

# CONJUNTO SUBCRÍTICO ACOPLADO COM ACELERADOR (ADS) PARA TRANSMUTAÇÃO DE REJEITOS NUCLEARES: UMA ABORDAGEM DE MODELAGEM COMPUTACIONAL

Mirta B. Torres<sup>1</sup>, Dany S. Dominguez<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Universidade Estadual de Santa Cruz (UESC)  
Campus Soane Nazaré de Andrade, Rodovia Jorge Amado, Km 16, Bairro Salobrinho  
CEP 45662-900. Ilhéus-Bahia 50740-540 Recife, PE  
[mirta261104@yahoo.es](mailto:mirta261104@yahoo.es)

## RESUMO

Dispositivos nucleares de fissão acoplados a aceleradores de partículas ADS estão sendo amplamente estudados. Estes dispositivos têm diversas aplicações, que incluem transmutação de rejeitos nucleares e produção de hidrogênio, ambas as aplicações com forte impacto social e ambiental. A essência deste trabalho foi modelar uma geometria ADS de pequeno porte composta por combustível TRISO carregado com uma mistura de MOX de urânio e tório para material alvo de *spallation* de urânio, utilizando métodos de modelagem computacional probabilística, em particular o programa MCNPX 2.6E, visando avaliar as características físicas do dispositivo e suas capacidades de transmutação. Como resultado da caracterização do alvo de *spallation*, pode-se concluir que a produção de nêutrons por próton incidente aumenta com o incremento das dimensões do alvo de *spallation* (espessura e raio), até que é alcançada a máxima produção de nêutrons por próton incidente ou a chamada região de saturação. Os resultados obtidos na modelagem do dispositivo ADS do tipo leito de bolas, com relação à variação isotópica dos isótopos de plutônio e os actínídeos menores considerados na análise revelaram que a acumulação da massa dos isótopos de plutônio e os actínídeos menores aumentam para a configuração subcrítica comiserada. No caso particular do isótopo <sup>239</sup>Pu, se observa uma diminuição da massa a partir do tempo de queima de 99 dias. O incremento da potência no núcleo, considerando alvos de *spallation* de tungstênio e chumbo, encontra-se entre os principais desdobramentos futuros deste trabalho.

## 1. INTRODUÇÃO

Estudos recentes sugerem que a transmutação dos rejeitos nucleares de longa vida pode ser uma solução ao problema de armazenamento definitivo do combustível esgotado após seu uso em reatores nucleares térmicos, problema listado entre os principais entraves ao uso massivo da energia nuclear. Para muito pesquisadores e ambientalistas, a necessidade de armazenamento dos rejeitos nucleares, por centenas de milhares de anos em reservatórios geológicos profundos, é o “talão de Aquiles” da energia nuclear. Alternativas que minimizem o tempo de armazenamento oferecem novas oportunidades à energética nuclear no cenário mundial. Pioneiros nesta revivificação da energia nuclear foram Furukawa [1], Bowman [2] e Rubbia [3]. Ideias similares foram propostas inicialmente há mais de 50 anos [5,6]. Naquela época, estes projetos não foram levados adiante, tanto por dificuldades tecnológicas como por falta de incentivo econômico e as grandes dificuldades de análise inerente aos fenômenos envolvidos. Entretanto, era conhecida desde então, a possibilidade de transmutação.

Na prática, o objetivo da transmutação é produzir nuclídeos mais estáveis e menos radio-tóxicos. O conceito de transmutação data do ano 1914, Rutherford foi o primeiro em transmutar  $N^{14}$  à  $O^{17}$  usando partículas alfa energéticas. Seguindo o desenvolvimento dos aceleradores de alta potência, a primeira proposta de aceleradores de partículas de alta energia para produzir nêutrons mediante a reação de *spallation* foi realizada por Lawrence em 1950. O projeto foi denominado Material Testing Accelerator (MTA), tendo como objetivo produzir plutônio a partir do urânio esgotado. Este projeto foi abandonado quatro anos depois, recebendo pouca atenção até a década do ano 80, quando foi retomado nos Estados Unidos e Japão, então com o interesse de destruir os rejeitos nucleares, principalmente os actínídeos menores (*MA-Minor Actinídeos*) e os isótopos de plutônio. Desde então pesquisadores do mundo todo vem trabalhando arduamente no desenvolvimento de dispositivos ADS [6]. Pelas características intrínsecas de segurança, o conjunto formado por um acelerador de prótons acoplado a um núcleo subcrítico encontra-se entre os projetos conceituais que tiveram melhor aceitação. Este tipo de reator híbrido, conhecido também como dispositivo dirigido por acelerador (*ADS – Accelerator Driven System*), é composto de:

1. Um acelerador de prótons de média e alta energia. Nos projetos atuais, a energia do feixe de prótons é da ordem de 350-1000 MeV.
2. Um alvo de *spallation* com massa atômica elevada e alta densidade.
3. Um núcleo subcrítico.

A essência deste trabalho foi modelar uma geometria ADS de pequeno porte composta por combustível TRISO (*TRISO-Tristructural-isotropic*) carregado com uma mistura de MOX (*MOX- Mixed oxide fuel*) de urânio e tório para material alvo de *spallation* de urânio, utilizando métodos de modelagem computacional probabilística, em particular o programa MCNPX (*MCNPX Monte Carlo N-Particle Extended*) versão 2.6E [7].

Os objetivos específicos da pesquisa foram:

1. Caracterização do alvo de *spallation* em função da energia do feixe de prótons incidente e as dimensões do alvo.
2. Modelagem probabilística de um dispositivo ADS do tipo leito de bolas visando avaliar as características físicas do dispositivo e suas capacidades de transmutação.

Este trabalho é dividido em 4 capítulos. A relevância do problema abordado e os objetivos do trabalho são descritos neste capítulo. O capítulo 2, Materiais e Métodos, descreve a metodologia e ferramentas computacionais utilizadas para realizar os experimentos de simulações que permitem cumprir os objetivos propostos. O capítulo 3 apresenta e discute os resultados da caracterização do alvo de *spallation* e da simulação do ADS de leito de bolas. Por último, o capítulo 4 oferece as conclusões do trabalho e sugere algumas alternativas para os desdobramentos futuros da pesquisa.

