

DECAIMENTO SECUNDÁRIO DE ESPALHAÇÃO EM REATORES ADS

Marcos Guedes Rodrigues, A. J. Santiago e C.E. da Silva

Departamento de Eletrônica Quântica, Instituto de Física
Universidade do Estado do Rio de Janeiro
Rua São Francisco Xavier, 524
20550-900 Maracanã, Rio de Janeiro, RJ
marcos.tri@hotmail.com, ajsant@uerj.br, claudioelias13@gmail.com

RESUMO

Estudamos o problema da evaporação nuclear no contexto das reações de espalção em reatores nucleares ADS. O cálculo foi desenvolvido com base na teoria de evaporação de Weisskopf e no modelo da gota líquida térmica. A evaporação afeta a 'economia' de nêutrons e o projeto de um reator ADS em vários aspectos. Ela disponibiliza abundante quantidade de nêutrons no meio nuclear, com um largo intervalo de energia. Para uma energia de excitação de 3 MeV/n um núcleo típico evapora cerca de 10% de sua massa na forma de partículas leves (nêutrons em sua maioria).

1. INTRODUÇÃO

A busca por reatores mais seguros, com concepções que minimizem rejeitos radioativos, e com competitividade econômica na geração de energia elétrica, tem resultado em conceitos inovadores [1-2]. Várias concepções atuais de reatores nucleares visam maximizar a segurança e, minimizar os rejeitos gerados. Neste sentido, a associação de um acelerador de partículas a um meio multiplicador de nêutrons, que forma o que é chamado de Reator Híbrido, assim como a utilização do ciclo de combustível Tório-Urânio, parece oferecer interessantes respostas a preocupação relativa à utilização dos Reatores Nucleares.

Com efeito, sistemas híbridos (aceleradores de prótons + reatores subcríticos) poderiam ser utilizados para gerar energia e ser uma solução ao problema dos rejeitos e da segurança uma vez que aceleradores de alta energia se mostram como uma forma eficiente de incinerar 'minor actinides', tais como o Netúnio, Amerício e Cúrio [3]. Por outro lado, é também conhecido o fato de que o ciclo de combustível do Tório pode diminuir consideravelmente a produção de rejeitos transurânicos, e a implementação deste ciclo pode ser feita de maneira mais fácil usando reatores híbridos, devido ao aumento da economia de nêutrons destes sistemas quando comparados com os reatores críticos clássicos. Mais especificamente verificou-se que um sistema físsil subcrítico com uma fonte externa de nêutrons de espalção, além da transmutação traria um ganho líquido de energia (energia total gerada no sistema menos a energia necessária para operar o acelerador), além da possibilidade do sistema ser regenerador, e com a vantagem adicional que ao eliminar-se a fonte externa (desligar o acelerador), a reação em cadeia cessaria (segurança intrínseca).

Esses sistemas híbridos são denominados ADS (Accelerator Driven System). Uma proposta deste tipo de reator foi realizada por Rubbia et al.[4], e testada no CERN. O reator ADS idealizado utiliza um acelerador de prótons de 1 GeV para produzir uma fonte de nêutrons no reator (sub-crítico) por meio de reações do tipo espalação ('spallation'). A reação depende do contínuo bombardeamento do alvo pelos prótons. Isto faz com que os nêutrons da reação de espalação incidam sobre, por exemplo, o Tório, que é fértil, e o transforme em Urânio fissil, que ao fissionar gera outros nêutrons, iniciando assim uma reação em cadeia, embora sub-crítica. A energia liberada é proporcional à intensidade do feixe de prótons do acelerador. Devido a dependência da reação com o feixe, simplesmente desligando o acelerador, as reações cessam, portanto não há a necessidade de barras de controle como nos reatores convencionais. Esta característica traz como consequência a segurança imediata. O reator opera abaixo da criticalidade, eliminando assim a possibilidade de acidentes severos de excursão de potência.

