



ANÁLISE DA INFLUÊNCIA DE ACTINÍDEOS MAIORES E MENORES EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES IRRADIADOS

Jean Salomé^{1,2}, Carlos Velasquez^{1,2}, Fabiano Cardoso^{1,2}, Cláudia Pereira^{1,2}

¹Departamento de Engenharia Nuclear – Universidade Federal de Minas Gerais
Av. Antônio Carlos, 6627, Pampulha, Belo Horizonte, MG, CEP 31270-901, Brasil

²Instituto Nacional de Ciências e Tecnologia de Reatores Nucleares Inovadores/CNPq, Brazil

Palavras-Chave: Actinídeos Maiores e Menores, Combustível Nuclear, Código Origen 2.1.

RESUMO

Com a proposta de novos combustíveis, provenientes de reprocessamento e reciclagem de combustíveis queimados, em reatores de quarta-geração ou em sistemas híbridos, a composição final destes muda sensivelmente. O objetivo deste trabalho é, analisando dois sistemas que usam combustíveis reprocessados, VHTR (reator a gás de temperatura muito alta) e ADS (sistema híbrido de acelerador subcrítico), verificar o comportamento destes combustíveis após a queima e compará-los com o comportamento de um PWR (reator de água pressurizada) padrão. Serão acompanhados os actinídeos maiores (urânio e plutônio) e os actinídeos menores (neptúnio, amerício e cúrio) com uma abordagem geral sobre a contribuição dos produtos de fissão. Os parâmetros analisados são a radioatividade e o calor de decaimento. Para tal estudo foi usado o código ORIGEN 2.1. Espera-se contribuir para as possíveis mudanças nos projetos de piscinas ou repositórios secos temporários e nos repositórios permanentes, em função da variação da composição final desses combustíveis e de seus respectivos comportamentos após sua retirada do reator ou sistema de irradiação.

1. INTRODUÇÃO

O funcionamento de um reator nuclear produz considerável quantidade de combustível irradiado que, se não for reprocessado, deverá ser estocado em algum tipo de repositório, seja esse temporário ou permanente. A composição do material irradiado dependerá basicamente do ciclo de combustível no qual o reator irá operar, e do tipo de reator ou sistema no qual o mesmo será inserido. Após acontecerem os processos de fissão, tem-se como consequência a geração de produtos de ativação, produtos de fissão e actinídeos. Do ponto de vista da análise para dimensionamento de repositórios, os produtos de fissão e os actinídeos são mais relevantes, principalmente porque estes materiais são responsáveis pelos efeitos mais deletérios do combustível irradiado, como emissão de radioatividade e calor, além dos efeitos de toxicidade, seja por inalação ou ingestão. O código computacional Origen 2.1 foi utilizado para se obter dados relevantes para a análise dos efeitos dos actinídeos maiores e menores sobre o combustível irradiado. Entendem-se como actinídeos maiores os isótopos do urânio (U) e do plutônio (Pu) e como actinídeos menores os isótopos do neptúnio (Np), amerício (Am) e cúrio (Cm). Outros isótopos como berquélio (Bk), califórnio (Cf), einstênio (Es) e fêrmio (Fm), embora sejam considerados como actinídeos menores, por sua presença apenas na ordem de traços no combustível irradiado, serão desconsiderados.



2. METODOLOGIA

A queima de combustível (*burnup*) foi simulada para três reatores distintos: PWR, avaliado através do código ORIGEN 2.1 [1]; VHTR simulado no código SCALE 6.0, via módulo TRITON 6 [2]; e ADS calculado pelo código MONTEBURNS (MCNP/ORIGEN 2.1) [3]. Considerando o material após o descarregamento do reator, parâmetros como a evolução da composição, a radioatividade e o calor de decaimento foram avaliados através do código ORIGEN 2.1 até 10^7 anos. Algumas características relevantes dos combustíveis e condições de queima são descritos a seguir. Mais detalhes podem ser obtidos nas respectivas referências.

2.1. PWR

O combustível adotado para o reator PWR foi UO_2 enriquecido a 3,2%, submetido a um burnup de 33000 MWd/tHM durante três anos e de energia térmica de 3800 MWt. Uma descrição mais completa deste reator PWR pode ser encontrada no relatório ORNL/TM-6051 [4].

