constituinte é o chumbo natural de densidade igual a  $11.4 \text{ g/cm}^3$ . É nesta célula que está posicionada a fonte externa de prótons (quando usamos a fonte pontual), ou onde incide o feixe produzido pela fonte (fonte emissora de feixe parabólico). Ou seja, na definição da SDEF a fonte foi posicionada nesta célula. Na definição do material desta célula (chumbo natural) é usada sua composição isotópica natural, que é igual a 52,4% de  $^{208}\text{Pb}$ , 24,1% de  $^{206}\text{Pb}$  e 22,1% de  $^{207}\text{Pb}$ . O isótopo  $^{204}\text{Pb}$  por sua pequena abundância é desprezado nos cálculos.

A segunda célula descreve o núcleo do sistema. Este núcleo é composto por dois materiais: o chumbo ( para a refrigeração do sistema) e o material combustível ( $^{232}\text{ThO}_2 + 9.5\% \text{ }^{233}\text{UO}_2$ ). Conforme dito anteriormente ( Capítulo3), para facilitar a comparação de resultados, usamos o mesmo carregamento inicial de (David *et. al.*, 2000). Então, por consulta a esta referência, sabemos que a quantidade inicial de combustível é 15.6 t. A partir disso e do conhecimento da fração de volume do combustível (50%) e do volume

do núcleo ( $4.0 \text{ m}^3$ ) calcula-se a quantidade de massa de refrigerante. O cálculo é muito simples, pois, sabendo-se o volume ocupado pelo refrigerante ( $2.0 \text{ m}^3$ ) e a densidade do chumbo ( $11.4 \text{ g/cm}^3$ ), uma proporção simples fornece o valor da massa do refrigerante. Logo em seguida, o cálculo da razão entre a massa total do núcleo (combustível + refrigerante) e o volume do núcleo fornece a densidade desta célula. Para a definição do material da célula são calculadas as frações de massa (densidade (D)) de cada isótopo do combustível e do refrigerante, usando as frações de peso e o peso atômico de cada isótopo, a densidade da mistura e o número de Avogadro, de acordo com a seguinte equação:

$$D_{isotopo} = \frac{D_{material} \times \text{percentual de peso}_{isotopo} \times N_{Avogadro}}{Z_{isotopo}} \quad (4.1)$$

A terceira célula representa o material refletor, que é novamente o chumbo. A densidade e a composição isotópica dos componentes dessa célula são os mesmos da célula 1. A quarta e última célula representa o universo ao redor do sistema simulado, e não possui material em sua composição.

Feita a descrição das células, dos materiais e das superfícies é feita a definição da fonte de criticalidade (kcode), no qual estabelecemos o valor inicial para o  $k_{eff}$ , o número de histórias (partículas) simuladas por ciclo, o número de ciclos iniciais omitidos antes do começo dos cálculos e o número total de ciclos simulados. Para o  $k_{eff}$  nesta modelagem é usado um valor próximo a 1, são simuladas 200 partículas por ciclo e são simulados 110 ciclos, dos quais os 10 primeiros ciclos são omitidos nos cálculos.

Por último, é feito o cartão de queima, no qual se define o material a ser queimado, por quanto tempo e em qual nível de potência. Nesta modelagem, escolhemos que o material a ser queimado é o material contido na célula 2 (núcleo do sistema), pois é interessante acompanhar a variação isotópica do combustível durante o período de operação. Alguns elementos e isótopos (do combustível e refrigerante) são excluídos da queima, pela falta de bibliotecas de seção de choque. Entretanto, nenhum deles faz parte da cadeia de decaimento de interesse ( $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ ), não comprometendo a análise da variação de massa dos componentes deste decaimento (Figura 2.1).

A queima é feita para um período de 10 anos, tempo durante o qual o sistema opera com uma potência térmica de  $515 \text{ MW}_t$ . Também neste cartão definimos que os resultados

da queima devem ser dados a cada 10 dias durante os primeiros 150 dias e a cada 50 dias no período restante, para permitir uma análise mais detalhada do comportamento do combustível durante o período de operação.

É de interesse saber qual a energia dos nêutrons em nosso sistema, para entender através das seções de choque o comportamento do combustível, então são acrescentadas à modelagem *tallies* para medidas do fluxo de nêutrons para cada energia na célula que contém o combustível.

No capítulo seguinte serão analisados os resultados das simulações feitas a partir desta modelagem descrita.

## 5 *Resultados e discussão*

A seguir, são apresentados os dados obtidos das simulações deste trabalho. Na primeira seção são mostrados os resultados para a modelagem utilizando a fonte descrita na Seção 4.1.2, a na segunda seção são apresentados os resultados para a modelagem do nosso sistema usando a fonte mostrada na Seção 4.1.2 A composição do sistema é a mesma nas duas modelagens, a única diferença entre as duas é a fonte utilizada.

### 5.1 **Resultados para a modelagem com a fonte padrão do código**

Conforme dito na Seção 4.1.1, primeiramente consideramos apenas a fonte para uma análise de sua produção de nêutrons. Para esta fonte o código MCNPX gerou os resultados descritos na Tabela 5.1.

A partir dos dados desta tabela a produção de nêutrons pode ser calculada da seguinte forma (Pelowitz, 2008):

$$escapes + captures = 0,54531 + 0,22346 = 0,77 \text{ n/p}$$

O que se vê é que o valor obtido para a produção de nêutrons por essa fonte é muito baixo. Indicando a necessidade da definição de uma fonte não pontual.

Tabela 5.1: Resultados do código para a fonte pontual.

neutron creation	tracks	weight *	energy	neutron loss	tracks	weight	energy
source	99924	1.0000E+00	2.0780E+00	escape	79706	5.4531E-01	4.0817E-01
nucl. interaction	0	0.	0.	energy cutoff	0	0.	0.
particle decay	0	0.	0.	time cutoff	0	0.	0.
weight window	0	0.	0.	weight window	0	0.	0.
cell importance	0	0.	0.	cell importance	0	0.	0.
weight cutoff	0	4.8362E-02	4.4389E-03	weight cutoff	20622	4.8172E-02	4.3411E-03
energy importance	0	0.	0.	energy importance	0	0.	0.
dxtran	0	0.	0.	dxtran	0	0.	0.
forced collisions	0	0.	0.	forced collisions	0	0.	0.
exp. transform	0	0.	0.	exp. transform	0	0.	0.
upscattering	0	0.	0.	downscattering	0	0.	1.3799E+00
photoneuclear	0	0.	0.	capture	0	2.2346E-01	8.3328E-02
(n,xn)	805	7.2286E-03	5.3895E-03	loss to (n,xn)	401	3.6008E-03	3.2219E-02
prompt fission	0	0.	0.	loss to fission	0	2.3505E-01	1.7985E-01
delayed fission	0	0.	0.	nucl. interaction	0	0.	0.
tabular boundary	0	0.	0.	particle decay	0	0.	0.
tabular sampling	0	0.	0.	tabular boundary	0	0.	0.
total	100729	1.0556E+00	2.0878E+00	total	100729	1.0556E+00	2.0878E+00

\* per source particle

Após feita a análise da fonte adicionamos à modelagem todo o restante do sistema; o núcleo com refrigerante e combustível e a região preenchida com material refletor. É feita então a simulação com todos os parâmetros operacionais descritos no Capítulo 3. Os resultados dessa simulação são dados a seguir.

A Figura (5.1) a seguir mostra a variação do fator de multiplicação efetivo e seu respectivo intervalo de confiança de 99% para o sistema descrito no Capítulo 3, operando com a fonte padrão do código (Seção 4.1.1) e com o carregamento original de combustível por 10 anos. Pode ser observado que essa fonte não é suficiente para obter valores de  $k_{eff}$  esperados para este tipo de sistema híbrido. Os valores de  $k_{eff}$  obtidos por (David *et. al.*, 2000), por exemplo, variam de 0.98 a 0.95.