## 2. MATERIAIS E MÉTODOS

Na modelagem de uma geometria ADS, temos dois fenômenos físicos fundamentais a serem considerados no cálculo. Esses são: a reação de *spallation*, produto da interação de partículas

de alta energia, fundamentalmente prótons, com o alvo de núcleos pesados e alta densidade; e o fenômeno de transmutação, que ocorre no material distribuído no conjunto com configuração subcrítica que rodeia o alvo.

A modelagem probabilística da reação de *spallation* pode ser grosseiramente dividida em duas etapas. Na primeira etapa, geralmente conhecida como cascata intranuclear, o núcleon de entrada colide com os nucleons do alvo, depositando assim uma fração da sua energia. Esta fase rápida, de interação de espalhamento núcleon-núcleon, conduz à ejeção de alguns dos nucleons e à excitação do núcleo residual geralmente instável que se esfriará posteriormente na segunda fase. A desexcitação do núcleo residual pode acontecer por dois caminhos: evaporação ou fissão. Na evaporação, a desexcitação no núcleo residual ocorre através da emissão de nucleons ou núcleos ligeiros, tais como D, T, He,  $\alpha$ , Li, Be. Se existem materiais físséis no alvo, tantos os nêutrons como os prótons podem induzir reações de fissão.

A reação de *spallation* e o transporte subsequente de nêutrons são simulados no código MCNPX através de vários modelos. O código MCNPX, acoplado ao código LAHET [8] e MCNP [9] só precisa de um arquivo de entrada para ambos os códigos evitando a transferência de longos arquivos de dados. O código LAHET inclui os modelos de cascata intranuclear Bertini [10] e Isabel [11]. Também são acoplados, ao código, modelos de cascata intranuclear mais atuais, o modelo CEM (*CEM- Cascade Exciton Model*) [12] e o modelo INCL4 (*INCL- IntraNuclear Cascade Liege*) [13]. O modelo de pré-equilíbrio multiestágio MPM [14] é invocado na conclusão da cascata intranuclear.

Os modelos de evaporação incluídos no código são o modelo de evaporação ABLA [15] e DRESNER [16]. Também estão acoplados, ao código, dois modelos de fissão induzida por partículas de alta energia. Esses são o modelo de fissão RAL (*RAL- Rutherford Appellton Laboratory*) e ORNL (*ORNL- Oak Ridge National Laboratory*) [17].

As capacidades de transmutação existentes no do código CINDER 90 foram integradas recentemente ao MCNPX, aumentado assim sua base de aplicação [18] e permitindo seu uso na modelagem de instalações dedicadas à transmutação de rejeitos como o ADS.

## 2.1. Experimentos numéricos com o código MCNPX

Com o fim de facilitar à compreensão da metodologia, a seção foi dividida em duas subseções. Uma para cada objetivo do trabalho.

A primeira parte da metodologia é dedicada à caracterização do alvo de *spallation* em função da energia do feixe de prótons incidente, as dimensões do alvo de urânio. Para isso, foram executadas sucessivamente as seguintes etapas:

- Estudo de otimização das dimensões do alvo de *spallation* (espessura e raio);
- Obtenção do espectro de nêutron no alvo de *spallation*;
- Avaliação da produção de nêutrons (Pn/P) por próton incidente;
- Por último, visando avaliar a eficiência energética do alvo de *spallation*, foi estudado o comportamento da produção de nêutrons por unidade de energia do próton incidente.

A segunda parte da metodologia descreve a modelagem probabilística de um ADS do tipo leito de bolas de pequeno porte para o material alvo de *spallation* considerado. Especificamente foram determinados ao longo de um ano de operação (365 dias) os seguintes parâmetros do dispositivo ADS:

- Distribuição do fluxo de neutrônico no núcleo do reator;
- Variação da potência térmica no núcleo do dispositivo;
- Variação do coeficiente de multiplicação efetivo do núcleo subcrítico;
- Variação da composição isotópica do combustível do núcleo. Especificamente avaliar as concentrações de actínídeos menores e de plutônio.

### **2.1.1. Metodologia para a caracterização do alvo de *spallation***

A tarefa de otimização do alvo de *spallation* consiste em encontrar as dimensões do alvo (raio e espessura) para a qual é obtida a máxima produção de nêutrons induzidos por energia de prótons incidentes. Para determinar a espessura ótima do alvo de *spallation*, foi calculada com o código MCNPX a tally F1. Isso é o número de partículas que atravessam a superfície da célula, ou seja, escapam do alvo de *spallation*. Para o alvo, foi considerada uma geometria cilíndrica de 15 cm de raio e diferentes valores de espessura, na faixa de 5 até 80 cm. As energias do feixe incidente de prótons simuladas foram de 300, 600 e 1000 MeV. O feixe de prótons incide na direção axial do alvo com um perfil espacial parabólico, o qual abrange um raio de 7 cm.

Para estudar a variação da produção de nêutrons por próton incidente em função do raio, foram consideradas três alternativas para o raio, sendo elas 9, 12 e 15 cm; e energia do feixe de prótons incidente de 1000 MeV.

O espectro normalizado de nêutrons na faixa de energia entre 0.01 MeV e a energia do feixe de prótons incidente, para alvo de 15 cm de raio e 20 cm de espessura.

O estudo do comportamento da produção de nêutrons por próton incidente ( $P_n/P$ ) em função da energia do feixe de prótons incidente ( $E_p$ ) na faixa de energia de 300 até 1800 MeV, foi realizado calculando a tally F1. Também com a tally F1 foi calculada a produção de nêutrons específicos ( $P_n/P_{Ep}$ ), a partir do cálculo da razão entre a produção de nêutrons por próton incidente e a energia do feixe de prótons incidente ( $E_p$ ), chamado de custo do nêutron. Ambos os estudos foram realizados utilizando a mesma geometria de alvo descrita anteriormente.