Em última análise, a fissão ocorre como resultado da espalação, isto é, da interação dos nêutrons gerados nas cascatas intranucleares provocadas pelos prótons do acelerador, e nos decaimentos nucleares (evaporação) dos produtos primários da reação. Em reações de íons pesados, o termo espalação ('spallation') se refere às reações nucleares que ocorrem quando partículas ou núcleos leves energéticos (energia cinética da ordem de poucas centenas de MeV por nucleon) interagem com um núcleo alvo relativamente pesado. Nesta faixa de energia, o comprimento de onda de de Broglie da partícula incidente é pequeno o suficiente para permitir que a partícula incidente interaja diretamente com os nucleons dentro do núcleo (interação direta), e então, já não se pode imaginar a reação nuclear como consequência da formação de um núcleo composto. A colisão inicial entre a partícula incidente e o núcleo alvo leva a uma série de reações diretas denominadas cascata intranuclear, que resultam na ejeção de nucleons individuais ou pequenos grupos de nucleons, do núcleo, e na excitação do sistema nuclear. Após a fase da cascata intranuclear, o sistema nuclear se encontra em um estado altamente excitado, e os núcleos excitados retornam ao estado fundamental através da evaporação de nucleons e partículas leves, na sua maioria nêutrons.

Um ponto fundamental na performance e no projeto de um reator ADS, quer seja para incineração de resíduos nucleares [5,6], quer seja para a produção de energia [4,7], é o número de nêutrons produzidos por partícula incidente, e seus espectros de energia. Uma vez que um grande número de nêutrons são produzidos no processo de decaimento secundário do alvo de espalação, neste trabalho usamos o modelo de evaporação nuclear de Weisskopf [8] para calcular o número de nêutrons e os espectros de energia para vários resíduos de espalação e diversas energias de excitação. Este trabalho está organizado da seguinte maneira, na Seção 2, discutimos o mecanismo de reação e revisamos a teoria de evaporação nuclear, na Seção 3, apresentamos nossos principais resultados. Finalizamos com as conclusões na Seção 4.

2. EVAPORAÇÃO NUCLEAR DOS PRODUTOS DE ESPALAÇÃO

O processo da reação de espalação nuclear é entendido como um mecanismo composto de duas fases: cascata intranuclear e a evaporação. A fase da cascata corresponde a in-

teração inicial do projétil com um ou mais núcleons [9]. Neste estágio os núcleons são tratados como partículas relativamente independentes porque a energia incidente é muito maior que a energia de ligação entre os nucleons, e os nucleons interagentes tem grande probabilidade de sair do núcleo carregando uma grande fração da energia incidente. Na segunda fase, de evaporação, os núcleons que não escapam diretamente do núcleo, irão rapidamente dividir sua energia com o restante dos constituintes nucleares (termalização), resultando um sistema nuclear excitado que tenderá a atingir seu estado fundamental através da evaporação de partículas. Em geral, o núcleo excitado resultante tem energia suficiente para evaporar várias partículas. Embora existam diversas teorias para a evaporação nuclear (veja por exemplo [10] e referências), neste trabalho utilizamos a teoria de Weisskopf como se segue.

Para o tratamento da evaporação consideramos o decaimento de um núcleo excitado C em um núcleo filho B (que pode sofrer posterior decaimento) e em uma partícula j . Se chamarmos de N_j o número de partículas do tipo j emitidas, então, $d^2N_j/dEdt$ é a taxa de emissão de partículas do tipo j , com energia cinética E , dentro do intervalo dE . A partir da hipótese de balanço detalhado e usando considerações de espaço de fase, Weisskopf desenvolveu uma teoria estatística para a evaporação e obteve uma expressão para essa taxa de emissão que pode ser escrita como

$$\frac{d^2N_j}{dEdt} = \gamma_j \sigma E_j \frac{\rho(f)}{\rho(i)}, \quad (1)$$

onde σ é a seção de choque da reação inversa, $\rho(i)$ e $\rho(f)$ são as densidades de nível do núcleo inicial e final, respectivamente, e γ_j o fator de degenerescência de spin dado por $\gamma_j = gm_j/\pi^2\hbar^3$, com $g = 2s + 1$ o número de estados de spin ($s = 1/2$ para nêutrons), e m_j a massa da partícula emitida.