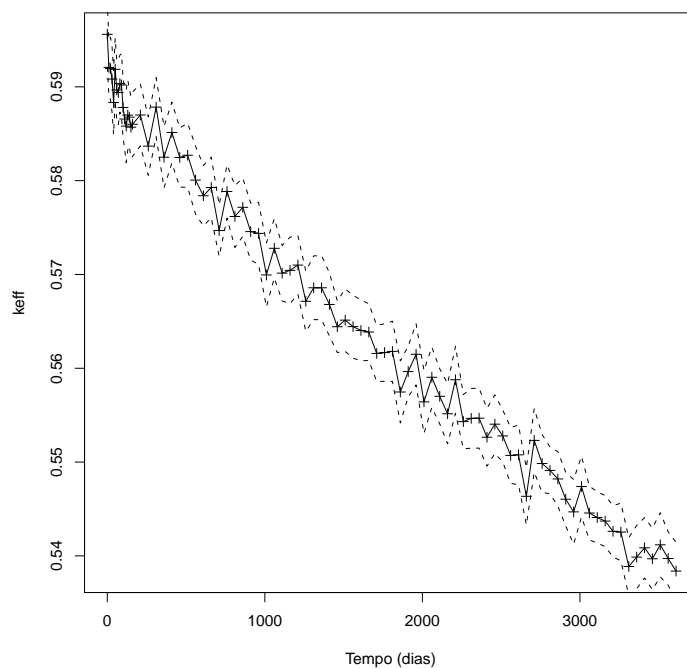


Figura 5.1: Evolução da reatividade do nosso sistema operando com a fonte padrão do código.



Então apesar de usarmos o mesmo carregamento inicial de combustível e operar no mesmo nível de potência que (David *et. al.*, 2000), obtivemos um sistema com reatividade bem menor. Isso pode ser facilmente explicado pelo fato de que usamos uma fonte pontual de prótons, enquanto que o sistema de referência utiliza uma fonte produtora de um feixe de prótons. Conseqüentemente, o nosso sistema possui uma menor produção de nêutrons por *spallation*, o que acarreta um menor valor de reatividade. Sem a disponibilidade adequada de nêutrons a regeneração em nosso sistema também fica comprometida.

Outra questão que deve ser observada é que, desde o início do período de operação, a reatividade do nosso sistema decresce. Enquanto que no sistema de referência este decréscimo só começa a ser observado após cerca de 5 anos de operação. O que também prova a insuficiência da fonte externa simulada nesta fase do trabalho, pois fica claro que ela não está sendo suficiente para suprir a necessidade de nêutrons. Esta insuficiência na produção de nêutrons por *spallation* para este tipo de sistema subcrítico leva à extinção das reações em cadeia. E com o passar do tempo de operação a reatividade do sistema decresce continuamente, levando ao desligamento do sistema.

Nas simulações de David *et. al.* o valor do fator de multiplicação efetivo também decresce com o passar do tempo. Entretanto, nos primeiros 5 anos de operação o valor de  $k_{eff}$  permanece praticamente constante. O decréscimo só começa a ocorrer após cerca de 5 anos de operação, o que pode ser facilmente explicado pela evolução normal do combustível. Já que após cinco anos o número de núcleos físeis e férteis já foi consideravelmente reduzido e a concentração dos venenos do combustível também é grande. Estes dois fatores contribuem negativamente para a reatividade do sistema. E levam a crer que após cerca de 5 anos se faz necessário o reprocessamento do combustível, com a retirada dos produtos de fissão e reinserção de combustível fértil e físsil.

Para as análises das variações isotópicas do combustível é preciso conhecer a distribuição de energia dos nêutrons do sistema. Esta distribuição de energia dos nêutrons é importante para verificar as seções de choque dos nuclídeos que aparecem no ciclo Th/U, pois para entender a variação isotópica do combustível é necessário uma análise da seção de choque dos nuclídeos de interesse. A Figura 5.2 mostra o espectro de nêutrons do núcleo de nosso sistema.

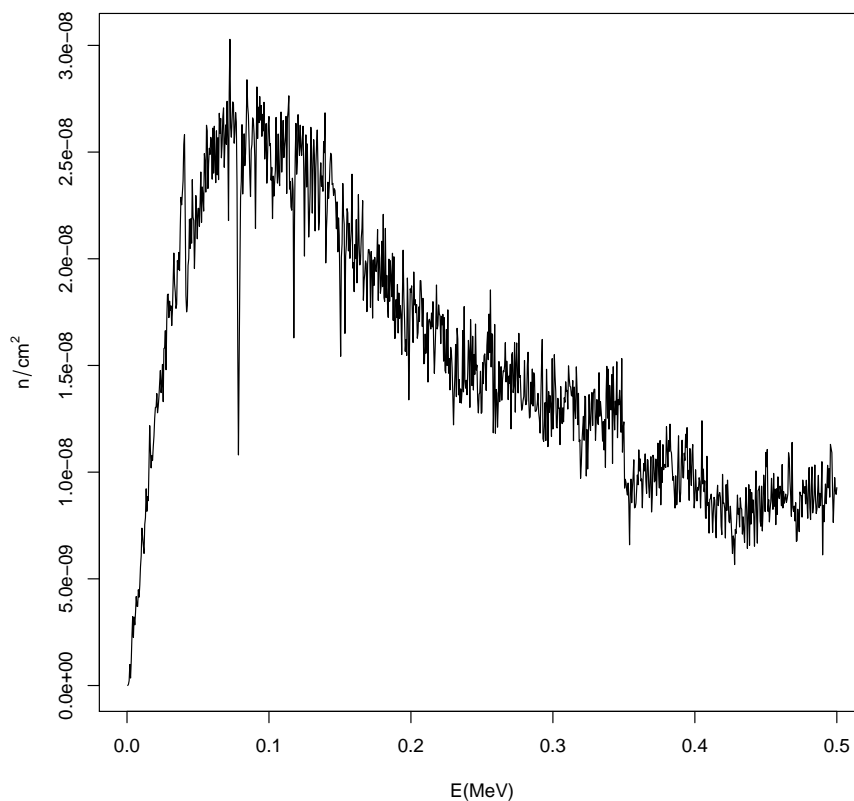


Figura 5.2: Espectro de nêutrons do núcleo.

A análise deste espectro mostra que os nêutrons no núcleo tem energias relativamente altas (nêutrons epitérmicos). O valor mais provável de energia para uma dada distribuição, é aquele valor de energia para o qual existem mais indivíduos. Ou seja, analisando a Figura 5.2 o valor mais provável de energia é o valor correspondente ao valor máximo da curva. Que, após a ordenação crescente dos valores de  $n/cm^2$ , dá um valor mais provável igual a 0.0725 MeV. Então todas as análises de seção de choque são feitas para a faixa próxima a este valor.

Nas seções seguintes serão analisadas as variações em massa dos principais elementos que aparecem no ciclo Th/U ao longo do período de operação. É a partir da análise da concentração destes elementos e isótopos que acompanhamos a evolução do combustível durante o período de operação.

### 5.1.1 Análise da concentração de $^{232}\text{Th}$ durante o período de operação

Pode ser verificado que a concentração do isótopo  $^{232}\text{Th}$  (Figura 5.3) é reduzida em cerca de 11% durante os 10 anos de operação. O que é resultado da considerável seção de choque de captura deste isótopo, que permite a produção de  $^{233}\text{U}$ .

