



ESTUDO NEUTRÔNICO DO USO DE VENENO QUEIMÁVEL EM REATORES CANDU AVANÇADOS

**Vinícius C. S. Costa, Michel C. B. de Almeida, Clarysson A. M. da Silva,
Claubia Pereira**

¹Departamento de Engenharia Nuclear
Universidade Federal de Minas Gerais
Av. Antônio Carlos, 6627, Campus UFMG PCA 01 – Anexo Engenharia, Pampulha,
31270-901 Belo Horizonte, MG
vinicius.csousacosta@gmail.com

Palavras-Chave: CANFLEX-ACR, veneno queimável, criticalidade, CVR.

RESUMO

O ACR (*Advanced CANDU Reactor*) é um conceito de um reator desenvolvido pela AECL (*Atomic Energy of Canada Limited*) que é derivado da já bem estabelecida linha de reatores CANDU (*Canadian Deuterium Uranium*). A principal diferença deste sistema avançado é o uso de água leve (H_2O) como refrigerante e combustível levemente enriquecido. O ACR-1000 atualmente é um dos novos projetos e utiliza o projeto de combustível avançado CANFLEX-ACR (*CANDU FLEXible*) como seu elemento combustível. Para auxiliar no controle da reatividade, este elemento emprega material absorvedor ou veneno queimável em sua vareta central. Ainda sobre este ponto, existem atualmente na literatura duas propostas para o material a ser utilizado, a primeira uma liga composta por zircônio, disprósio e gadolínio (Zr-Dy-Gd) e a segunda uma vareta de zircônio revestido por háfnio. Neste contexto, o presente trabalho utiliza o código SCALE 6.0 (*Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation*) para configurar um elemento combustível. O objetivo é avaliar o comportamento neutrônico do elemento combustível para as duas propostas de vareta central. As análises foram divididas em duas etapas, na primeira foi avaliado a criticalidade e o CVR (Coeficiente de Reatividade de Vazio) no estado estacionário, variando as proporções de disprósio e gadolínio de 1% a 5% para a liga Zr-Dy-Gd e as espessuras de 0,5 mm a 4,0 mm do revestimento de háfnio em diferentes casos. Aqueles que apresentaram melhor resposta foram selecionados para a segunda etapa, na qual analisou-se a criticalidade e CVR durante a queima. Quando se avalia o comportamento do CVR durante a queima, o caso háfnio 0,5 mm apontara como o mais vantajoso, entretanto, o Dy4%-Gd3% apresenta menores valores de CVR no início da queima e maior k_{inf} ao final do ciclo. Considerando que o estudo foi desenvolvido para um elemento combustível, análises posteriores simulando o núcleo ativo do ACR são necessárias para determinar qual dos dois casos seria o mais adequado.

1. INTRODUÇÃO

A energia nuclear é amplamente utilizada no mundo. Livre de emissão de gás carbônico (CO_2) e confiável, ela é responsável por cerca de 11% de toda a energia produzida no mundo em mais de 400 reatores [1]. Dentre estes encontra-se o CANDU que utiliza água



pesada (D_2O) como refrigerante/moderador e urânio natural como combustível. Este reator apresenta como principais vantagens a recarga em operação e prescindibilidade do enriquecimento do combustível. Entretanto, o custo elevado da água pesada encarece sua fabricação.

Nos últimos anos vem sendo desenvolvido pela AECL o projeto de um CANDU avançado, o ACR. Este reator de Geração III+ apresenta como principal diferença do seu antecessor o uso de água leve como refrigerante, característica vantajosa por reduzir o volume de água pesada utilizado. Porém, como a taxa de moderação da água leve é menor do que a da água pesada, torna-se necessário o uso de combustível levemente enriquecido [2]. Dentre os projetos propostos para este tipo de sistema, está o ACR-1000®, com potência de 1200 MWe, o qual busca ser uma evolução do seu antecessor com mais eficiência e segurança. Para isso, uma das características apresentadas para este reator é o uso do CANFLEX-ACR®, elemento combustível com 43 varetas, dentre quais a central é constituída por material absorvedor de nêutrons (veneno queimável) para auxílio no controle de reatividade [2]. Atualmente, existem na literatura duas propostas de composição e geometria do material absorvedor, a primeira consiste de uma liga composta por óxido de zircônio dopado com óxidos de gadolínio e disprósio, que atuam como veneno queimável [2][3], e a segunda de uma vareta de zircônio revestido com háfnio, absorvedor de nêutrons nesta situação [4].