De acordo com a modelagem acima, o espectro de energia das partículas emitidas pode ser obtido integrando-se no tempo a Eq.1:

$$\frac{dN_j}{dE} = \int_0^\infty dt \left[\frac{d^2N_j}{dEdt} \right]. \quad (2)$$

A taxa de emissão é obtida por uma integração na energia

$$\frac{dN_j}{dt} = \int_0^\infty dE \left[\frac{d^2N_j}{dEdt} \right], \quad (3)$$

e a multiplicidade (o número de partículas emitidas) por nova integração no tempo

$$N_j = \int_0^\infty dt \left[\frac{dN_j}{dt} \right]. \quad (4)$$

É conveniente caracterizar o estado instantâneo de excitação do núcleo pela temperatura T que cairá durante a desexcitação de T_{max} a zero. Desta forma, as integrações no tempo acima citadas podem ser realizadas através da mudança de variável

$$\int_0^\infty dt = \int_0^\infty dT \left[\frac{dt}{dT} \right].$$

A temperatura do núcleo residual é obtida pela energia de excitação definida como

$$E_j^* = E_i^* - B_j - V_j - E_j, \quad (5)$$

sendo E_i^* a energia de excitação do núcleo antes de evaporar a partícula j , B_j a energia de separação, V_j a barreira coulombiana e E_j a energia cinética da partícula evaporada, a qual é obtida de uma distribuição de Maxwell-Boltzmann tomada sobre a temperatura do núcleo, a qual pode ser obtida através do modelo da gota líquida térmica (TLDM) [11]

Como não estamos preocupados com a evolução temporal do processo de desexcitação nuclear, podemos tomar a taxa relativa de emissão P entre duas partículas 1 e 2 como [12]

$$\frac{P_2}{P_1} = \frac{\gamma_2 T_2^2}{\gamma_1 T_1^2} e^{[S_2 - S_1]}, \quad (6)$$

onde $S_{1,(2)}$ e $T_{1,(2)}$ denotam, respectivamente, os valores máximos que a entropia e a temperatura do núcleo residual podem assumir, após evaporar a partícula 1(2). Na obtenção da Eq.6 a relação entre a entropia e a densidade de nível do núcleo inicial e final $\rho_{i,f} = \exp[S_{i,f}]$ foi usada.

Finalmente, as energias de ligação e excitação podem ser calculadas com o auxílio do modelo da gota líquida térmica [13]

$$E^*(T) = \frac{T^2}{\varepsilon_0} A + \beta_0 A^{2/3} \left\{ \left[\frac{T_c^2 - T^2}{T_c^2 + T^2} \right]^{5/4} \cdot \left[1 + \frac{5 \left(\frac{T}{T_c} \right)^2}{1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^4} \right] - 1 \right\}, \quad (7)$$

e a entropia

$$S = \frac{2T}{\varepsilon_0} A + 5\beta_0 A^{2/3} \left\{ \left[\frac{T_c^2 - T^2}{T_c^2 + T^2} \right]^{1/4} \cdot \left[\frac{T}{T_c^2 + T^2} \right] \right\}. \quad (8)$$

Nesta duas últimas expressões, $\varepsilon_0 = 16\text{MeV}$, $\beta_0 = 18\text{MeV}$ e a temperatura crítica $T_c = 16\text{MeV}$ são parâmetros do TLDM.

2.1. A Simulação do Decaimento Nuclear

Com o auxílio das Eqs.7 e 8 as probabilidades relativas de evaporação podem ser calculadas via Eq.6. Assim, normalizamos as probabilidades de evaporação das demais partículas em relação a probabilidade P_1 de emissão de neutron. Para determinar o tipo de partícula que vai ser emitida, se será neutron, próton, alfa, dêuteron, trítio ou hélio-3, realizamos um sorteio aleatório, obedecendo à distribuição das probabilidades relativas de emissão de cada tipo de partícula. A probabilidade de emissão de 'clusters' pesados não foi levada em conta, uma vez que seu valor é desprezível frente à das partículas leves [12].

Mais especificamente, para um dado produto de espalação de massa A , carga Z e temperatura T , calculamos a probabilidade relativa P_i/P_1 de emissão para cada tipo de partícula ($i = 1, 2, \dots, 6$). Estes valores foram colocados sequencialmente ao longo de um eixo, e escolhemos aleatoriamente um número entre 0 e o comprimento total obtido pela justaposição de todos os valores P_i/P_1 . O segmento que contiver este número sorteado, determinará o tipo de partícula emitida.