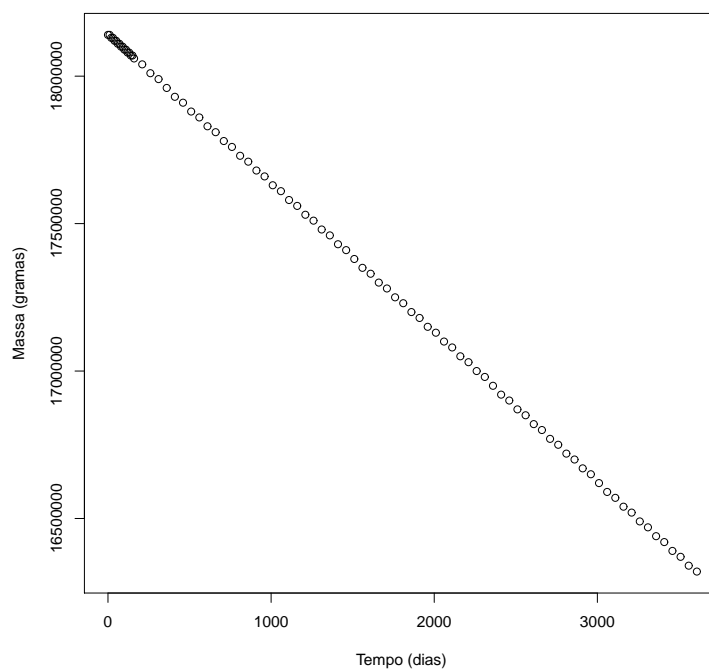
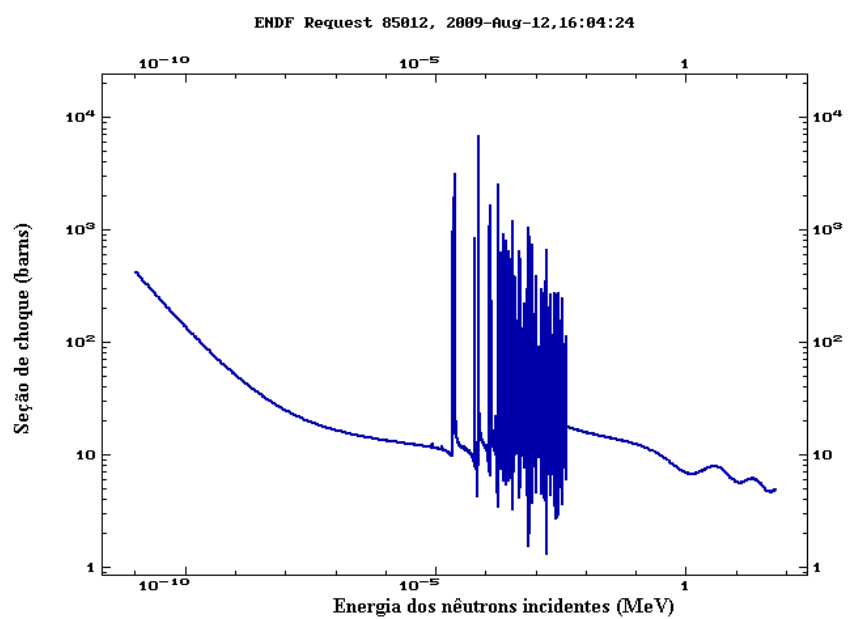
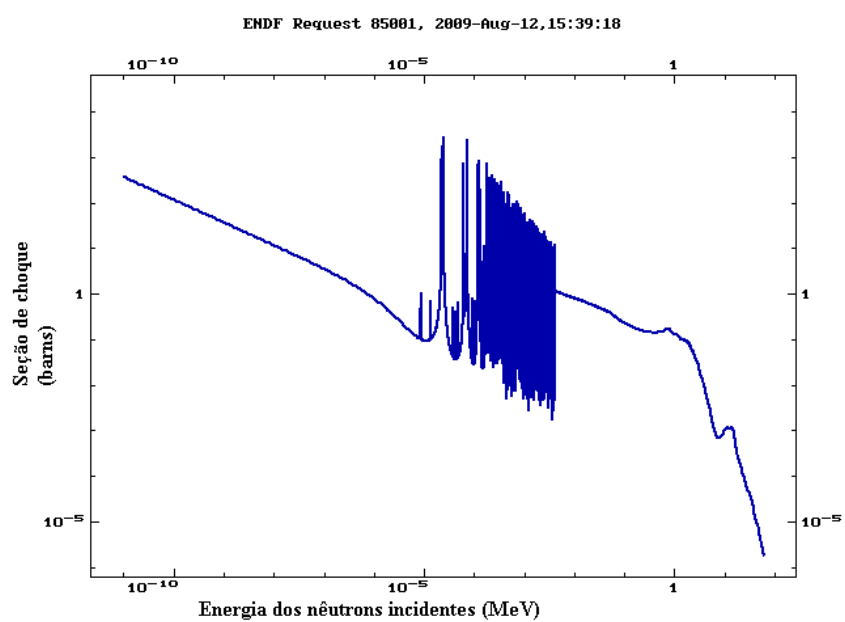
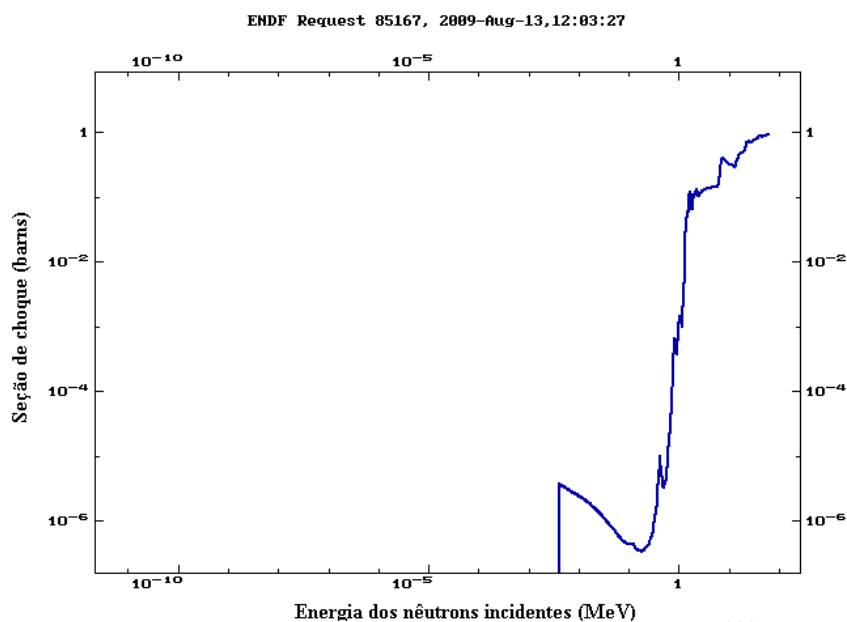


Figura 5.3: Variação de massa para o  $^{232}\text{Th}$ .