2.2. VHTR

Para o sistema VHTR foi utilizado um combustível reprocessado com a adição de Th. Inicialmente, considerou-se um combustível padrão para PWR que foi submetido a um burnup de 33000 MWd/tHM durante três anos e, após a retirada do reator, permaneceu em piscina por cinco anos. No reprocessamento do combustível, utilizou-se o método UREX+. Através desse método é possível recuperar uma fração de 99,95% de U, 95% de Tc, 6% de Cs, 99% de Sr, 99,5% de Pu, 71% de Np, 98% de Am e 79% of Cm; ao combustível reprocessado foi adicionado Th até que se obteve um percentual de 15% de material fissil na composição do combustível utilizado no reator VHTR. Os cálculos foram feitos utilizando o código SCALE 6.0, através do módulo TRITON 6. Um burnup de 97800 MWd/tHM e uma potência térmica de 600 MWt foram considerados durante três anos [5].

2.3. ADS

Para o sistema ADS também foi utilizado um combustível reprocessado com adição de Th, no entanto, a técnica de reprocessamento adota foi o método GANEX. Para este processo, aproximadamente 99,5% dos actínídeos (neptúnio, plutônio, amerício e cúrio) são extraídos através de solventes e, ao final de todo o processo, menos de 0,01% de urânio permanece entre os resíduos [6]. O combustível reprocessado foi enriquecido com Th até obter 12% de material fissil. O burnup utilizado foi 237600 MWd/tHM e a potência térmica de 515 MWt durante 20 anos.

3. RESULTADOS

Os resultados obtidos através dos cálculos realizados pelo código ORIGEN 2.1 são apresentados nos subitens que se seguem. A abordagem adotada é comparar inicialmente os resultados gerais dos parâmetros investigados para os combustíveis oriundos dos três modelos de reatores estudados. Na sequência é feita uma análise independente de cada modelo, levando em consideração a influência geral dos actínídeos e produtos de fissão sobre os valores totais. Nesse particular são descritas as influências separadas dos actínídeos maiores e menores sobre cada um dos parâmetros. Finalmente, é feita uma análise mais detalhada, onde se considera a influência dos isótopos mais relevantes para cada parâmetro.



Há de destacar que as contribuições do elemento Th para cada parâmetro calculado têm sido consideradas entre os efeitos dos actínídeos menores no escopo desse trabalho.

3.1 Radioatividade

Na Fig. 1 é apresentada a radioatividade emitida pelos três combustíveis até 10^7 anos. Percebe-se que o combustível do reator PWR emite a menor radioatividade. Em geral, a radioatividade emitida pelos reatores ADS e VHTR, apresentam valores quase similares. No entanto, excetuando-se o período de tempo compreendido entre $5,0 \times 10^4$ e $7,5 \times 10^5$ anos, o combustível do reator ADS sempre emite menos radioatividade que o material do reator VHTR.

A Fig. 2 mostra que para o reator PWR os produtos de fissão dominam a emissão de radioatividade até $2,0 \times 10^2$ anos. Após esse período, os actínídeos são preponderantes até 10^7 anos. Os actínídeos maiores dominam a emissão de radiação até $5,0 \times 10^5$ anos. A partir desse tempo, as emissões de actínídeos maiores e menores se igualam. A Fig. 3 mostra que os isótopos do plutônio dominam as emissões. Destacam-se os isótopos ^{241}Pu e ^{238}Pu . De acordo com essa figura os isótopos do amerício, especialmente ^{241}Am , também colaboram significativamente com a emissão de radiação.

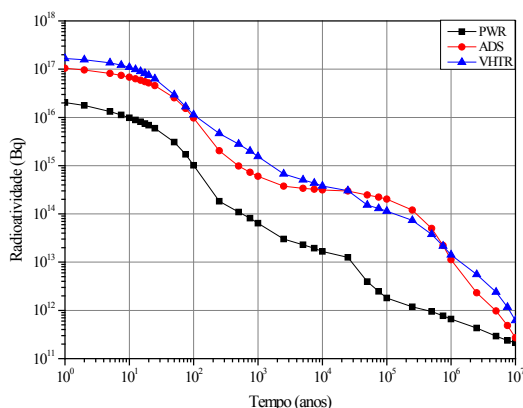


Fig. 1. Radioatividade total do combustível para cada reator.