Após a evaporação, admitimos que o sistema residual entre em equilíbrio térmico, de modo que as quantidades físicas termodinâmicas (entropia, temperatura, etc...) que caracterizam o núcleo residual, podem ser recalculadas e nova partícula é sorteada para ser evaporada. Todo o processo se repete, até que o núcleo remanescente atinja o nível fundamental e não possa mais evaporar.

Finalmente, um procedimento de Monte Carlo é utilizado e todas as quantidades médias relevantes podem ser determinadas. O cálculo é interrompido quando as quantidades calculadas não sofrem variações sensíveis contra um aumento do número de histórias.

3. RESULTADOS E DISCUSSÕES

Utilizamos o procedimento descrito acima para investigar o rendimento e o comportamento dos espectros de energia dos nêutrons em produtos de processos de espalação. Para certo núcleo e um dado valor da energia de excitação, determinamos o número de partículas evaporadas e seus espectros de energia. Para os núcleos estudados, U , Th , Pb e Au , nota-se que para uma energia de excitação de alguns poucos MeVs por nucleon, cada núcleo pode ter até 20% de sua massa inicial evaporada na forma de partículas leves, principalmente neutrons. Na Fig.1 apresentamos um resultado típico para a distribuição de massa do processo. Observa-se um pronunciado pico na região de partículas leves $A = 1$, sendo que deste, cerca de 70% são neutrons. O pico estreito na região de $A = 200$ corresponde aos núcleos frios resultantes. A energia de excitação pode ser obtida através de um cálculo de cascata para a fase de espalação. Neste trabalho, por simplicidade, ela será considerada como um parâmetro livre do modelo, embora os valores tomados sejam consistentes com a observação experimental de que, mesmo em reações relativísticas, apenas um pequeno momentum longitudinal é transferido para o núcleo alvo [14]. Ao valor de $3,0 MeV$ de energia de excitação corresponde uma temperatura de cerca de $5,0 MeV$.

A copiosa produção de nêutrons mostra claramente a forte contribuição da evaporação nuclear na 'economia' de nêutrons em reatores do tipo ADS. Com efeito, nêutrons evaporados podem ser absorvidos ou provocar reações secundárias dependendo da energia com que são emitidos. A temperatura é o fator determinante no espectro de energia dos neutrons, uma vez que os mesmos não sofrerão efeito da repulsão coulombiana após a evaporação. Na prática, a energia cinética da partícula evaporada é sorteada sobre uma distribuição de Maxwell-Boltzmann em cima da temperatura do núcleo. A direção em que será emitida é aleatória. A Fig.2 ilustra o espectro de energia de nêutrons evaporados pelo U . Podemos observar que o espectro tem pico na região de bai-

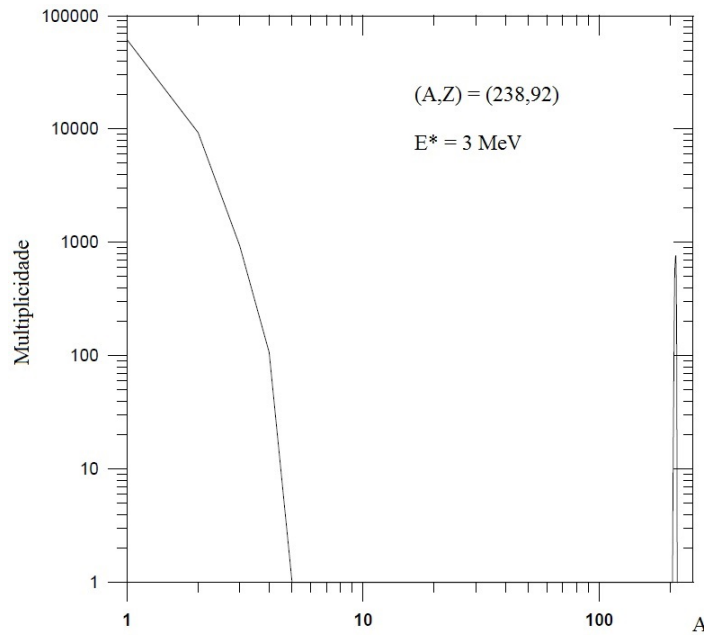


Figura 1: Distribuição de massa em reações de evaporação do U .

xas energias, mas neutrons altamente energicos tem probabilidade não nula de serem emitidos, e os neutrons são evaporados em um largo intervalo de energia.