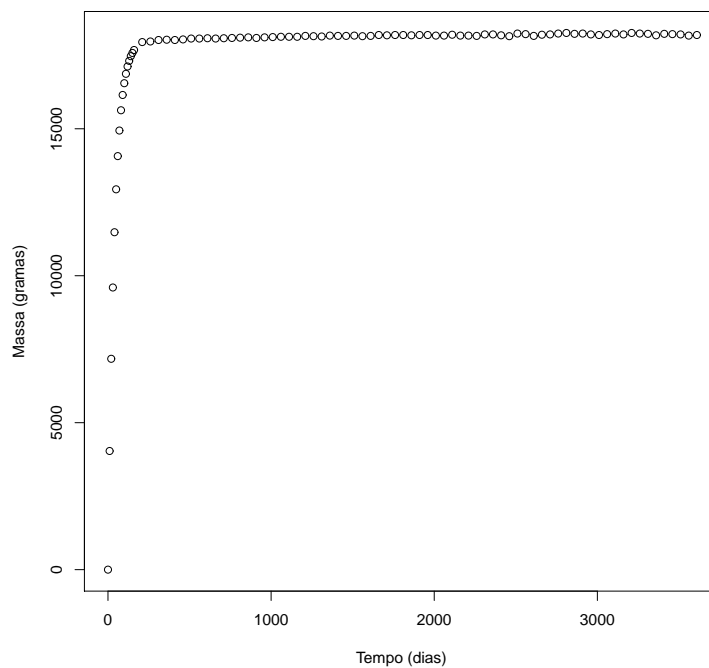
As variações nas seções de choque total de absorção e de captura (n,gama) são mostradas nas Figuras (Figura 5.4) e (Figura 5.5), respectivamente. A partir destas figuras é possível ver que o valor mais provável de energia para os nêutrons de nosso sistema (0.0725 MeV) situa-se pouco depois da região de ressonâncias. A seção de choque total do  $^{232}\text{Th}$  para absorção de nêutrons com este valor de energia é próxima de 10 barns, enquanto que a seção de choque para a captura radiativa é próxima de 1 barn. Ou seja, cerca de 10% das interações dos nêutrons com este isótopo geram capturas radiativas. Capturas estas que levam à formação do isótopo  $^{233}\text{Th}$ . A proximidade entre a quantidade de capturas radiativas (10%) e a quantidade reduzida na concentração de  $^{232}\text{Th}$  (11%) é explicada pelo fato de que a maioria dos núcleos de  $^{232}\text{Th}$  que desaparecem sofrem capturas radiativas. Uma vez que a seção de choque de fissão deste núcleo (Figura 5.6) para a energia de interesse é muito baixa (menor que  $10^{-6}$  barns).

Figura 5.4: Seção de choque total de absorção para o  $^{232}\text{Th}$ .Figura 5.5: Seção de choque de captura radiativa para o  $^{232}\text{Th}$ .

Figura 5.6: Seção de choque de fissão para o  $^{232}\text{Th}$ .

### 5.1.2 Análise da concentração de $^{233}\text{Pa}$ durante o período de operação

A Figura 5.7 descreve a concentração do  $^{233}\text{Pa}$  durante o período de operação. Pode ser constatado que este isótopo é formado em grande proporção, o que contribui negativamente para a reatividade conforme citado na Seção 2.2.1.

Figura 5.7: Variação de massa para o  $^{233}\text{Pa}$ .

Este isótopo é formado quando o  $^{233}\text{Th}$  decai por emissão beta (Figura 2.1). Como o efeito do protactínio é o principal problema dos sistemas baseados no ciclo  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ , é importante saber como se comporta a seção de choque deste isótopo para o valor de energia dos nêutrons em nosso sistema. A Figura 5.8 mostra a seção de choque total de absorção para nêutrons para o  $^{233}\text{Pa}$ . Como o  $^{233}\text{Pa}$  pode, através da captura de um nêutron, gerar o isótopo  $^{234}\text{Pa}$  (Figura 2.1), é importante conhecer também a seção de choque de captura radiativa do  $^{233}\text{Pa}$  que gera o  $^{234}\text{Pa}$  (Figura 5.9). Quando o  $^{233}\text{Pa}$  captura um nêutron gerando o  $^{234}\text{Pa}$ , ele deixa de decair (por decaimento beta) para o  $^{233}\text{U}$ , o que é uma desvantagem para um sistema que busca exatamente a produção deste último isótopo.

Felizmente, observando estas figuras, nota-se que a seção de choque de captura para a região de interesse é relativamente baixa (quase 1 barn), representando cerca de 10% da também pequena seção de choque total de absorção (cerca de 10 barns).

O que se vê então, é que a não utilização de moderador facilita a regeneração de  $^{232}\text{Th}$  em  $^{233}\text{U}$ . Uma vez que a seção de choque total de absorção para o  $^{233}\text{Pa}$  na região do espectro em que se encontram os nêutrons de nosso sistema é claramente menor do que seria com o uso de nêutrons térmicos. Ou seja, o efeito negativo causado pelo protactínio na reatividade de nosso sistema (e conseqüentemente na regeneração) é baixo.

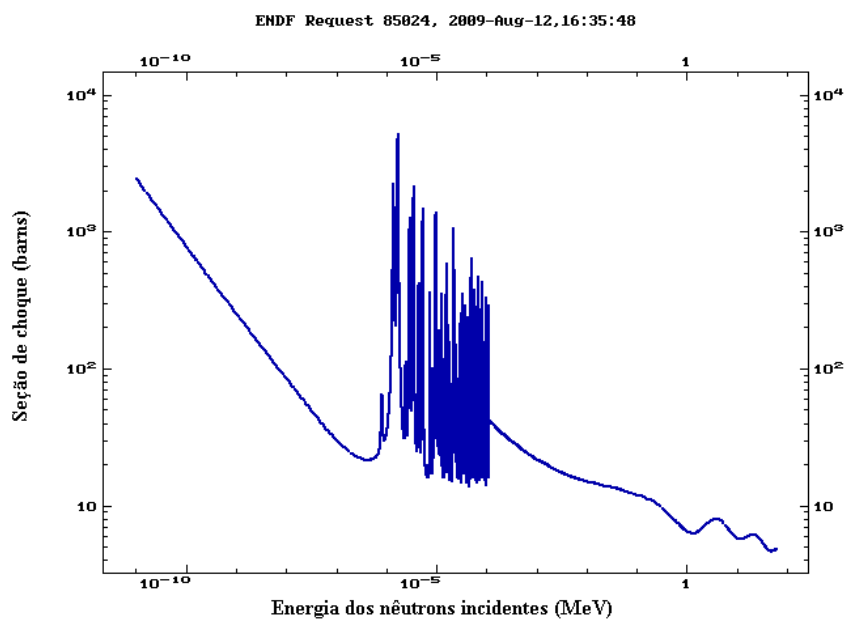


Figura 5.8: Seção de choque total de absorção para o  $^{233}\text{Pa}$ .

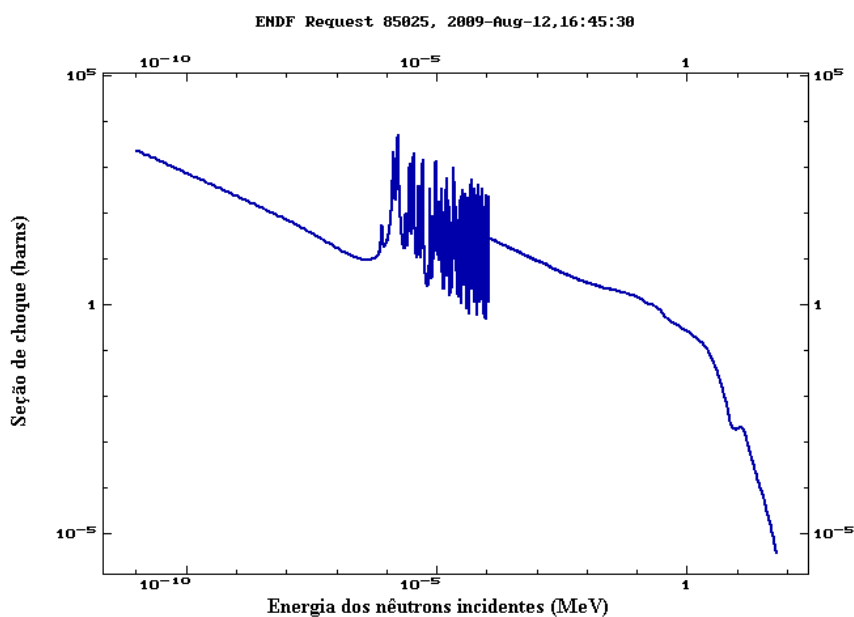


Figura 5.9: Seção de choque de captura radiativa para o  $^{233}\text{Pa}$ .