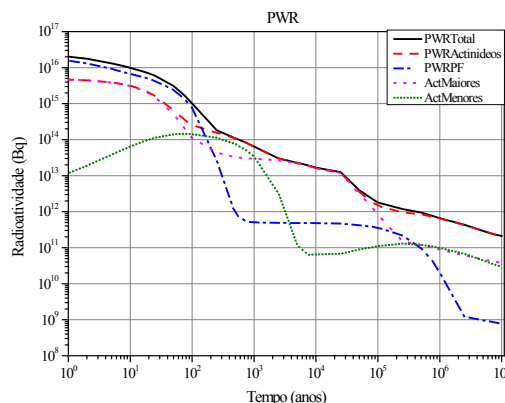


Fig. 2. Radioatividade total do combustível do reator PWR.

A Fig. 4 mostra que para o reator VHTR a radiação dos actínídeos é sempre superior àquela oriunda dos produtos de fissão. Excetuando-se o período entre 10^2 e 10^3 anos, os actínídeos maiores têm uma contribuição maior na radiação que os actínídeos menores, desde o instante da descarga até $5,0 \times 10^5$ anos. A Fig. 5 indica que os isótopos de plutônio também têm uma prevalência na emissão de radiação de um combustível irradiado em um reator VHTR. Novamente, os isótopos ^{241}Pu e ^{238}Pu , merecem destaque. Mas, para o reator VHTR, há uma forte influência de dois isótopos de actínídeos menores, ^{244}Cm e ^{241}Am , que participam com uma contribuição significativa na radioatividade do material, desde a retirada do reator até o instante 10^3 anos.

Conforme mostra a Fig. 6, os produtos de fissão têm um peso majoritário sobre a radioatividade até aproximadamente 10^2 anos. Após esse período, os actínídeos passam a ser dominantes sobre a radioatividade. Os actínídeos maiores contribuem com uma parcela ligeiramente superior à parcela relativa aos actínídeos menores. Essa diferença se mantém até 10^5 anos; quando, segundo os cálculos, as contribuições de ambos os grupos se tornam praticamente iguais. Através da Fig. 7 é notável que os



isótopos do Pu, Cm e Am, são mais decisivos para o cálculo da radioatividade. Merece destaque, segundo a ordem, os isótopos ^{241}Pu , ^{244}Cm , ^{242}Cm e ^{241}Am .

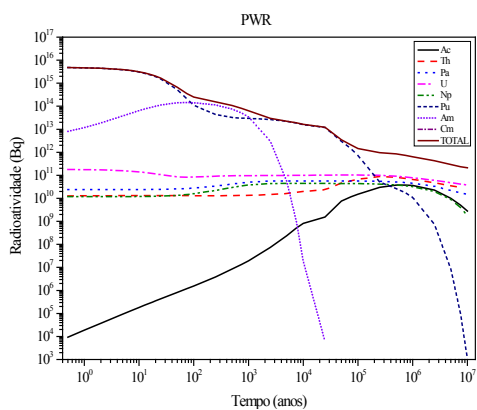


Fig. 3. Radioatividade por elementos do combustível do reator PWR.

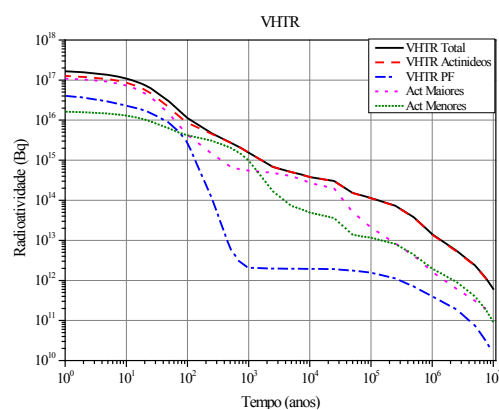


Fig. 4. Radioatividade total do combustível do reator VHTR.

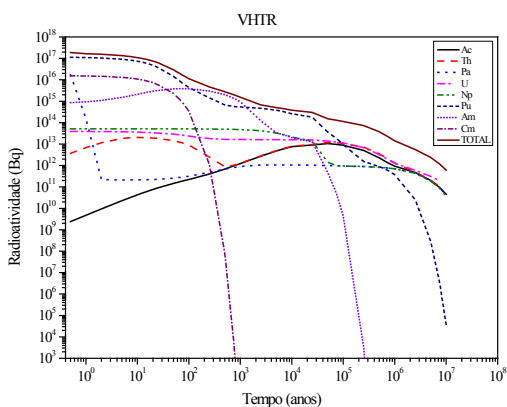


Fig. 5. Radioatividade por elementos do combustível do reator VHTR.