### **2.1.2. Metodologia para modelagem de um ADS do tipo leito de bolas**

Esta segunda etapa do trabalho visa à simulação de um dispositivo ADS do tipo leitos de bolas. Parâmetros do dispositivo como coeficiente efetivo de multiplicação e a capacidade de transmutação serão avaliadas. Acoplamos o alvo de *spallation* a um núcleo subcrítico de pequeno porte do tipo leito de bolas, refrigerado por gás (Hélio) e moderado com grafite. Consideramos combustível TRISO (*TRISO-TRIStructural-ISotropic*), onde centenas de partículas TRISO são comprimidas dentro de esferas de grafite de 3 cm de raio. Este tipo de combustível de forma esférica é utilizado para criar o leito de bolas. Os reatores do tipo leito de bola permitem a recarga contínua do combustível no núcleo do reator. Estas bolas foram

contidas no interior de um anel cilíndrico de aproximadamente 158 cm de altura e 60 cm de espessura, localizado entre a região de *spallation* e o diâmetro interior do refletor de grafite. As dimensões do refletor de grafite foram de 60 cm de espessura tanto na direção radial como axial. O alvo de *spallation* foi localizado no centro do núcleo subcrítico. A dimensão do alvo de *spallation* foi de 15 cm de raio e 20 cm de espessura.

Em nossa simulação, as bolas pequenas da partícula TRISO são compostas de uma mistura de óxido de urânio e tório como combustível. O ciclo de combustível urânio-tório é uma opção muito atrativa para ADS, devido ao fato que o tório é de três a quatro vezes mais abundante que o urânio natural, não precisa ser enriquecido, e a produção dos rejeitos nucleares, principalmente dos actínídeos menores e dos isótopos de plutônio, é menor que no ciclo combustível U-Pu utilizado nos LWRs [19].

A composição e a massa em gramas das bolas para o combustível são mostradas na Tabela 1.

**Tabela 1- Composição e massa em gramas das microbolas combustíveis usada na simulação com o código MCNPX 2.6E.**

Isótopo	Massa em grama Combustível inicial 1.73 g/cm <sup>3</sup>
<sup>12</sup> C	123771,87
<sup>16</sup> O	196,71
<sup>235</sup> U	175,56
<sup>238</sup> U	702,09
<sup>232</sup> Th	585,10
<sup>14</sup> N	1394,81

O conjunto subcrítico foi calculado com o objetivo de ser capaz de gerar energia e produzir a transmutação dos isótopos de plutônios e actínídeos menores (MA), sem necessidade de ligar o acelerador de partículas a uma fonte externa de alimentação de energia, de modo que a instalação seja autossustentável. O desenho foi realizado para gerar uma potência térmica de 10 MW em todos os estados, de modo que o valor de potência total que permite gerar o núcleo deve ser maior que 10 MW. A altura do núcleo foi subdividida em nove regiões ou camadas horizontais onde foram distribuídas as bolas.

O cálculo de criticalidade foi realizado através do cartão KCODE, sendo simulados 500 ciclos de queima. Com a mesma composição e massa combustível usada no cálculo de criticalidade é simulado o fluxo médio de nêutrons (tally f4). A potência do reator é determinada através da simulação com o código da deposição de energia de fissão por unidade de volume (tally f7). O acelerador proposto para o sistema é um ciclotron com seis setores de separação e quatro cavidades que permitem alcançar 1 GeV de energia de prótons, com uma intensidade de corrente de 10 mA.

O cálculo da variação da composição isotópica de MA e isótopos de plutônio foi obtida utilizando o cartão BURN TIME, considerando um valor de potência de 10 MW. Os isótopos selecionados na análise da variação da composição isotópica do combustível TRISO foram: isótopos de plutônio, <sup>242</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu, <sup>238</sup>Pu e os MA, <sup>244</sup>Cm, <sup>242</sup>Cm, <sup>243</sup>Am, <sup>241</sup>Am e <sup>237</sup>Np. Estes isótopos foram escolhidos na análise por serem os elementos mais perigosos do

combustível nuclear esgotado, devido a seus altos níveis de radiotoxicidade e pelos longos períodos de tempo que se requerem para armazenar em repositórios geológicos profundos, gerando uma carga considerada inaceitável às gerações futuras, tanto para a comunidade científica internacional, como para a opinião pública mundial.

A continuação se apresentará a análise e discussão dos resultados obtidos neste trabalho.

### 3. ANÁLISE E DISCUSSÃO DOS RESULTADOS

Da mesma forma que a metodologia, este capítulo é dividido em duas seções: a primeira seção apresenta os resultados da caracterização do alvo de *spallation*; e a segunda seção, os resultados da simulação do ADS de leito de bolas.

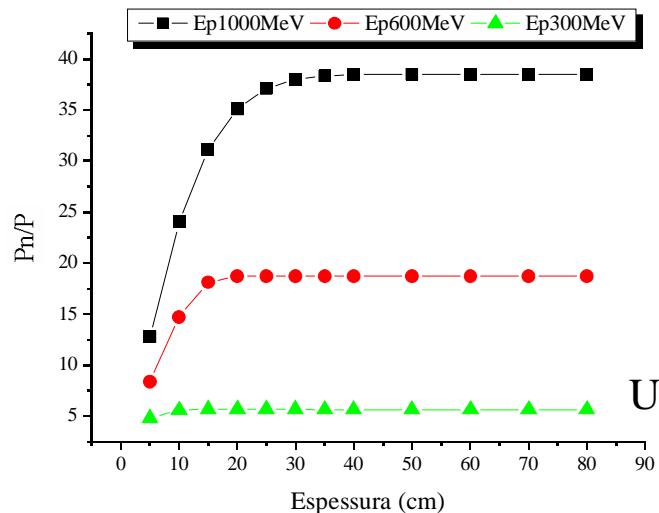
#### 3.1. Caracterização do alvo de *spallation*