### 5.1.3 Análise da concentração de $^{233}\text{U}$ durante o período de operação

Na Figura 5.10 é mostrada a concentração do isótopo  $^{233}\text{U}$  e pode ser visto que essa concentração decresce com o tempo. Isto ocorre porque apesar de este isótopo ser produzido pela regeneração do  $^{232}\text{Th}$  ele é constantemente consumido para a geração de potência, uma vez que o carregamento inicial é utilizado para a constante geração de  $515 \text{ MW}_t$  de potência térmica por 10 anos. Afinal, o  $^{233}\text{U}$  é o principal isótopo físsil do sistema.

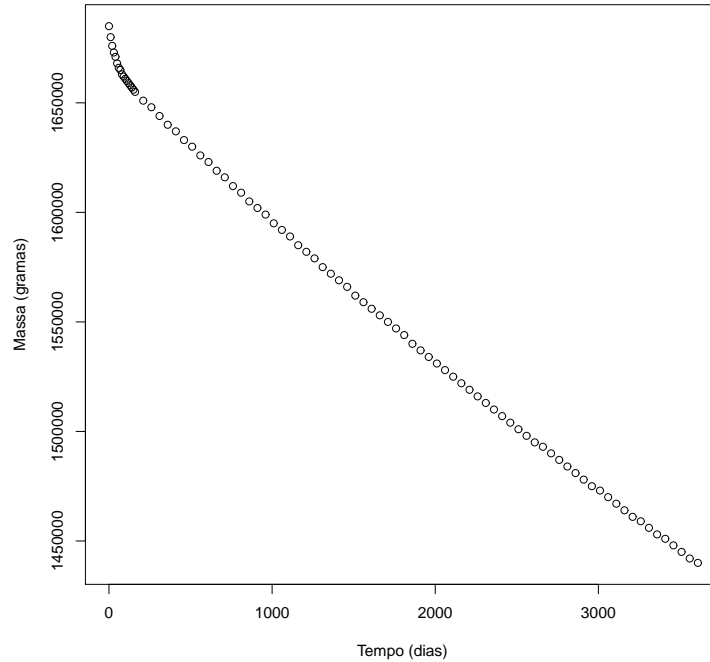


Figura 5.10: Variação de massa para o  $^{233}\text{U}$ .

Neste ponto, torna-se importante verificar a taxa de *burnup* de nosso sistema. Para tanto, é preciso saber a taxa de fissões, que é dada por (Lamarsh, 1977):

$$\text{Taxa de fissões} = P_{\text{MW}} \times \frac{10^6 \text{ J}}{\text{MWs}} \times \frac{\text{fissões}}{191 \text{ MeV}} \times \frac{\text{MeV}}{1.60 \times 10^{-13} \text{ J}} \times \frac{86400 \text{ s}}{\text{dia}} \quad (5.1)$$

onde  $P$  é a potência em MW e 191 MeV é a energia recuperável por fissão para o  $^{233}\text{U}$ . Então tem-se:

$$\text{Taxa de fissões} = 2.83 \times 10^{21} \times P \text{ fissões/dia}. \quad (5.2)$$

A massa do combustível fissionada ou queimada por unidade de tempo é chamada de taxa de queima ou taxa de *burnup*. Para o  $^{233}\text{U}$  tem-se:

$$\text{Taxa de burnup} = 2.83 \times 10^{21} \times P \times 233/6.022 \times 10^{23} = 1.09 \times P \text{ g/dia} \quad (5.3)$$

Ou seja, nosso sistema (potência=515  $\text{MW}_t$ ) consome cerca de 561.35 g/dia de  $^{233}\text{U}$ . Para os 10 anos de operação o consumo é de aproximadamente 2049 kg deste isótopo.

Entretanto, quando se verifica a variação de massa sofrida por esse isótopo durante o período de operação (Figura 5.10), constata-se que a sua massa foi reduzida em apenas 248 Kg. O que comprova que nem todo o  $^{233}\text{U}$  gasto provém do carregamento inicial do



sistema. Ou seja, parte do  $^{233}\text{U}$  queimado advém da regeneração do  $^{232}\text{Th}$ . A massa deste último isótopo sofre uma redução de 1840 Kg durante os 10 anos de operação. A maior parte dessa massa de  $^{232}\text{Th}$  deu origem ao  $^{233}\text{U}$ . O que é objetivo maior de nosso sistema.

Obviamente se a fonte usada tivesse maior produção de nêutrons haveria uma maior taxa de regeneração. Todavia, conclui-se que a composição do combustível e a energia do espectro de nêutrons usados são aspectos favoráveis ao sistema simulado neste estudo.

Para  $^{233}\text{U}$  é interessante observar o comportamento de três seções de choque: a seção de choque total de absorção de nêutrons (Figura 5.11), a seção de choque de fissão (Figura 5.12) e a seção de choque de captura radiativa (Figura 5.13). Esta última é importante porque é através da captura que este isótopo dá origem ao  $^{234}\text{U}$  que, por sua vez, pode capturar um nêutron e dar origem ao  $^{235}\text{U}$ .

A análise destas figuras permite concluir que na região de interesse ( $\approx 0.1\text{MeV}$ ) a seção de choque total de absorção é cerca de 10 barns, dos quais quase 4 barns são de fissão e menos de 1 barn de captura radiativa ( $^{233}\text{U}(n,g)^{234}\text{U}$ ). Ou seja, ocorrem mais fissões do que capturas formadoras de  $^{234}\text{U}$ .

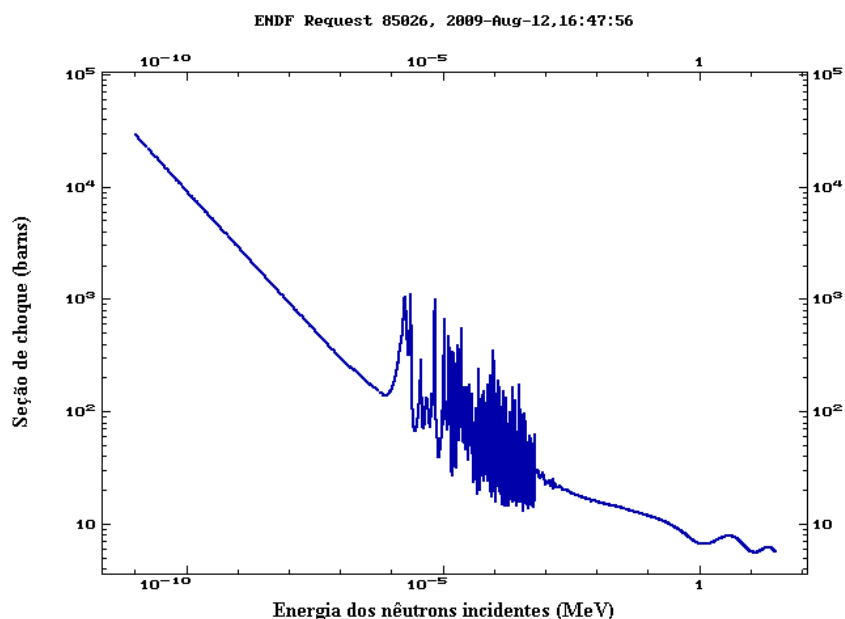


Figura 5.11: Seção de choque total de absorção para o  $^{233}\text{U}$ .