Apesar de documentadas, informações detalhadas das duas propostas não estão disponíveis, como as proporções de gadolínio e disprósio e a espessura do revestimento de háfnio, em virtude da propriedade intelectual da AECL. Em vista disto, este trabalho faz uma análise neutrônica do elemento combustível CANFLEX-ACR, visando obter uma composição e geometria da vareta central que forneçam condições adequadas de criticalidade e controle de reatividade. Foram analisados o fator de multiplicação infinito e o coeficiente de reatividade de vazio, visto que o absorvedor central busca reduzir o CVR [4]. Este estudo é desenvolvido em duas etapas. Na primeira o elemento combustível é simulado em estado estacionário, variado as proporções de disprósio e gadolínio para a liga Zr-Dy-Gd e da espessura do absorvedor para o revestimento de háfnio. Na segunda etapa, a criticalidade do CANFLEX-ACR é avaliada durante a queima do reator, para os casos que obtiveram melhor desempenho na etapa anterior.

2. METODOLOGIA

2.1. Modelo

O estudo é baseado em um modelo de célula combustível onde as superfícies externas são consideradas refletoras e o código SCALE 6.0 foi utilizado nas simulações. O elemento combustível CANFLEX-ACR é composto por 42 varetas de combustível levemente enriquecido (2,4% de U-235) e uma central contendo veneno queimável. As varetas de combustível são revestidas de Zircaloy e estão dispostas em 3 anéis de raio 1,75 cm, 3,14 cm e 4,50 cm, possuindo 7, 14 e 21 varetas respectivamente. Estes elementos são limitados em ambas as extremidades por placas espaçadoras constituídas de *Zircalloy* e estão inseridos no tubo de pressão. Por fim, todo este conjunto está contido

no tubo da calândria, envolvido pelo moderador [2][5][6]. O esquema da célula combustível é apresentado na Fig. 1.

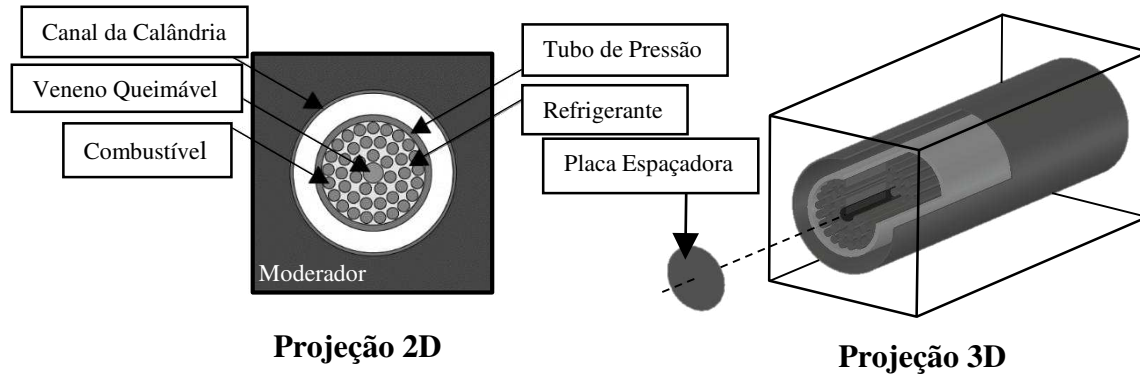


Fig. 1. Esquema do CANFLEX-ACR (do autor, 2020)

A Tab. 1 apresenta mais detalhes das características dos elementos modelados.

Tab. 1. Detalhes do CANFLEX-ACR

Característica	Dimensão [2][5]
Raio do Combustível	0,5420 cm
Espessura do Revestimento do Combustível	0,0330 cm
Comprimento das Varetas	48,4975 cm
Raio Externo da Vareta Central	1,0000 cm
Raio Interno do Tubo de Pressão	5,2000 cm
Espessura do Tubo de Pressão	0,6500 cm
Raio Interno do Canal da Calândria	8,0000 cm
Espessura do Canal da Calândria	0,2500 cm
Temperatura do Combustível	960 K
Temperatura da Vareta Central	573 K
Temperatura do Refrigerante	573 K
Temperatura do Moderador	346 K

2.1.1. Vareta Central

A vareta central possui geometria e composição diferentes para cada uma das propostas, liga Zr-Dy-Gd [2][3] e revestimento de háfnio [4]. Na primeira, o veneno queimável composto por óxido de zircônio (ZrO_2), disprósio (Dy_2O_3) e gadolínio (Gd_2O_3) está localizado no centro da vareta, revestido por uma camada de 0,0700 cm de *Zircalloy*, apresentado na Fig. 2a. Na segunda, o háfnio atua como absorvedor e reveste uma vareta de zircônio, Fig. 2b.