##### 3.1.1. Produção de nêutrons por próton incidente em função das dimensões do alvo

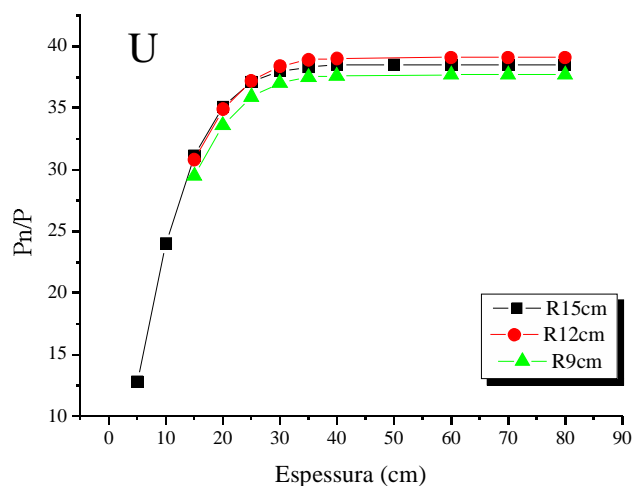
As Figuras 1 e 2 mostram a variação da produção de nêutrons por próton incidente ( $Pn/P$ ) em função da espessura e raio do alvo, para energias de feixe incidente de prótons de 300, 600 e 1000 MeV.

Como se pode ver na Figura 1, a produção de nêutrons induzidos por próton incidente aumenta rapidamente até que é alcançado o valor de saturação. A incidência do feixe de prótons, provenientes do acelerador de partículas no alvo de *spallation*, provoca a liberação de nêutrons e prótons altamente energéticos no núcleo alvo. Esta etapa é denominada como reação primária de *spallation*. Devido ao fato dos prótons gerados nesta etapa inicial serem muito energéticos, eles podem induzir, no alvo, novas reações secundárias de *spallation*. A participação destas duas reações de *spallation* no alvo, e o incremento da probabilidade da reação com o aumento da espessura do alvo produziram um rápido aumento da produtividade de nêutrons no alvo. O valor da espessura ótima corresponde ao valor onde é obtida a máxima produção de nêutrons por prótons incidentes (região de saturação), a qual varia proporcionalmente, com a energia do feixe incidente de prótons. A região de saturação da produção de nêutrons induzidos por próton incidente de 1000 MeV no alvo é alcançada no valor de espessura do alvo de 40 cm com um valor de  $Pn/P = 38,5$ .

Como se pode ver na Figura 2, a maior produtividade de nêutrons induzidos por próton incidente é obtida no valor de raio de 12 cm, e a menor para o raio de 9 cm.

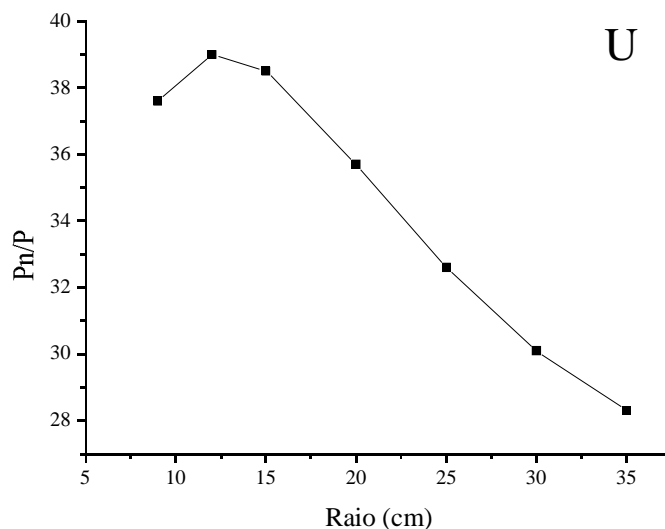


**Figura 1- Comportamento da produção de nêutrons induzidos por próton incidente (Pn/P) em função da espessura do alvo de urânio, de 15 cm de raio e energias do feixe incidente de prótons de 300, 600 e 1000 MeV**



**Figura 2- Comportamento da variação da produção de nêutrons por próton incidente (Pn/P) no alvo para raios de 9, 12 e 15 cm; e energia do feixe de próton incidente de 1000 MeV.**

A Figura 3 mostra o valor do raio ótimo para o alvo de urânio considerando o valor de espessura ótimo de 40 cm, determinado anteriormente, e energia do feixe incidente de prótons de 1000 MeV.

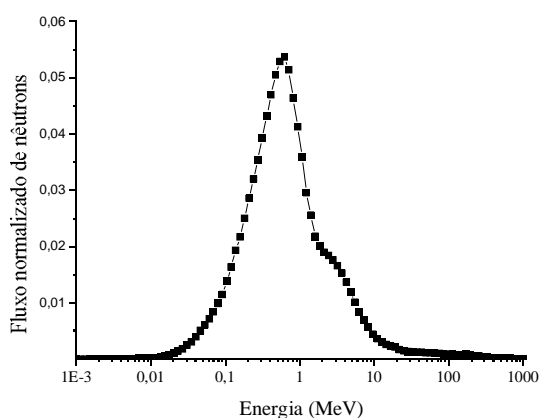


**Figura 3. Variação da produção de nêutrons por próton incidente em função do raio com energia do feixe incidente de 1000 MeV.**

No alvo de urânio, a região de máxima produção de nêutrons por próton incidente é alcançada no raio de 12 cm.

### 3.1.2. Espectro de nêutrons

O espectro de nêutrons gerado na região de *spallation* vai ser multiplicado com os nêutrons gerados no núcleo com a configuração subcrítica considerada. Esta multiplicação é provocada pelas reações nucleares que acontecerão no material combustível que compõe o núcleo. A Figura 4 mostra o espectro de nêutrons normalizado, simulado com o código, para um feixe incidente de prótons de 1000 MeV.