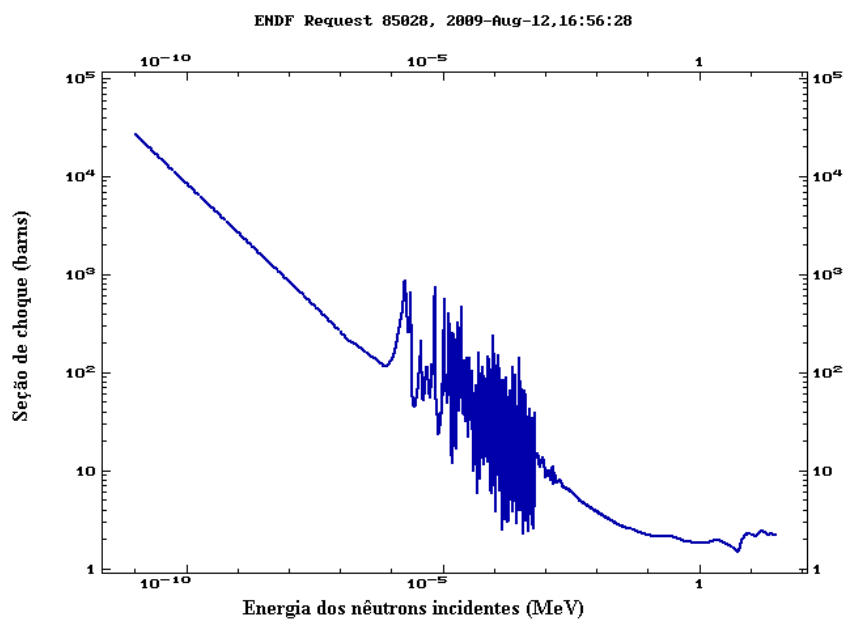


Figura 5.12: Seção de choque de fissão para o  $^{233}\text{U}$ .

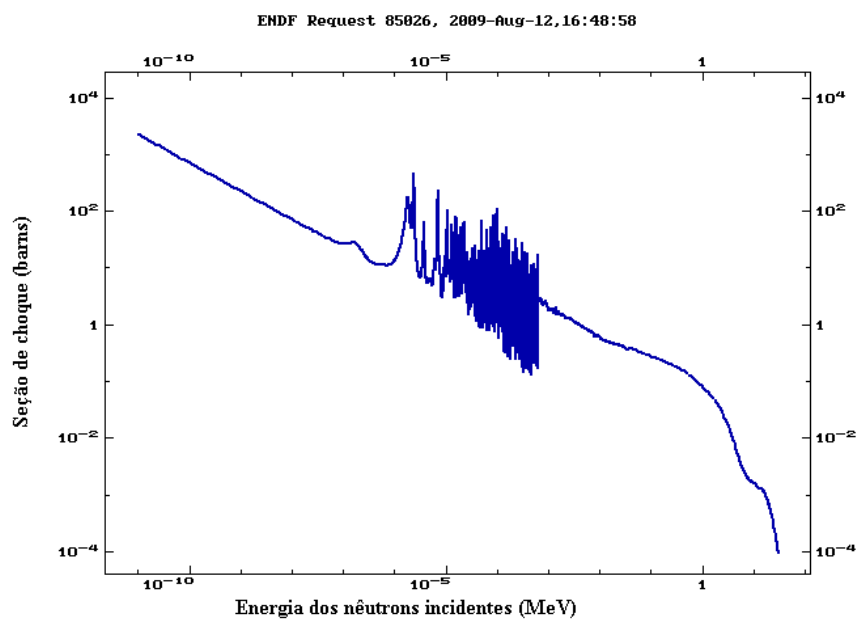


Figura 5.13: Seção de choque de captura radiativa para o  $^{233}\text{U}$ .

#### 5.1.4 Análise da concentração de $^{235}\text{U}$ durante o período de operação

Após sofrer duas capturas radiativas o isótopo  $^{233}\text{U}$  dá origem ao  $^{235}\text{U}$ . A concentração deste último isótopo está esquematizada na Figura 5.14.

A alta concentração de  $^{235}\text{U}$  pode ser explicada através da seção de choque de captura radiativa do  $^{234}\text{U}$  (Figura 5.15), que deve ser comparada à seção de choque total de absorção para este mesmo isótopo (Figura 5.16).

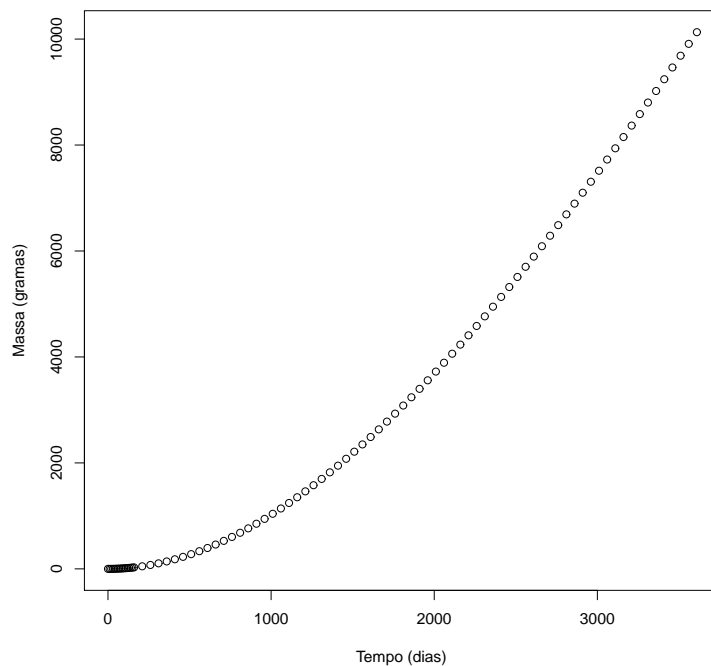


Figura 5.14: Variação de massa para o  $^{235}\text{U}$ .