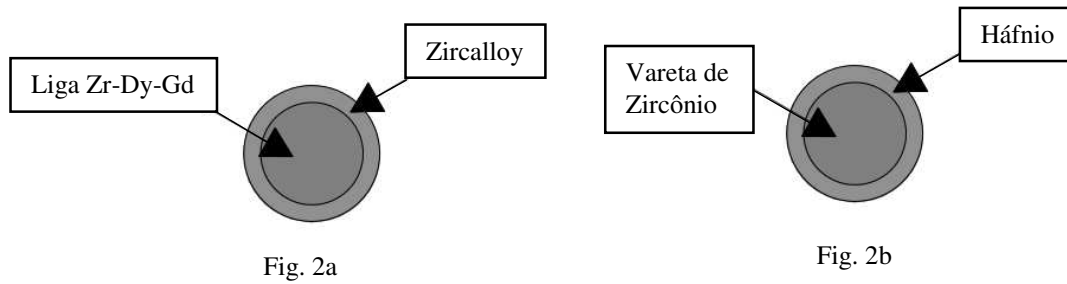


Fig. 2. Diagrama esquemático da vareta central (do autor, 2020)

2.2. Descrição do Problema

O estudo dos absorvedores de nêutrons é dividido em duas etapas. A primeira consiste em fazer uma análise de cada uma das duas propostas isoladamente em estado estacionário utilizando o módulo CSAS6 (*Criticality Safety Analysis Sequence with KENO-VI*) para calcular a criticalidade (k_{inf}) e o CVR do sistema. Baseado nos casos promissores da primeira etapa, na segunda, avaliou-se o k_{inf} e o CVR para um ciclo de operação do ACR-1000 utilizando o módulo TRITON e o módulo NEWT (*New ESC-based Weighting Transport code*) para a análise dos termos ϵ , η , p e f da fórmula dos quatro fatores. Tem-se por objetivo estudar o comportamento neutrônico de uma célula combustível durante a evolução de composição do reator considerando as duas propostas para a vareta central.

Na primeira etapa, foram analisados 25 casos para o absorvedor composto pela liga Zr-Dy-Gd, alterando as proporções dos óxidos de disprósio e gadolínio de 1% até 5%, mantendo a vareta com raio constante de 0,9300cm e revestimento com espessura de 0,0700cm [5]. Para o absorvedor composto por háfnio, a composição foi mantida constante e foram estudados 5 casos, o revestimento com espessura de 0,5 mm, 1,0 mm, 2,0 mm, 3,0 mm e 4,0 mm [4] e raio externo da vareta constante igual a 1 cm.

Para a análise do coeficiente de reatividade de vazio, a variação da densidade do fluido é dada pela expressão:

$$d^{mod} = d^{ref} \cdot (1 - vf) \quad (1)$$

Em que d^{mod} é a densidade do refrigerante para uma determinada fração de vazio (vf) em relação a uma densidade inicial d^{ref} . E o coeficiente de reatividade de vazio é calculado através da relação

$$CVR(mk) = \left(\frac{1}{k_{inf}^{ref}} - \frac{1}{k_{inf}^{mod}} \right) \cdot 1000 \quad (2)$$

Sendo k_{inf}^{ref} e k_{inf}^{mod} os fatores de multiplicação infinitos de referência e para uma determinada fração de vazio respectivamente.



3. RESULTADOS

3.1. Primeira Etapa

As tabelas 2 e 3 apresentam os valores da criticalidade para as duas propostas citadas anteriormente: liga Zr-Dy-Gd e revestimento de háfnio. O desvio padrão obtido pelo código foi da ordem de 3×10^{-4} . Os resultados dos cálculos no estado estacionário apresentaram um comportamento esperado em ambas propostas. O aumento da quantidade de veneno queimável presente na célula combustível provoca uma redução da criticalidade (k_{inf}) do sistema por absorver parte dos nêutrons disponíveis para fissão. Para a liga Zr-Dy-Gd (Tab. 2) é possível perceber que o impacto causado pelo gadolínio ao k_{inf} é maior que o causado pelo disprósio, isto ocorre devido a apreciável diferença nos valores da seção de choque microscópica de absorção destes elementos, 49000 barns para o gadolínio e 930 barns para o disprósio, considerando nêutrons com energia térmica (0,0253 eV) [7]. Para o revestimento de háfnio (Tab. 3), maiores espessuras indicam um maior volume de absorvedor, sendo este fator o único responsável pela redução da criticalidade.