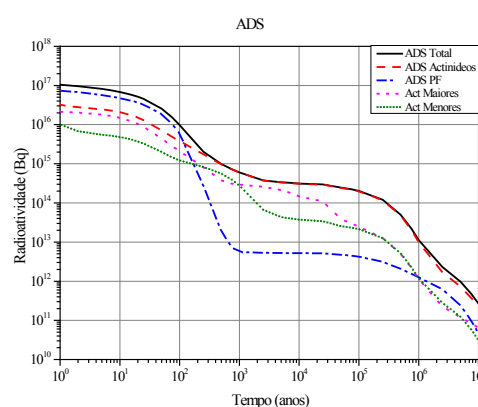


Fig. 6. Radioatividade total do combustível do reator ADS.

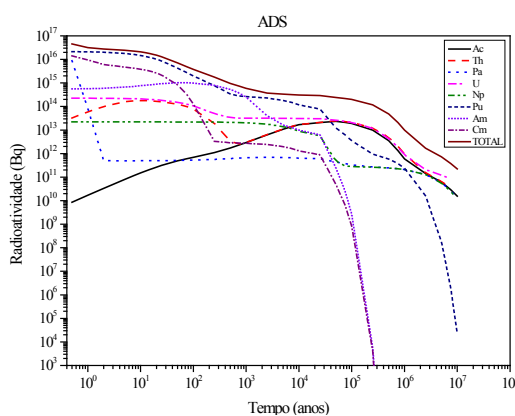


Fig. 7. Radioatividade por elementos do combustível do reator ADS.



3.2. Calor de Decaimento

A Fig. 3.8 mostra que o calor de decaimento para o combustível oriundo do reator PWR é menor quando comparado ao calor liberado pelos combustíveis irradiados nos outros reatores. A relação de valores entre os calores de decaimento dos reatores ADS e VHTR repete o padrão observado para os outros parâmetros previamente estudados. Os valores do calor de decaimento para o combustível do reator ADS são ligeiramente menores que os valores para o combustível proveniente do reator VHTR. A exceção a essa observação se localiza no intervalo de tempo entre $3,0 \times 10^4$ e 10^6 anos.

De acordo com a Fig. 3.9 nota-se que os produtos de fissão dominam os valores do calor de decaimento do combustível irradiado no reator PWR desde a extração do material até o instante 10^2 anos. Após esse intervalo de tempo, os actínideos se tornam preponderantes na liberação de calor. Quando se avalia a participação de cada um dos grupos de actínideos, fica claro o predomínio dos actínideos maiores.

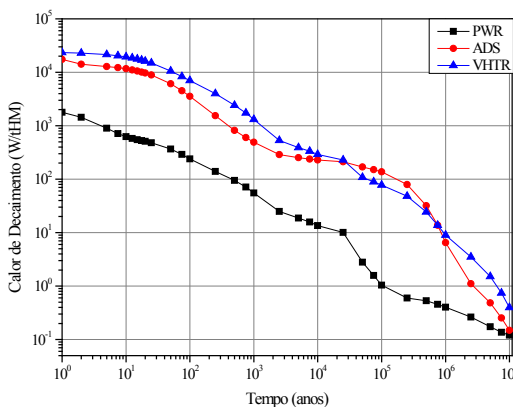


Fig. 8. Calor de decaimento total do combustível para cada reator.

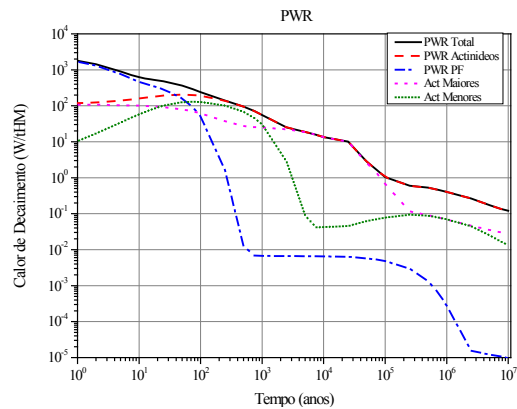


Fig. 9. Calor de decaimento total do combustível do reator PWR.