As partículas secundárias de alta energia (> 20 MeV) podem provocar outras reações de espalação, especialmente no caso de alvos espessos. Já as de energias mais baixas podem desencadear a produção de nêutrons através de reações (n, xn) de baixa energia. É importante notar que Tório e Urânio empobrecido, podem ser fissionados por nêutrons de baixa energia (1 MeV a 20 MeV), intervalo de energia em que a maioria das partículas foram evaporadas. Ainda, para núcleos mais pesados, a evaporação pode competir com fissões de alta energia em núcleos altamente excitados.

Os espectros de evaporação de nêutrons, tando de massa quanto de energia, não sofrem alterações qualitativas para os núcleos estudados e não estão representados nas figuras. Contudo, quando aumentamos a massa do núcleo que evapora, mais partículas são evaporadas. O efeito é mais pronunciado sobre partículas carregadas que teem seu espectro de energia deslocado para regiões de energias mais altas devido à expansão coulombiana. Tal como esperados pela Eq.1, uma energia de excitação maior (menor) leva a um aumento (diminuição) no número de partículas evaporadas, sem contudo, alterar qualitativamente os resultados das Figs. 1 e 2. Os resultados foram obtidos sobre uma média de 3000 corridas de Monte Carlo.

Finalmente, gostaríamos de chamar a atenção do leitor para o fato de que nossa simulação envolveu algumas simplificações, em particular, somente partículas leves puderam ser evaporadas. Núcleos pesados e altamente excitados tem seção de choque não nula contra a emissão de núcleos leves. Também não levamos em conta o recuo do núcleo pai devido a evaporação. No caso de emissão de partículas leves (massa muito menor que a do emissor) isto é uma boa aproximação, mas o recuo tende a espalhar o espectro

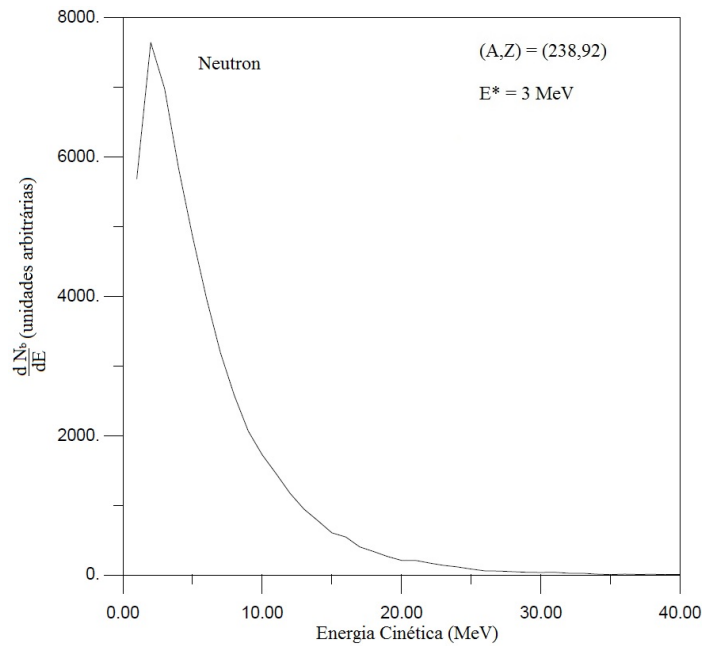


Figura 2: Espectro de energia de nêutrons evaporados pelo U .

de velocidades, e portanto, os espectros de energias. O estudo detalhado destas quantidades pode fornecer importantes subsídios aos estudos econômicos e de segurança envolvendo reatores híbridos [15].