Tab. 2. Criticalidade para a liga Zr-Dy-Gd

Composição		Disprósio				
		1%	2%	3%	4%	5%
Gadolínio	1%	1,01792	1,01440	1,01117	1,00836	1,00642
	2%	1,01076	1,00839	1,00586	1,00305	1,00071
	3%	1,00694	1,00464	1,00244	1,00077	0,99830
	4%	1,00433	1,00221	0,99989	0,99830	0,99717
	5%	1,00280	0,99925	0,99802	0,99688	0,99523

Tab. 3. Criticalidade para o revestimento de háfnio

Espessura	k_{inf}	Espessura	k_{inf}
0.5 mm	1,01967	3 mm	0,96773
1 mm	0,99791	4 mm	0,96164
2 mm	0,97733		

As análises do fator de multiplicação infinito consideram um reator infinito, ou seja, todos os nêutrons produzidos por fissão serão absorvidos eventualmente no reator, desconsiderando as probabilidades de fuga [7], logo a criticalidade obtida nestas análises é maior que em uma situação real. Por esta razão, foram rejeitados os casos em que a célula se torna subcrítica.

Para os casos selecionados no passo anterior, avaliou-se o CVR, buscando, para as duas propostas, o menor valor em função do aumento da fração de vazio do refrigerante. Para a liga Zr-Dy-Gd, foi analisado primeiro os valores de CVR para fração de vazio (ν_f) igual a 1,0, isto é, na situação de perda total de refrigerante, apresentado na Tab. 4.



Tab. 4. Reatividade de vazio para perda total do refrigerante

Composição	CVR (mk)	Composição	CVR (mk)
Dy1% - Gd1%	25,36609	Dy3% - Gd1%	23,61856
Dy1% - Gd2%	24,28057	Dy3% - Gd2%	22,24350
Dy1% - Gd3%	23,15691	Dy3% - Gd3%	22,18457
Dy1% - Gd4%	23,09632	Dy4% - Gd1%	23,61761
Dy1% - Gd5%	22,72941	Dy4% - Gd2%	22,54733
Dy2% - Gd1%	24,42310	Dy4% - Gd3%	21,44586
Dy2% - Gd2%	23,08176	Dy5% - Gd1%	22,97334
Dy2% - Gd3%	23,22402	Dy5% - Gd2%	22,57539
Dy2% - Gd4%	21,63275		

A perda total de refrigerante constitui um acidente severo onde os sistemas de segurança são acionados para desligar o reator. Nesta situação, menores valores de reatividade do elemento combustível são o desejado, pois indicam um cenário favorável no acionamento dos sistemas de segurança, controle e desligamento.

Desta análise, foram selecionados dois casos que apresentaram um menor CVR nesta situação, Dy2% - Gd4% e Dy4% - Gd3%. Destes, juntamente ao caso do revestimento de háfnio selecionado anteriormente (0,5 mm), foi avaliado o CVR em função da fração de vazio, apresentados na Fig. 3.

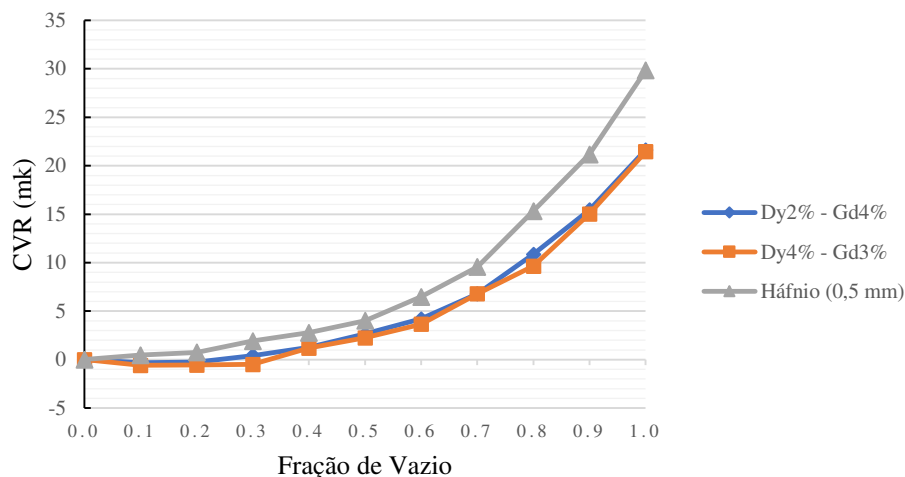


Fig. 3. CVR no estado estacionário para os melhores casos da liga Zr-Dy-Gd e revestimento de háfnio