**Figura 4- Espectro normalizado de nêutrons para energia de prótons incidente de 1000 MeV.**

Como percebemos na Figura 4, o espectro de nêutrons obtido tem uma distribuição de energia desde 0,001 MeV até a energia do feixe incidente de prótons, ou seja, nêutrons

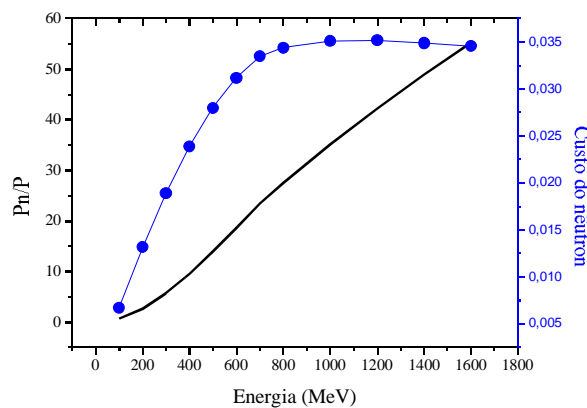


rápidos e ultrarrápidos são produzidos. No alvo, a maior fluência de nêutrons corresponde a energia de 0,6 MeV. Para energias maiores de 10 MeV, o valor de fluxo diminui suavemente.

O espectro de nêutrons de fissão nos reatores térmicos apresenta energias entre 0 e 10 MeV, e como percebe-se na Figura 4, os nêutrons de *spallation* apresentam níveis de energia muito superiores a 10 MeV, e conseqüentemente os requisitos de blindagem para estes nêutrons devem ser mais rigorosos.

### 3.1.3. Produção de nêutrons (Pn/P) por próton incidente e custo do nêutron (Pn/PEp)

A Figura 5 mostra o comportamento da produção de nêutrons por próton incidente representado com linha sólida (eixo vertical esquerdo) e o custo do nêutron representado com círculo (eixo vertical direito), ambos em função da energia do feixe incidente de prótons.



**Figura 5. Produção de nêutrons por próton incidente (Pn/P) e custo do nêutron em função da energia do feixe de prótons incidente (Ep).**

Como se observa na Figura 5, a produção dos nêutrons (Pn/P) por próton incidente varia proporcionalmente com a energia do feixe incidente de prótons. Devido ao urânio ser um material físsil é favorecida neste material alvo a produção de nêutrons de fissão, incrementando-se a produtividade de nêutrons, que se somam aos nêutrons produzidos pela reação de *spallation*.

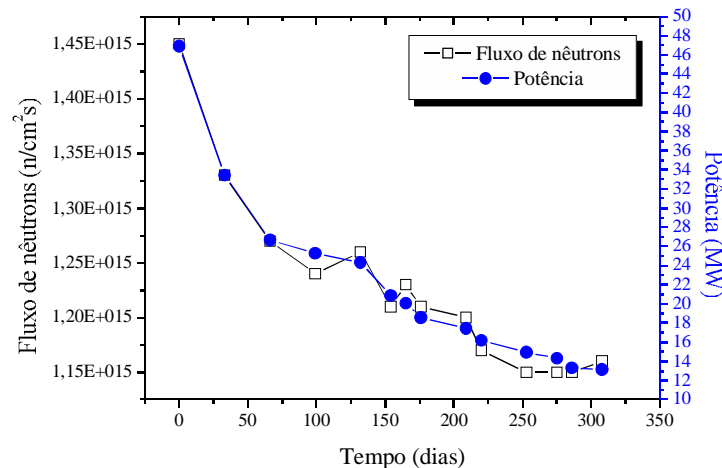
A relação entre a produtividade de nêutrons no alvo de *spallation* e o acelerador de partículas coloca um novo conceito a considerar no dispositivo de ADS. Este conceito denominado “o custo do nêutron” [20], representado também na Figura 5, mostra que a produção de nêutrons específicos começa a diminuir para valores de energias maiores de 1000 MeV, significando um aumento do custo do nêutrons do dispositivo ADS. Para energias maiores que 1000 MeV, o decréscimo da produção de nêutrons por unidade de energia do feixe incidente de prótons está relacionado com o tamanho do alvo. Entretanto, fazem-se necessários mais dados experimentais que confirmem este comportamento [20].

O máximo número de nêutrons no alvo é observado entre 1000 e 1200 MeV de energia do feixe incidente de prótons. Esta faixa de energia define as condições ótimas de trabalho do acelerador do sistema ADS, quando elementos econômicos como o custo do nêutron são considerados.

## 3.2. Simulação de um ADS do tipo leito de bolas

### 3.2.1. Variação do fluxo de nêutrons e potência

O comportamento da variação do fluxo médio neto, representado com quadrado (eixo vertical esquerdo) e a potência térmica, representada com círculo (eixo vertical direito), no volume no núcleo subcrítico em função do tempo para o período de campanha de 365 dias, são mostrados na Figura 6.



**Figura 6- Comportamento da variação de fluxo e potência em função do tempo para o alvo de urânio em uma campanha do reator de 365 dias.**

Na Figura 6, pode-se observar que o valor do fluxo de nêutrons no núcleo do reator diminui gradualmente até o fim do período de exploração do reator, com picos de fluxo no tempo de queima de 132 e 198 dias. O valor médio de fluxo de nêutrons no período de exploração do reator é  $1,23 \cdot 10^{15}$  n/cm<sup>2</sup>s. Esse valor de fluxo de nêutrons oferece condições muito favoráveis para a transmutação dos rejeitos nucleares, em particular os MA e os isótopos de plutônio [21].

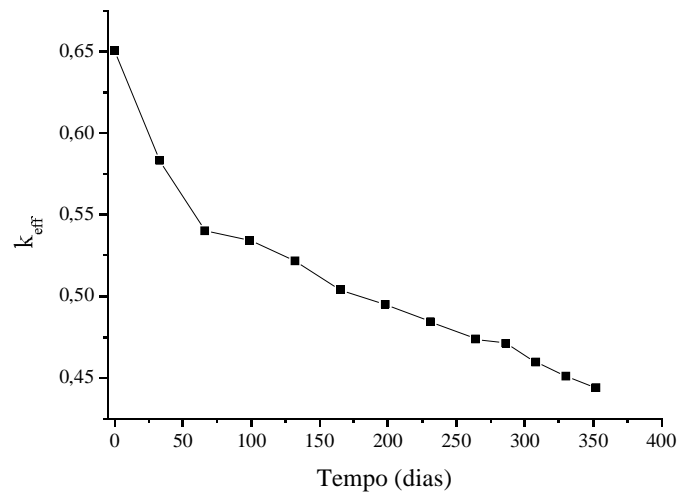
Como também se mostra na Figura 6, a potência diminui até alcançar o valor de 13 MW no fim da campanha, com um valor médio no período analisado de aproximadamente 20 MW.