4. CONCLUSÃO

Em suma, estudamos o problema da evaporação nuclear no contexto das reações de espalação em reatores ADS. Para a energia de excitação considerada, um núcleo típico evapora cerca de 10% de sua massa. Todos os núcleos estudados evaporam predominantemente nêutrons. Esses nêutrons são evaporados num largo intervalo de energia. Embora o pico esteja situado na região de baixas energias, indicando a maior probabilidade, nêutrons altamente energéticos também são evaporados. A evaporação afeta a 'economia' de nêutrons e o projeto de um reator ADS em vários aspectos: Primeiro, ela disponibiliza abundante quantidade de nêutrons no meio nuclear. Nêutrons de baixas energias tem grande probabilidade de absorção, enquanto que neutrons altamente energéticos tem grande seção de choque de espalhamento para reações secundárias. Segundo, núcleos físseis podem evaporar partículas ao invés de fissionar, enquanto que núcleos férteis podem tornar-se físseis pela absorção. O estudo detalhado desta dinâmica pode fornecer importantes parâmetros para o projeto do reator, como por exemplo, limites para a energia de excitação e, portanto, sobre a energia do feixe incidente, bem como limites para os núcleos alvos de espalação.

AGRADECIMENTOS

Nós gostaríamos de agradecer ao Prof. Fernando Carvalho Silva/PEN-COPPE-UFRJ pelo incentivo, comentários e discussões. Reconhecemos também o apoio financeiro

da FAPERJ, e a bolsa PIBIC/UERJ e FAPERJ de (MGR).

REFERÊNCIAS

1. E.L. Glueckler, 'U.S. Advanced liquid metal reactor (ALMR)', *Prog. Nucl. En.*, **Vol. 31**, pp. 43-61, (1997).
2. B.S. Triplett, E.P. Loewen, B.J. Dooies, 'PRISM: A Competitive Small Modular Sodium-Cooled Reactor', *Nuclear Tecnology*, **v. 178**, pp. 186-200, (2012).
3. "Status of minor actinide fuel development", International Atomic Energy Agency, IAEA nuclear energy series, no. NF-T-4.6: STI/PUB/1415 ISBN 978-92-0-106909-2, Vienna (2009).
4. C. Rubbia, J.A. Rubio, 'A Tentative Programme Towards a Full Scalle Energy Amplifier', *European Organization for Nuclear Research Report*, (CERN/LHC/96-II(EET), (1996).
C. Rubia *et al.*, 'Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier, *European Organization for Nuclear Research Report*, (CERN/AT/95 - 44(ET), (1995).
5. M. Salvatores *et al.*, 'Long-Lived Radioactive waste transmutation and the role of accelerator driven (hybrid) systems', *Nucl. Inst. Meth. A*, **414**, pp. 5-10, (1997).
6. T. Takizuka *et al.*, "Studies on accelerator driven transmutation systems", *Proceeding of the Fifth International Infomation Exchange Mmeeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, page 383, EUR-18898 EN, OECD/NEA, (1998).
7. C.D. Bowman *et. al.*, 'Nuclear Energy Generation and Waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source', *Nucl. Instr. and Meth. A*, **320**, pp. 336-367, (1992).
8. V. Weisskopf, 'Statistics and nuclear reactions', *Phys. Rev.*, **52**, pp. 295-303, (1937).
9. S.T. Mongelli *et al.*, 'Spallation Physics and the ADS Target Design', *Brazilian Journal of Physics*, **35**, pp. 894-897, (2005).
10. T. Ericson, 'The statistical model and nuclear level densities', *Advan. Phys.*, **9**, pp. 425-511, (1960).
11. J.P. Bondorf *et al.*, 'Statistical multifragmentation of nuclei: (I). Formulation of the model', *Nucl. Phys. A*, **443**, pp. 321-347, (1985).

12. A.J. Santiago, K.C. Chung, 'Energy spectra of nuclear fragmentation in the percolation description', *Jour. Phys. G: Nuclei and Particles*, **16**, pp. 1483-1492, (1990).
13. A.J. Santiago, 'Mass Distribution of Nuclear Fragmentation by a Percolation-Evaporation Picture', *Acta Physica Polonica*, **B23**, pp. 875-884, (1992).
14. S. Andriamonje *et al.*, 'Experimental determination of the energy generated in nuclear cascades by a high energy beam', *Physics Letters*, **B348**, pp. 697-709, (1995).
15. W. Gudowski *et al.*, 'System and safety studies of accelerator driven transmutation', *Annual Report*, Department of Nuclear and Reactor Physics Royal Institute of Technology, ISSN 1402-3091, SKB Rapport R-02-25, Stockholm (2001).