Os resultados desta análise mostraram que a liga Zr-Dy-Gd possui um melhor comportamento do CVR do que o revestimento de háfnio. Além disso, é possível verificar que o CVR para ambos casos da liga Zr-Dy-Gd são similares, com sutis diferenças para frações de vazio abaixo de 0,3, situação na qual o caso Dy4% - Gd3% possui um CVR em torno de -0,5 mk, menor que os valores do caso Dy2% - Gd4% e valores ligeiramente menores, ~ -0,2 mk, para a fração de vazio 1,0. Com base nestes resultados, os casos Dy4% - Gd3% e háfnio (0,5 mm) foram selecionados para a próxima etapa.



3.2. Segunda Etapa

Na segunda etapa foi considerada uma densidade de potência de 32 MW/tHM e uma queima total do combustível de 20 GWd/tHM [2]. Os valores da criticalidade em função da queima do elemento combustível CANFLEX-ACR em condições normais de operação, fração de vazio igual a 0, são apresentados na Fig. 4.

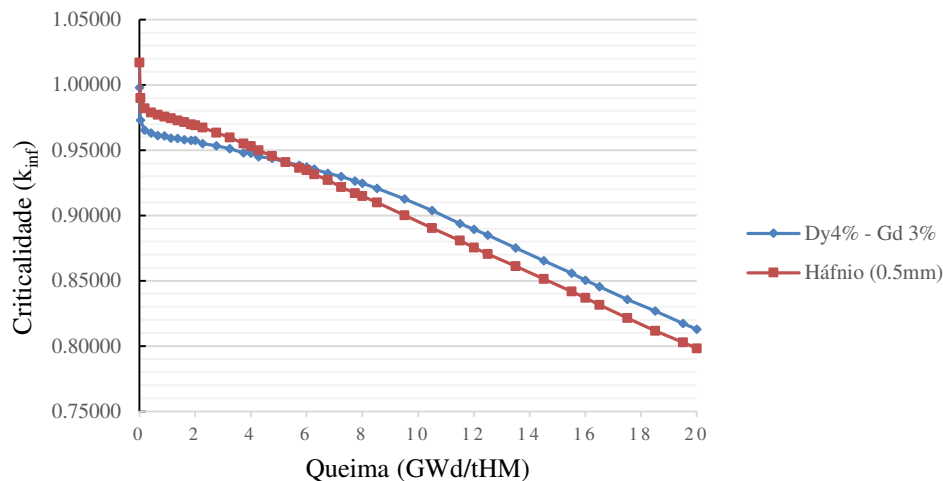


Fig. 4. Criticalidade em função da queima para a liga Zr-Dy-Gd e revestimento de háfnio

Existem duas características notáveis em relação ao comportamento da criticalidade observado. Primeiro, a redução acentuada da criticalidade nos momentos iniciais de ambos os casos é provocada pelas absorções no combustível, principalmente no U-238, para a produção de Pu-239. Nota-se na Fig. 5 que o fator de reprodução (η), definido como a média de nêutrons emitidos por nêutron térmico absorvido no combustível, apresenta uma queda no início da queima. Isto indica que poucos nêutrons são emitidos para cada nêutron absorvido, ou seja, muitas das absorções não provocam fissão.

O segundo ponto a ser observado são os maiores valores de criticalidade da liga Zr-Dy-Gd em relação ao háfnio após aproximadamente 5 GWd/tHM. Esta mudança está relacionada à diferença de velocidade de redução do veneno queimável disponível, isto pode ser observado pela diferença do comportamento do fator de utilização térmico (f) para cada absorvedor na Fig. 5. Como apontado em [7], o principal fator da fórmula dos quatro fatores afetado pela presença de venenos no reator é a utilização térmica, que se altera de maneira inversamente proporcional às absorções fora do combustível. Portanto, é esperado também que os demais fatores não apresentem variações significativas entre os casos, o que pôde ser visto.