### 3.2.2. Variação do coeficiente de multiplicação efetiva

O resultado da análise da variação do fator de multiplicidade efetiva para o dispositivo ADS proposto, no período de exploração do reator, é discutido em relação à continuação.

Como se pode observar na Figura 7, o valor do  $k_{\text{eff}}$  diminui suavemente ao longo da campanha do reator. Este comportamento indica que se incrementa a profundidade da queima do combustível, justificado pelo aumento dos produtos de fissão no combustível e pela diminuição contínua dos isótopos físseis, que não pode ser completamente compensada pela

presença de isótopos reprodutores. O valor médio para os 365 dias de exploração do reator é 0,50.



**Figura 7- Comportamento do fator de multiplicação efetivo ( $k_{\text{eff}}$ ) para o dispositivo ADS, durante um ano de exploração do reator.**

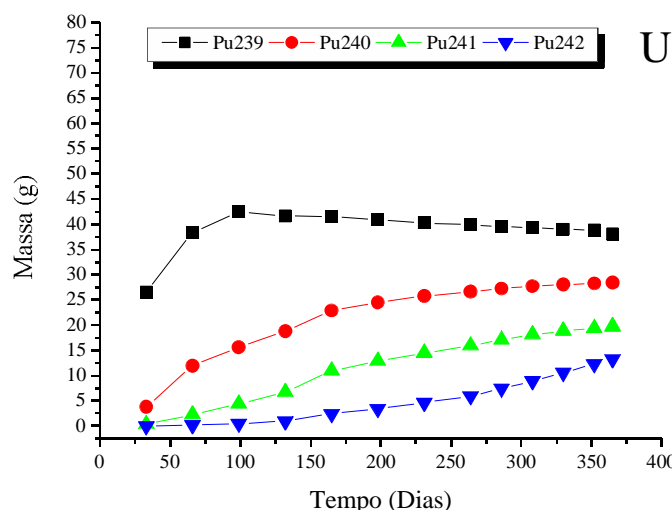
### 3.2.3. Variação da composição isotópica do combustível

Na continuação se apresentam os resultados obtidos no estudo da variação da composição isotópica do material combustível localizado no núcleo do reator, na configuração subcrítica proposta, para os isótopos de plutônio  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  e  $^{239}\text{Pu}$  e os actínídeos menores (MA)  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{241}\text{Am}$  e  $^{237}\text{Np}$ .

#### 3.2.3.1. Evolução temporal dos isótopos de plutônio

Como se pode ver na Figura 8, em geral as massas dos isótopos de plutônio aumentam durante o período de um ano de exploração do reator. No caso do  $^{239}\text{Pu}$ , se observa uma redução da massa a partir do tempo de queima de 99 dias. O decréscimo da massa de  $^{239}\text{Pu}$  é um elemento importante, já que é um dos objetivos perseguidos no uso do ciclo de combustível U + Th em dispositivos ADS [20, 24].

O  $^{239}\text{Pu}$ , com tempo de meia-vida de  $2,41 \cdot 10^4$  anos, é gerado pela transmutação do  $^{238}\text{U}$  por meio de uma desintegração beta [24]. O  $^{240}\text{Pu}$ , com tempo de meia-vida de  $6,56 \cdot 10^3$  anos, é formado devido a reações de captura ( $n, \gamma$ ) no  $^{239}\text{Pu}$ , o que explica a alta produção deste isótopo devido ao declínio do  $^{239}\text{Pu}$ . O  $^{242}\text{Pu}$ , com tempo de meia-vida de  $3,75 \cdot 10^5$  anos, é formado pela reações de captura ( $n, \gamma$ ) do  $^{241}\text{Pu}$ , o qual é dos isótopos de plutônio o de menor radiotoxicidade e menor meia-vida: 14,4 anos. Os isótopos de  $^{240}\text{Pu}$  e  $^{242}\text{Pu}$  apresentam uma probabilidade de fissão alta para nêutrons rápidos.



**Figura 8- Variação da massa dos isótopos de plutônio  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ , e  $^{239}\text{Pu}$  em função do tempo para os três alvos: chumbo, urânio e tungstênio.**

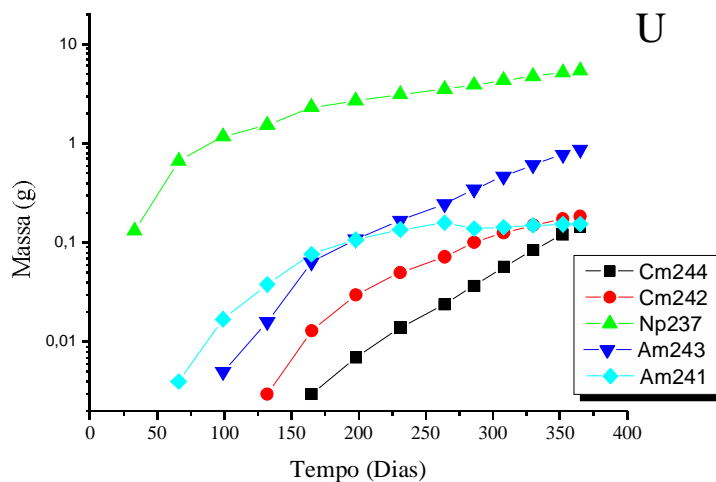
### 3.2.3.2. Evolução temporal dos actínídeos menores

A variação da massa dos isótopos  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{241}\text{Am}$  e  $^{237}\text{Np}$ , que representam os MA no núcleo do reator no período de um ano de exploração do reator, é mostrada na Figura 9.