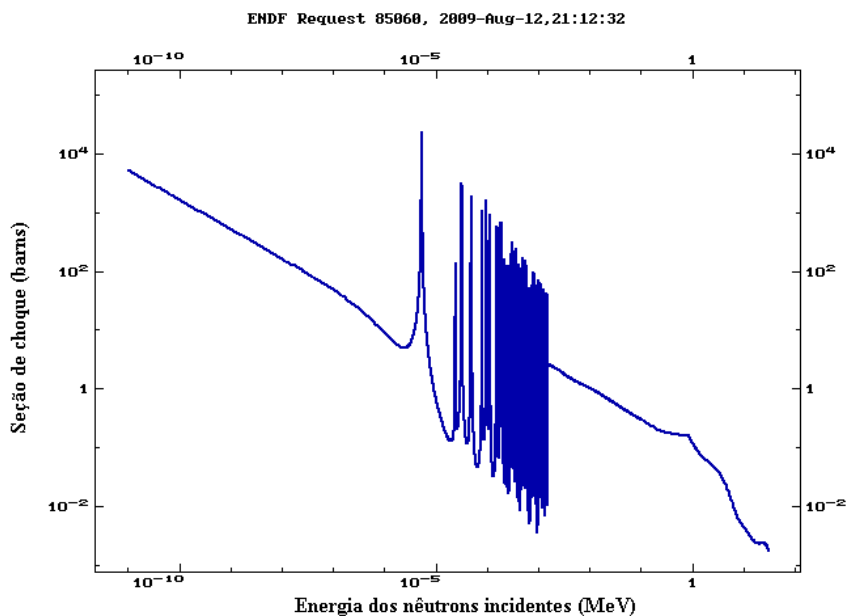
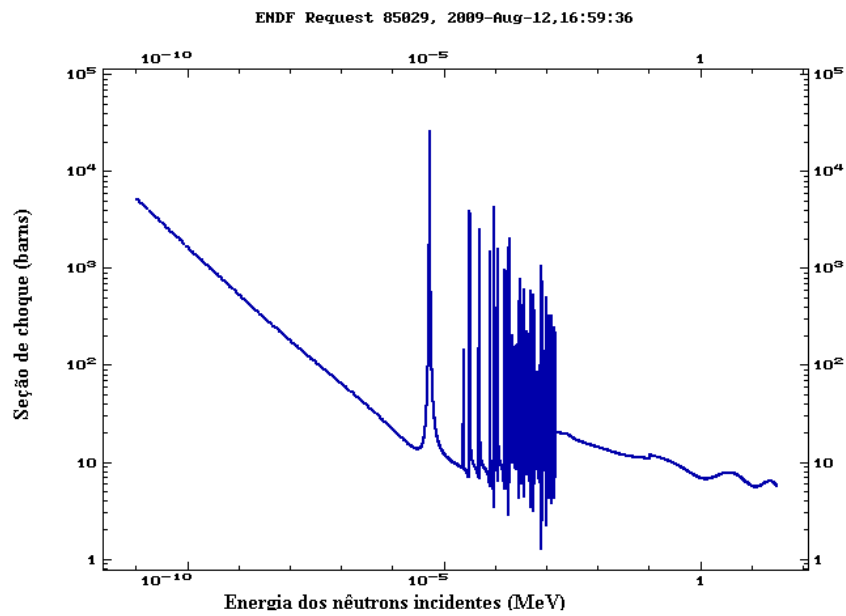


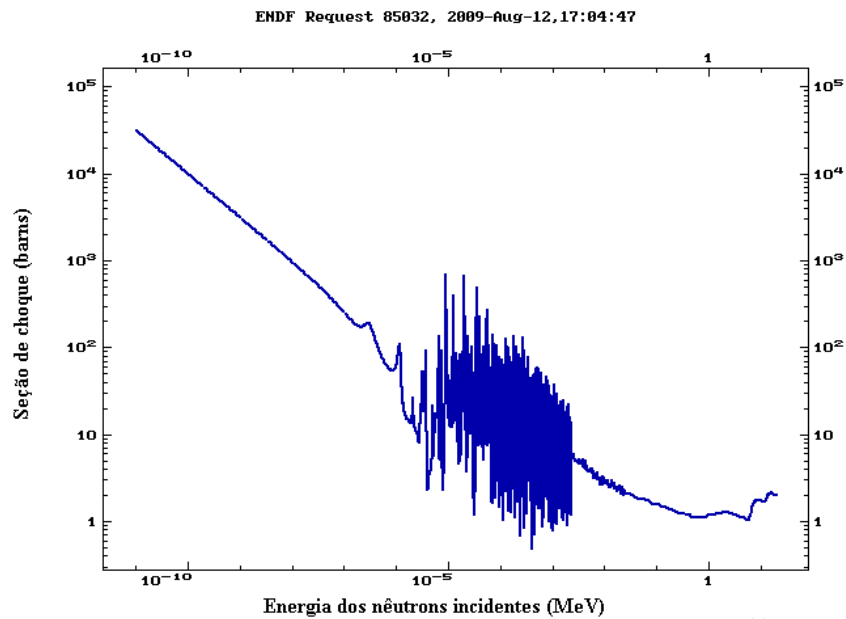
Figura 5.15: Seção de choque de captura radiativa para o  $^{234}\text{U}$ .

Através dessa figuras se vê que cerca de 10% das absorções do  $^{234}\text{U}$  levam a formação de  $^{235}\text{U}$ , já que a seção de choque total de absorção é de quase 10 barns e a de captura é de cerca de 1 barn. E como a formação do  $^{234}\text{U}$  é bastante acentuada ( este isótopo é produzido a partir do  $^{233}\text{U}$ ) têm-se uma alta produção de  $^{235}\text{U}$ .

Entretanto, como pode ser observado na Figura 5.17 este isótopo não contribui fortemente para a reatividade do sistema por sua baixa seção de choque de fissão na região de

Figura 5.16: Seção de choque total de absorção para o  $^{234}\text{U}$ .

interesse. Além disso, ele não constitui um problema para o caso de reprocessamento do combustível para posterior uso em um LWR, pois pode ser usado no carregamento deste tipo de reator juntamente com o  $^{233}\text{U}$ .

Figura 5.17: Seção de choque de fissão para o  $^{235}\text{U}$ .

## 5.2 Resultados para a modelagem com a fonte emissora de um feixe parabólico

Primeiramente consideramos somente a fonte descrita na Seção 4.1.2 de acordo com a entrada descrita nesta mesma seção. Os resultados para esta simulação, descritos no arquivo de saída do código, estão descritos na Tabela 5.2 a seguir.

Tabela 5.2: Resultados do código para a fonte emissora de um feixe parabólico.

neutron creation	tracks	weight *	energy	neutron loss	tracks	weight	energy
Source	382426	1.9121E+01	3.8196E+02	escape	524747	2.6140E+01	1.4720E+02
nucl. interaction	0	0.	0.	energy cutoff	0	0.	0.
particle decay	0	0.	0.	time cutoff	0	0.	0.
weight window	0	0.	0.	weight window	0	0.	0.
cell importance	0	0.	0.	cell importance	0	0.	0.
weight cutoff	0	0.	0.	weight cutoff	0	0.	0.
energy importance	0	0.	0.	energy importance	0	0.	0.
dxtran	0	0.	0.	dxtran	0	0.	0.
forced collisions	0	0.	0.	forced collisions	0	0.	0.
exp. transform	0	0.	0.	exp. transform	0	0.	0.
upscattering	0	0.	0.	downscattering	0	0.	2.9972E+01
photonuclear	0	0.	0.	capture	0	8.9951E-02	2.4485E-01
(n,xn)	206543	1.0314E+01	5.0245E+01	loss to (n,xn)	66352	3.3119E+00	1.2997E+02
prompt fission	0	0.	0.	loss to fission	0	0.	0.
delayed fission	0	0.	0.	nucl. interaction	8272	4.1360E-01	1.2769E+02
tabular boundary	1	5.0000E-05	7.4916E-03	particle decay	0	0.	0.
tabular sampling	10402	5.2010E-01	0.	tabular boundary	1	5.0000E-05	7.4916E-03
total	599372	2.9955E+01	2.0957E+00	total	599372	2.9955E+01	4.3507E+02

\* per source particle

O cálculo da produção de nêutrons ( a partir dos dados da Tabela 5.2), assim como feito para a fonte pontual, pode ser dado por:

escapes + captures:

$$26,14 + 0,0895 = 26,229 \text{ n/p}$$

O que é um valor consideravelmente alto. Comparando este valor com o obtido para a fonte pontual, fica claro a maior eficiência da fonte emissora de um feixe de partículas. O que já era esperado, já que a incidência de prótons na modelagem da fonte pontual é muito menor que na desta fonte.

Após a constatação da eficiência desta fonte, é adicionado à modelagem o restante do sistema (núcleo + refletor), conforme feito para a outra fonte. Entretanto, esse procedimento não gera resultados. O código apenas gera a mensagem *bad trouble in mcrun in routine kcalc no new source points were generated*.

Verifica-se que computacionalmente é mais trabalhoso a definição deste tipo de fonte. Além disso, o acoplamento dessa fonte ao sistema apresenta dificuldades ainda não superadas.