Na Fig. 10 é mostrado que os isótopos do elemento plutônio predominam na emissão de calor do combustível oriundo do reator PWR até aproximadamente $5,0 \times 10^5$ anos. As contribuições mais relevantes são devido aos isótopos ^{238}Pu e ^{240}Pu . Destaca-se, ainda, a contribuição do isótopo ^{241}Am . Após esse tempo, ocorre a influência de uma série de outros elementos, como o urânio, tório, neptúnio e actínio. Nesse intervalo, destacam-se os isótopos ^{236}U , ^{238}U , ^{229}Th , ^{230}Th , ^{237}Np e ^{225}Ac . Na Fig. 3.11 percebe-se que os actínideos predominam na emissão de calor do combustível extraído do reator VHTR. Especificamente, há uma prevalência dos actínideos menores. A exceção a esse fato ocorre no intervalo de tempo entre 10^3 e 10^5 anos, quando os actínideos maiores se sobressaem.

De acordo com a Fig. 12, e como mencionado anteriormente, os actínideos menores exercem uma forte contribuição sobre o calor de decaimento do combustível retirado do reator VHTR. Até 10^3 anos, os elementos Cm e Am participam decisivamente nos valores desse parâmetro. Nesse mesmo intervalo, há ainda uma significativa parcela de calor emitido por isótopos de plutônio. Destacam-se os isótopos ^{244}Cm , ^{241}Am , ^{238}Pu e ^{240}Pu . Após 10^5 anos, vários elementos participam da emissão de calor de uma forma mais significativa, em geral, a maioria deles são actínideos menores. Devem ser citados os isótopos ^{225}Ac , ^{229}Th , ^{230}Th , ^{233}Th , ^{233}U e ^{237}Np . Analisando a Fig. 13, é perceptível que os actínideos dominam a emissão de calor do combustível oriundo do reator ADS. No caso desse reator, os actínideos maiores são os mais representativos. Como ocorrido para o reator VHTR, apenas entre 10^3 e 10^5 anos, é que os actínideos menores se tornam prevaletentes.

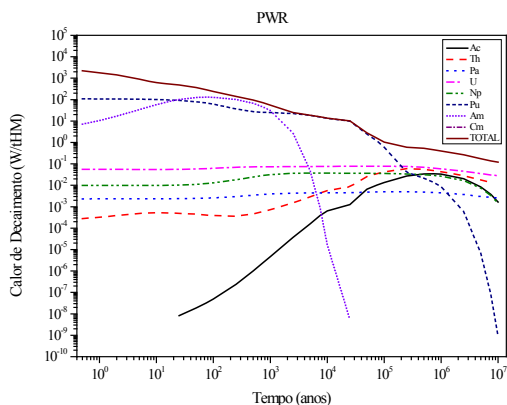


Fig. 10. Calor de decaimento por elementos do combustível do reator PWR.

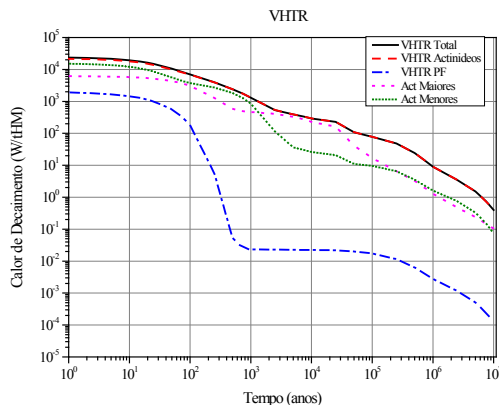


Fig. 11. Calor de decaimento total do combustível do reator VHTR.

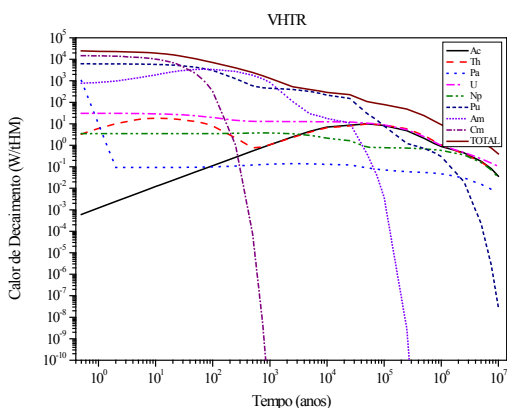


Fig. 12. Calor de decaimento por elementos do combustível do reator VHTR.

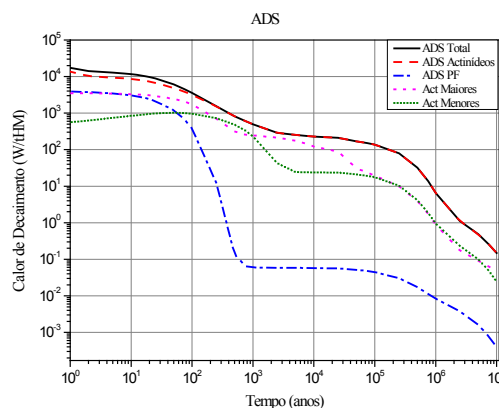


Fig. 13. Calor de decaimento total do combustível do reator ADS.