Os isótopos de cúrio considerados na análise foram o  $^{244}\text{Cm}$  e  $^{242}\text{Cm}$ . O  $^{242}\text{Cm}$  tem um tempo de meia-vida curto de 163 dias, justificando sua baixa produção. Ele, por desintegração alfa, forma o  $^{238}\text{Pu}$ , com tempo de meia-vida de 87,7 anos. Na Figura 9, observa-se um crescimento linear da massa do  $^{244}\text{Cm}$  com o tempo de exploração do reator. A radiotoxicidade do  $^{244}\text{Cm}$  é 14 vezes maior que a radiotoxicidade do  $^{241}\text{Am}$ , e 2,4 vezes maior que do  $^{238}\text{Pu}$ . Como o  $^{244}\text{Cm}$  tem um tempo de vida médio de 18,1 anos, pode-se organizar um armazenamento controlável do  $^{244}\text{Cm}$  uma vez separado do combustível esgotado [25].

O  $^{237}\text{Np}$ , com tempo de meia-vida de  $2,14 \cdot 10^6$  anos, é produzido por reações de captura ( $n, \gamma$ ) do  $^{235}\text{U}$  e reações ( $n, 2n$ ) do  $^{238}\text{U}$ , justificando a maior acumulação de sua massa no núcleo do reator se comparados ao restante MA.

Os isótopos de vida longa de amerício produzidos são o  $^{241}\text{Am}$  e o  $^{243}\text{Am}$ . O  $^{241}\text{Am}$ , com tempo de meia-vida de 432 anos, é produzido por desintegração beta do  $^{241}\text{Pu}$ . O  $^{243}\text{Am}$  é produzido por reação ( $n, \gamma$ ) do  $^{242}\text{Pu}$  e tem um tempo de meia-vida de  $7,37 \cdot 10^3$  anos. A massa do isótopo de  $^{241}\text{Am}$  aumenta até um tempo de queima de aproximadamente 300 dias, e a partir deste tempo permanece constante até o fim do período de exploração do reator. O  $^{241}\text{Am}$  se transmuta por captura de nêutrons e desintegração beta para  $^{242}\text{Cm}$ , o qual aumenta ao longo da campanha. O mesmo comportamento observa-se no isótopo de  $^{243}\text{Am}$ , que se transmuta por reações de captura ( $n, \gamma$ ) em  $^{244}\text{Cm}$  [26].



**Figura 9- Variação da massa do MA  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{241}\text{Am}$  e  $^{237}\text{Np}$  no período de um ano de exploração do reator para os alvos de chumbo, urânio e tungstênio.**

A probabilidade de fissão, para os todos os isótopos de MA considerados na análise, é alta para nêutrons rápidos, portanto é necessário favorecer o espectro de nêutrons rápidos, no núcleo do reator, para conseguir uma redução da massa destes radioisótopos.

## 4. CONCLUSÕES E TRABALHOS FUTUROS

### 4.1. Conclusões

Neste trabalho, se caracterizou o alvo de *spallation* de urânio em função da energia do feixe de prótons incidente e as dimensões do alvo, e se realizou a modelagem probabilística de um dispositivo ADS do tipo leito de bolas visando avaliar as características físicas do dispositivo e suas capacidades de transmutação.

Como resultado da caracterização do alvo de *spallation*, pode-se concluir que a produção de nêutrons por próton incidente aumenta com o incremento das dimensões do alvo de *spallation* (espessura e raio), até que é alcançada a máxima produção de nêutrons por próton incidente ou a chamada região de saturação. Os valores de espessura e raio, para a qual é alcançada a máxima produção de nêutrons, determinam as dimensões ótimas do alvo de *spallation*, as quais foram de 40 cm de espessura por 12 cm de raio para um feixe de incidente de prótons de 1000 MeV.

Com relação aos espectros de nêutrons simulados, concluímos que os nêutrons gerados pela reação de *spallation* têm uma distribuição de energia que varia entre zero e a energia do feixe incidente de prótons, com o pico máximo de fluência de nêutrons de 0,6 MeV.

A produção de nêutrons induzidos por próton incidente varia proporcionalmente com a energia do feixe incidente de prótons, e a determinação do custo de nêutrons revelou que, para energias acima de 1000 MeV, a produção de nêutrons por unidade de energia do feixe incidente de prótons diminui, o que significa em um aumento do custo de nêutrons

Os resultados obtidos na modelagem do dispositivo ADS do tipo leito de bolas, com relação à variação isotópica dos isótopos de plutônio e os actínídeos menores, considerados na análise, revelaram que a acumulação da massa dos isótopos de plutônio e os actínídeos menores aumentam. No caso particular do isótopo  $^{239}\text{Pu}$ , se observa uma diminuição da massa a partir do tempo de queima de 99 dias.

## 4.2. Trabalhos futuros

No desenvolvimento da tecnologia do sistema ADS, considerando todos os aspectos que envolvem seus componentes principais: o acelerador de partículas, o alvo de *spallation* e o núcleo subcrítico, se requerem ainda muitos experimentos e trabalhos de pesquisa. O desafio dos pesquisadores de todo o mundo é que dita tecnologia esteja pronta e disponível nos próximos 20 ou 30 anos.

Com o propósito de avaliar de forma mais precisa as características do sistema ADS que está sendo proposto, fazem-se necessários os seguintes trabalhos futuros:

- Estudo de sistemas ADS de alta densidade de potência, acima de 100 MW, com material alvo de chumbo e tungstênio;
- Estudo de outras geometrias do núcleo subcrítico, composições diferentes de material combustível, material refletor e tipo de refrigerante;
- Estudo dos parâmetros macroscópicos no núcleo subcrítico, a partir do acoplamento com o cálculo termo hidráulico;
- Análise de sensibilidade do código MCNPX 2.6E, com os novos modelos físicos diferentes e as bibliotecas de dados nucleares mais recentes.