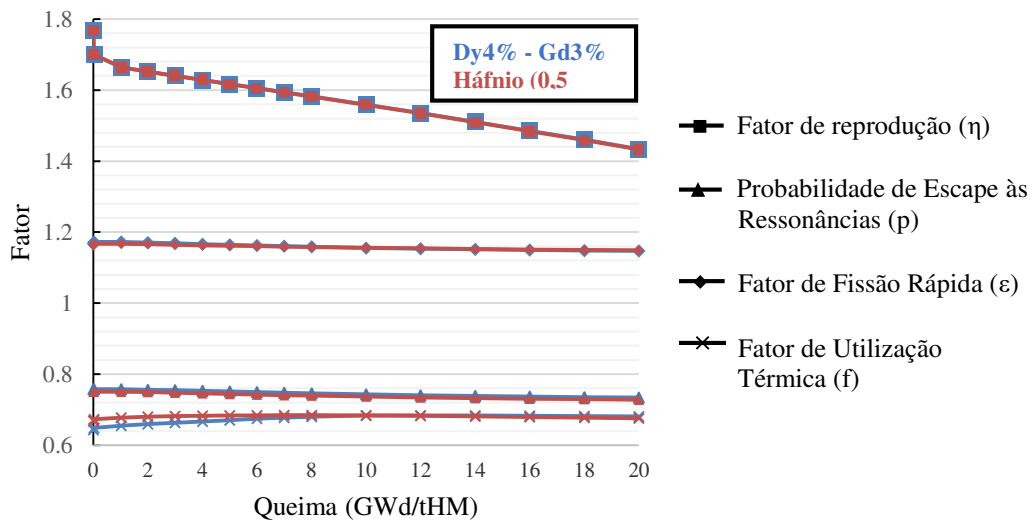


Fig. 5: Quatro fatores para o elemento CANFLEX-ACR em condições normais de operação

Os valores do CVR em função da fração de vazio são apresentados na Fig. 6. O primeiro ponto a ser observado é o aumento do CVR de ambas as propostas ao longo da queima. Isto ocorre porque a velocidade com que os venenos queimáveis são consumidos é maior que a do combustível [4], com menos absorvedores, mais nêutrons ficam disponíveis para as reações de fissão.

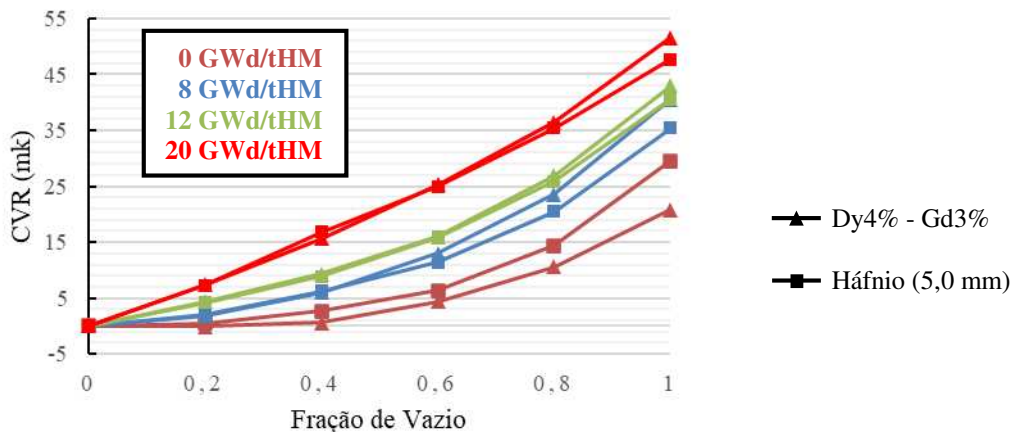


Fig. 6: CVR em função da fração de vazio e queima para a liga Zr-Dy-Gd e revestimento de háfnio

Em segundo lugar, entre os dois tipos de absorvedores, o elemento combustível que possui háfnio apresenta menor CVR considerando os valores de queima. A partir de 8 GWd/tHM os valores de CVR do háfnio se mantêm majoritariamente inferiores aos da liga. A razão está mais uma vez relacionada à diferença de velocidade de redução do veneno queimável disponível. Como pode ser observado na Fig. 7, o Gd-157 presente na liga Zr-Dy-Gd é consumido rapidamente no início da queima. Considerando que este isótopo possui maior seção de choque de captura radiativa entre os avaliados (Fig. 8), a



capacidade de absorção da liga Zr-Dy-Gd é reduzida drasticamente, ficando em função apenas do disprósio. Embora o Dy-161 e Dy-164 possuam maior seção de choque do que o Hf-177 e Hf-178, a concentração de Hf é maior do que a de Dy (Fig. 7). Este comportamento proporciona menor CVR para o combustível que possui Hf como absorvedor de nêutrons.