A Fig. 14 mostra que vários elementos contribuem significativamente para o calor de decaimento do combustível irradiado no reator ADS. Até 10^5 anos destacam-se os elementos Cm, Pu e Am. Devem ser citados os isótopos ^{242}Cm , ^{244}Cm , ^{241}Am , ^{238}Pu e ^{240}Pu . Após esse período, destacam-se os elementos tório, actínio e alguns isótopos do urânio. São relevantes, ^{229}Th , ^{230}Th , ^{225}Ac , ^{233}U e ^{234}U .

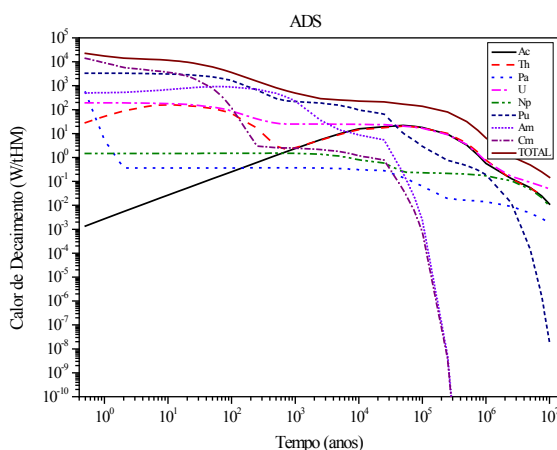


Fig. 14. Calor de decaimento - combustível do reator ADS.



4. CONCLUSÃO

De acordo com os resultados obtidos através dos cálculos realizados pelo código ORIGEN 2.1, pode-se concluir que os actínídeos têm um papel preponderante sobre os valores dos parâmetros investigados nesta pesquisa, especialmente quando são comparados aos produtos de fissão.

Analisando os actínídeos por grupos, observa-se que os actínídeos maiores, sobretudo os isótopos do Pu, têm uma contribuição mais significativa sobre os parâmetros estudados do que os actínídeos menores. Essa influência é mais pronunciada para intervalos de tempo menores que 10^5 anos. Entretanto, isso não significa que a ação dos actínídeos menores deve ser negligenciada; pelo contrário, elementos como amerício, neptúnio, cúrio e tório são responsáveis por parcelas importantes nos valores dos parâmetros que foram investigados.

Outra conclusão importante trata da comparação entre os valores relativos a cada um dos combustíveis. De acordo com os resultados obtidos por essa pesquisa, os parâmetros relativos ao combustível oriundo do reator PWR sempre apresentaram valores menores que os mesmos parâmetros para os demais combustíveis. O combustível do reator ADS apresentou um comportamento próximo ao comportamento do combustível do reator VHTR, no entanto, embora mantivesse certa similaridade, os valores para o reator ADS, em geral, foram menores que os valores relativos ao reator VHTR. Pode-se concluir que essa pesquisa atingiu bons resultados, no entanto, novos trabalhos que versem sobre esse tema podem enriquecer o conhecimento sobre o mesmo.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem as agências brasileiras de fomento à pesquisa, CNPq, CAPES e FAPEMIG, pelo suporte financeiro.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] S. B. Ludwig, “Origen 2, version 2.1 (August 1, 1991). Release notes (revised May 1999).
- [2] M. D. DeHart, “Triton: A two-dimensional transport and depletion module for characterization of spent nuclear fuel”, ORNL/TM-2005/36, Vol. I, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, USA (2009).
- [3] H. R. Trellue and D. I. Poston, “User’s manual, version 2.0 for monteburns, version 5B”, LA-UR-4999, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, USA (1999).
- [4] A. G. Croff *et al.*, “Revised uranium-plutonium cycle pwr and bwr models for the origen computer code”, ORNL/TM-6051, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, USA (1978).
- [5] F. Cardoso, “Avaliação neutrônica da inserção de transurânicos em reatores nucleares tipo vhtr”, Tese do Curso de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares, Departamento de Engenharia Nuclear – Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, Brasil (2012).
- [6] G. P. Barros *et al.*, “Depletion evaluation of an ads using reprocessed fuel”, International Journal of Hydrogen Energy, Elsevier, Vol. 40, N° 44, pp. 15148-15152 (2015).