## 6 Conclusão

Neste trabalho é feito um estudo inicial de um ADS para a regeneração  $^{232}\text{Th}$  em  $^{233}\text{U}$ . Após realizadas considerações sobre os principais componentes de um ADS, é feita uma modelagem simplificada deste tipo de sistema para o código MCNPX, considerando um núcleo subcrítico abastecido por uma mistura de  $^{232}\text{ThO}_2 + 9.5\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$  e refrigerado por chumbo natural. Não há a presença de material moderador, justamente porque a utilização de nêutrons com alta energia diminui o efeito protactínio, o principal problema de sistemas que utilizam o ciclo do Th/U. Este sistema subcrítico utiliza nêutrons provenientes de reações de *spallation* entre prótons produzidos por uma fonte pontual e um alvo de chumbo. São analisadas as variações na composição do combustível e no  $k_{eff}$  do sistema durante o período de operação. São feitas análises de seções de choque para os principais nuclídeos do ciclo Th/U e o cálculo da taxa de *burnup* do sistema. Estas análises comprovam a regeneração de combustível no sistema. É constatada a necessidade da definição de uma fonte mais apropriada aos propósitos de regeneração do sistema, pois uma fonte pontual possui baixa produção de nêutrons, sendo insuficiente para suprir a deficiência de nêutrons devido a condição de subcriticalidade. Todavia, fica claro que a energia dos nêutrons usados para esta simulação é adequada e que a composição inicial do núcleo utilizada também é bastante favorável a regeneração do combustível no sistema, apesar da defasagem na produção de nêutrons.

Logo em seguida é feita a modelagem de uma fonte emissora de um feixe parabólico de prótons. É visto que a produção de nêutrons pela interação deste feixe e os núcleos do alvo de chumbo é suficientemente grande, atendendo aos propósitos de um ADS, entretanto, dificuldades computacionais dificultam o acoplamento desta fonte ao núcleo subcrítico.

Estas constatações abrem caminho para novas modelagens mais completas de um ADS. Na continuidade deste trabalho serão feitas modelagens deste tipo de sistema usando os códigos computacionais FLUKA (*FLUctuating KAscade*) (Fassò et. al, 1993) e MCNPX. A viabilidade da utilização do código FLUKA para a simulação de aceleradores utilizados em sistemas híbridos já foi amplamente demonstrada (David et al., 2000; Ni-



fenecker et al., 1999; The European Technical Working Group on ADS, 2001). O código FLUKA é uma ferramenta de propósitos gerais, podendo ser usado para cálculos de transporte de partículas e interações com a matéria em várias aplicações: dosimetria, ativação, *Accelerator Driven Systems*, raios cósmicos, radioterapia dentre outras ( FLUKA, 2009).

Além disso, os trabalhos futuros incluem a utilização da modelagem para a fonte emissora de um feixe parabólico feita para o código MCNPX, para análises de diversos materiais normalmente utilizados como alvo para *spallation*. Podendo assim quantificar e comparar a taxa de produção de nêutrons para cada próton ou dêuteron incidente, para os diversos tipos de alvo.

## *Referências Bibliográficas*

- Bowman, C. D. (1992). Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation Using an Accelerator-Driven Intense Thermal Neutron Source. *Nucl. Instr. Meth. A*, 320 (1992) 336
- Carlucci, B. (1999). Proceedings of the 3rd International Conference on Accelerator Driven Transmutation Technologies and Application.
- Carminati, F. et al. (1992). An energy amplifier for cleaner and inexhaustible nuclear energy production driven by a particle beam accelerator. *CERN/AT/93-47 (ET)*
- David, S. et al. (2000). Fast subcritical hybrid reactors for energy production: evolution of physical parameters and induced radiotoxicities. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, vol. 443, pp. 510-530
- Duderstadt, J., Hamilton, L. (1942). Nuclear reactor analysis.
- Fassò, A. et al. (1993). Intermediate Energy Nuclear Data: Models and Codes, Specialists' meeting, Issy les Molineaux, France, OECD, Paris, 1994. *Nucl. Instr. and Meth. A 332 (1993) 459*, pp. 271
- FLUKA web site [http://http://www.fluka.org/fluka.php](http://www.fluka.org/fluka.php)
- Hill, D. et al. (1999). A Roadmap for developing ATW Technology. *ANL-99/16*
- Lamarsh, J. (1977). Introduction to Nuclear Engineering.
- Lawrence, E. (1954). Status of the MTA Process. *LRL-102*
- Mongelli, S. et al. (2005). Spallation Physics and the ADS Target Design. *Brazilian Journal of Physics 35 (2005) 894-897*
- Nifenecker, H. et al. (1999). Hybrid Nuclear Reactors. *Progress in Particle and Nuclear Physics 43 (1999) 683-827*
- Pelowitz, D. (Ed) (2008). MCNPX user's manual, Version 2.6.0. *LA-CP-07-1473*
- Rossi, P. and Maiorino, J (2007). The Utilization of MCNPX 2.5 for ADS Target Calculation. *International Atlantic Conference- INAC2007*
- Rubbia, C. et al. (1995). Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier. *CERN/AT/95-44 (ET)*
- Teller, E. (1981). Fusion, Magnetic Confinement, 1, Part B. *Academic Press*
- The European Technical Working Group on ADS (2001). A European Roadmap for Developing Accelerator Driven Systems (ADS) for Nuclear Waste Incineration. *ENEA*

Tuyle, G. et al. (1991). Driven Sub- Critical Target Concept for transmutation Nuclear Wastes. *BNL-11973*

WNA web site <http://www.world-nuclear.org/info/inf35.html>

# Livros Grátis

( <http://www.livrosgratis.com.br> )

Milhares de Livros para Download:

[Baixar livros de Administração](#)

[Baixar livros de Agronomia](#)

[Baixar livros de Arquitetura](#)

[Baixar livros de Artes](#)

[Baixar livros de Astronomia](#)

[Baixar livros de Biologia Geral](#)

[Baixar livros de Ciência da Computação](#)

[Baixar livros de Ciência da Informação](#)

[Baixar livros de Ciência Política](#)

[Baixar livros de Ciências da Saúde](#)

[Baixar livros de Comunicação](#)

[Baixar livros do Conselho Nacional de Educação - CNE](#)

[Baixar livros de Defesa civil](#)

[Baixar livros de Direito](#)

[Baixar livros de Direitos humanos](#)

[Baixar livros de Economia](#)

[Baixar livros de Economia Doméstica](#)

[Baixar livros de Educação](#)

[Baixar livros de Educação - Trânsito](#)

[Baixar livros de Educação Física](#)

[Baixar livros de Engenharia Aeroespacial](#)

[Baixar livros de Farmácia](#)

[Baixar livros de Filosofia](#)

[Baixar livros de Física](#)

[Baixar livros de Geociências](#)

[Baixar livros de Geografia](#)

[Baixar livros de História](#)

[Baixar livros de Línguas](#)

[Baixar livros de Literatura](#)  
[Baixar livros de Literatura de Cordel](#)  
[Baixar livros de Literatura Infantil](#)  
[Baixar livros de Matemática](#)  
[Baixar livros de Medicina](#)  
[Baixar livros de Medicina Veterinária](#)  
[Baixar livros de Meio Ambiente](#)  
[Baixar livros de Meteorologia](#)  
[Baixar Monografias e TCC](#)  
[Baixar livros Multidisciplinar](#)  
[Baixar livros de Música](#)  
[Baixar livros de Psicologia](#)  
[Baixar livros de Química](#)  
[Baixar livros de Saúde Coletiva](#)  
[Baixar livros de Serviço Social](#)  
[Baixar livros de Sociologia](#)  
[Baixar livros de Teologia](#)  
[Baixar livros de Trabalho](#)  
[Baixar livros de Turismo](#)