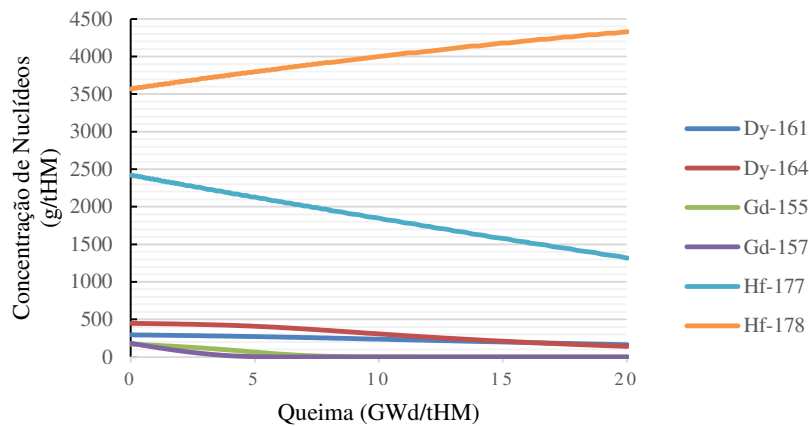


Fig. 7: Concentração de núclídeos em função do tempo para os principais isótopos absorvedores

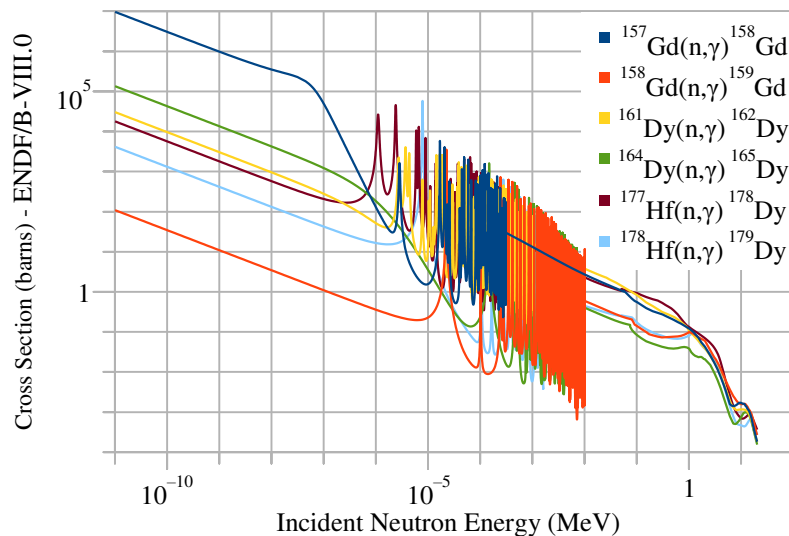


Fig. 8: Seção de choque de captura radiativa para os principais isótopos absorvedores [8].

As Tab. 5 e Fig. 9 apresentam as concentrações dos principais núclídeos absorvedores nas varetas combustível [9][10] ao final da queima e os produtos de fissão de maior interesse [7][9] ao longo do ciclo, respectivamente. É possível observar que não existem diferenças significativas na massa final destes núclídeos entre cada uma das propostas. Além disso, o Xe-135 e Sm-149 atingem rapidamente o equilíbrio e possuem um perfil similar ao longo do ciclo. Com base nestas observações, pode-se concluir que a absorção de nêutrons pelos núclídeos produzidos por fissão possui inexpressiva influência no comportamento observado nas Fig. 4 e Fig. 6. Logo, as diferenças entre as curvas de cada uma das propostas se dão exclusivamente pela influência dos venenos queimáveis das varetas centrais.



Tab. 5. Concentração de núclídeos no combustível dos principais absorvedores produzidos por fissão para 20 GWd/tHM

Nuclídeo	* σ_{γ} [8]	Concentração de Núclídeos (g/tHM)	
		Dy4% - Gd3%	Háfnio 0,5 mm
Xe-135	2,66E+06	0,1140	0,1142
Sm-149	40513,5	1,212	1,216
Np-237	175,43	145,9	146,5
Am-242m	1231,08	0,1837	0,1809
Am-242	219	0,03322	0,03265
Cm-245	347	0,08309	0,08017

*Seção de choque de captura radiativa para nêutrons com energia térmica (0,0253 eV).