## REFERÊNCIAS

- [1] K. Furukawa et al., “The combined system of accelerator molten salt breeder (AMSB) and molten salt converter reactor (MSCR)”, *Japan–US Seminar on Thorium Fuel Reactors, Naora (Japan)*, 1982.
- [2] C. D. Bowman et al, “Nuclear Energy Generation and Waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source”, *Nucl. Instr. and Meth A*, vol. 320, pp. 336–367, 1992.
- [3] C. Rubbia, J. A; Rubio, S. Buorno, F. Carminati, N. Fiétier, J. Galvez, C. Gelès, Y. Kadi, R. Klapisch, P. Mandrillon, J.P. Revol e Ch. Roche, “Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier”, European Organization for Nuclear Research, , CERN/AT/95-44(ET)”, 1995.
- [4] L. Lawrence, E.O. MacMillan, E. M and Alvarez, “Electronuclear Reactor US Patent 933 442”, 1960.
- [5] W. Gibson et al, “Low-energy neutron production by high energy bombardment of thick targets”, Electronuclear Division Annual Progress Report ORNL-3940, pp.110–111, 1965.

- [6] M. Dahlfors, “Sensitivity to Nuclear Data and Neutron Source Type in Calculations of Transmutation Capabilities of the Energy Amplifier Demonstration Facility”, 2003.
- [7] J. S. Hendricks, G. W. Mckinney, M. L. Fensin, M. R. James, R. C. Johns, J. W. Durkee, J. P. Finch, D. B. Pelowitz, L. S. Waters, and F. X. Gallmeier, “MCNPX, Version 26E”, 2007.
- [8] E. Richard, R.E. Prael, H. Lichtenstein, “Use guide to LCS: The LAHET Code System”, *Group X-6. MSB226. Los Alamos National Laboratory*, 1989.
- [9] X-5 M. C. Team, “MCNP — A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5”, vol. 836, 2003.
- [10] H.W. Bertini, “Intranuclear-cascade calculations of secondary nucleon spectra from nucleon-nucleus interactions in energy range 340 to 2900 MeV and comparisons with experiment”, *Phys. Rev*, 188, p.1711, 1969.
- [11] Y. Yariv and Z. Fraenkel, “Intranuclear cascade calculation of high-energy heavy-ion interactions”. *Phys. Rev.*, C 20, pp.2227–2243, 1979.
- [12] S.G. Mashnik., “Implementation of CEM03.01 into MCNP6 and its Verification and Validation Running through MCNP6. CEM03.02 Upgrade”,pp. 1–38, 2006.
- [13] J. Cugnon, “Proton-nucleus interaction at high-energy”, *Nucl. Phys*, vol. A 462, p. 751, 1987.
- [14] R.E. Prael, M.Bozoian, “Adaptation of the Multistage Preequilibrium Model for the Monte Carlo Method, LA-UR-88-3238, Los Alamos National Laboratory”, 1988.
- [15] A.R. Junghans et al.,“Projectile-fragment yields as a probe for the collective enhancement in the nuclear level density”, *Nucl. Phys* vol. A 629, p. 635, 1998.
- [16] L. Dresner, “A Fortran Program for Calculating the Evaporation of Various Particles from Excited Compound Nuclei. ORNL-TM-196, Oak Ridge National Laboratory”, 1962.
- [17] J. Barish et al., “HETFIS High-Energy Nucleon-Meson Transport Code with Fission, ORNL/TM-7882, Oak Ridge National Laboratory”,1981.
- [18] F. Brown, “A General Monte Carlo N-Particle Transport Code,Version 5. Los Alamos National Laboratory Report LA-UR-03, 1987. Los Alamos, NM”, 2003.
- [19] Nuclear Energy Agency, “Accelerator-driven Systems (ADS) and Fast Reactors (FR) in Advanced Nuclear Fuel Cycles. A comparative study”, 2002.
- [20] A. Letourneau, J. Galin, F. Goldenbaum, B. Lott, M. Enke, D. Filges, R. D. Neef, N. Paul, D. Hilscher, U. Jahnke, H. Schaal, G. Sterzenbach, and A. Tietze, “Neutron production in bombardments of thin and thick W, Hg, Pb targets by 0.4, 0.8, 1.2, 1.8 and 2.5 GeV protons”, *Nuclear instrument & methods in physics research section B-Beam interactions with materials and atoms*, v170 p: 299-322, 2000.
- [21] F. Venneri, et al., “Deep Burn Transmutation”, *FDO-E00-N-TRT-X-000132*, 2001.

- [22] D.E. Shropshire, K. A. Williams, W. B. Boore, J. D. Smith, B. W. Dixon, D. Gombert, and E. Schneider“Advanced Fuel Cycle Cost Basis”, INL/EXT-07-12107, 2008.
- [23] C.R:G Hernández, A. M. Oliva, L. G. Fajardo, and J. P. Curbelo, “Uranium-thorium fuel cycle in a very high temperature hybrid system”, International Conference on Mathematics and Computational Methods Applied to Nuclear Science and Engineering (M&C 2011) Rio de Janeiro, RJ, Brazil, May 8-12, 2011, on CD-ROM , 2011[24] IAEA, “Nuclear Fuel Cycle Simulation System (VISTA)”, TECDOC-1535, 2007.
- [25] T. Gerasimov, A.S, Kiselev, G.V, Myrtsyymova, L.A, Zaritskaya, “Conditions of plutonium, americium and curium transmutation in nuclear facilities”, State Scientific Centre of the Russian Federation Institute of Theoretical and Experimental Physics (RF SSC ITEP) 25, B. Cheremushkinskaya, 117259 Moscow, Russian Federation, pp.905–910. Available at: <http://www.oecd-nea.org/>, 2011.
- [26] W. Haeck, E. Malambu, V. P. Sobolev, and H. Aït Abderrahim, “Assessment of americium and curium transmutation in magnesia based targets in different spectral zones of an experimental accelerator driven system”, *Journal of Nuclear Materials*, vol. 352, no. 1–3, pp. 285–290, Jun. 2006.