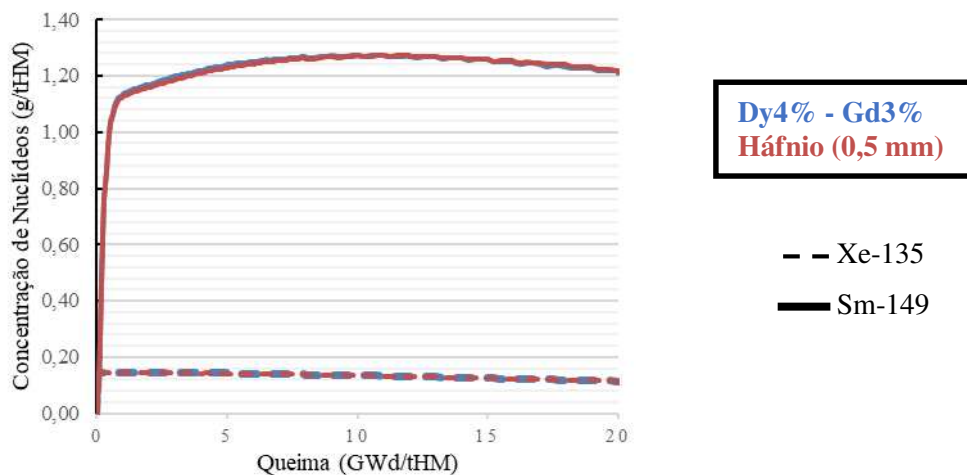


Fig. 9. Produtos de fissão de maior interesse em função da queima para cada proposta

4. CONCLUSÃO

Ambos os casos avaliados na etapa de evolução de composição apresentaram resultados desejáveis para os parâmetros avaliados, do ponto de vista de que são os que mantiveram uma criticidade adequada e os menores valores de CVR na condição suposta de um acidente severo, como perda de refrigerante. A liga Zr-Dy-Gd, caso Dy4% - Gd3%, possui menores valores de CVR no início da queima, característica vantajosa caso haja formação de vazios, e maior k_{inf} ao final do ciclo, fator que pode indicar uma extensão da queima. Enquanto para o háfnio (0,5 mm) é observado um melhor comportamento do CVR para combustível queimado. Como cada caso é vantajoso em determinadas condições, considerando que o estudo foi desenvolvido para um elemento combustível e que foram avaliados a criticidade e o CVR, análises posteriores simulando o núcleo ativo do ACR-1000 para estes e outros parâmetros são necessárias para determinar qual dos dois casos selecionados seria o mais adequado para ser utilizado.

O comportamento crescente do CVR não é o desejável para o CANFLEX-ACR, como apontado em [2], sendo almejado valores negativos deste coeficiente para o ACR-1000



mesmo em situações extremas de perda total do refrigerante. A diferença entre o resultado obtido e o futuro comportamento real dos parâmetros analisados se dá pela aridez de informações disponibilizada pela AECL, atual detentora da propriedade intelectual do protótipo em desenvolvimento. Porém tal característica não invalida o trabalho desenvolvido, pois todos os resultados apresentados estão de acordo com o modelo retratado.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem às agências brasileiras de fomento à pesquisa, CNPq (Brasil), CAPES (Brasil), FAPEMIG (MG / Brasil) e CNEN (Brasil), pelo apoio.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] International Atomic Energy Agency. Disponível em <www.iaea.org/topics/nuclear-power-reactors>. Acessado em 13/01/2020.
- [2] AECL, “ACR-1000 Technical Description Summary”, 1ª ed., Ontario, January (2010).
- [3] Stephen Yu, “ACR-1000 Design Overview”, Presentation to PEO/CNS, Chalk River, (2008).
- [4] Iosif Prodea *et al.*, Void Reactivity Evaluation Using Hafnium Absorber in Advanced Candu Fuel Cells, University "Politehnica" of Bucharest Scientific Bulletin, Series C: Electrical Engineering, vol. 72, no. 2, p. 239-246, (2010).
- [5] Hill, *et al.*, MCNP Simulations of End Flux Peaking in ACR-1000, 2.4 wt % ²³⁵U Fuel Bundles, IYNC 2008: International Youth Nuclear Congress 2008, Switzerland, (2008).
- [6] Smith, Philip G. *et al.*, Dose assessment of a fresh 43-element CANFLEX-ACR fuel bundle and fresh 37-element fuel bundle. Radiation protection dosimetry, vol. 133, no. 4, p. 261-266, (2009).
- [7] John R. Lamarsh, “Introduction to Nuclear Engineering”, Prentice Hall Professional Technical Reference, 3ª Ed., (1983).
- [8] IAEA, “Evaluated Nuclear Data File (ENDF)”, <https://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm>
- [9] M. C. B de Almeida, Avaliação Neutrônica do Uso de Combustível Reprocessado em um Reator CANDU, Dissertação, Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, Brasil (2018).
- [10] W. Seifritz and P. Wydler, Criticality of neptunium-237 and its possible utilization in nuclear reactors, Nuclear Science and Engineering, vol. 72, no. 2, p. 272-276, (1979).