



**UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS**  
**Departamento de Engenharia Nuclear**  
**Programa de Pós Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares**

**Jean Anderson Dias Salomé**

**ANÁLISE DE PARÂMETROS RELEVANTES PARA A ARMAZENAGEM E  
DEPOSIÇÃO DE COMBUSTÍVEIS IRRADIADOS DE SISTEMAS NUCLEARES  
INOVADORES**

**Belo Horizonte**

**2016**

**Jean Anderson Dias Salomé**

**ANÁLISE DE PARÂMETROS RELEVANTES PARA A ARMAZENAGEM E  
DEPOSIÇÃO DE COMBUSTÍVEIS IRRADIADOS DE SISTEMAS NUCLEARES  
INOVADORES**

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

Orientadora: Prof.<sup>a</sup> Dra. Cláudia Pereira Bezerra Lima

Área de concentração: Ciências das Radiações

**Belo Horizonte**

**2016**

S173a

Salomé, Jean Anderson Dias.

Análise de parâmetros relevantes para a armazenagem e deposição de combustíveis irradiados de sistemas nucleares inovadores [manuscrito] / Jean Anderson Dias Salomé. – 2016.

178 f., enc.: il.

Orientadora: Cláudia Pereira Bezerra Lima.

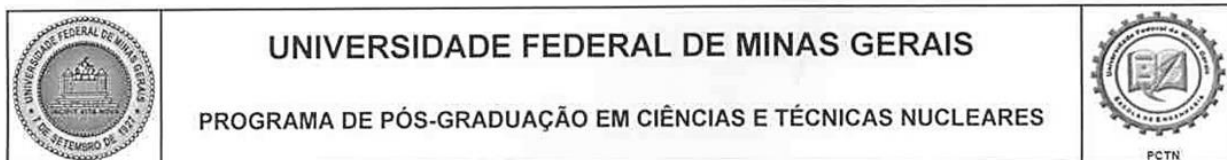
Tese (doutorado) Universidade Federal de Minas Gerais, Escola de Engenharia.

Anexo: f. 178.

Bibliografia: f. 168-177.

1. Engenharia nuclear - Teses. 2. Elementos actínídeos - Teses. 3. Fissão nuclear - Teses. 4. Combustíveis nucleares - Teses. 5. Radioatividade - Teses. I. Lima, Cláudia Pereira Bezerra. II. Universidade Federal de Minas Gerais. Escola de Engenharia. III. Título.

CDU: 621.039(043)



## FOLHA DE APROVAÇÃO

### ANÁLISE DE PARÂMETROS RELEVANTES PARA A ARMAZENAGEM E DEPOSIÇÃO DE COMBUSTÍVEIS IRRADIADOS DE SISTEMAS NUCLEARES INOVADORES


### JEAN ANDERSON DIAS SALOMÉ

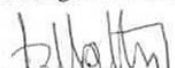
Tese submetida à Banca Examinadora designada pelo Colegiado do Programa de Pós-Graduação em CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES, como requisito parcial para obtenção do grau de Doutor em CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES, área de concentração CIÊNCIAS DAS RADIAÇÕES.

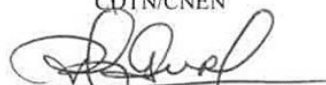
Aprovada em 20 de dezembro de 2016, pela banca constituída pelos membros:

  
 Prof. Cláudia Pereira Bezerra Lima - Orientadora  
 Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

  
 Prof. Maria Auxiliadora Fortini Veloso  
 Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

  
 Prof. Antonella Lombardi Costa  
 Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

  
 Dr. João Roberto Loureiro de Mattos  
 CDTN/CNEN

  
 Dra. Maritza Rodríguez Gual  
 CDTN/CNEN

Belo Horizonte, 20 de dezembro de 2016.

*Dedico este trabalho à minha família que esteve comigo durante esta jornada; especialmente meus filhos, Beatriz e Bernardo, os quais amo de coração, e minha esposa Gleidimar.*

## AGRADECIMENTOS

Agradeço primeiramente a Deus por todas as bênçãos que tenho recebido diariamente e por mais um sonho concretizado.

Aos meus familiares por todo apoio e carinho recebido em minha caminhada.

À minha orientadora, Prof.<sup>a</sup> Dr.<sup>a</sup> Cláudia Pereira Bezerra Lima, pela oportunidade e confiança a mim conferida.

Aos professores do DEN pela atenção e colaboração para conosco, os alunos.

Aos doutores, Carlos Velasquez, Fabiano Cardoso e Fernando Pereira por todo apoio técnico com os códigos.

À equipe de servidores técnicos do DEN, Aline, Nanci e Thales.

Aos colegas do DEN, Rock, Vítor, Cristiane, Bruno, Patrícia, Graiciany, Danilo, Janine e Gláucia.

Aos colegas de trabalho, especialmente a Verinha, por toda a compreensão e paciência.

Enfim, a todos aqueles amigos que me ofertaram ajuda na construção deste projeto. Que o bom Deus abençoe ricamente a cada um de vocês.

Ao CNPq, CAPES e FAPEMIG pelo suporte financeiro.

*“Porque o Senhor dá a sabedoria; da sua boca é que vem o conhecimento e o entendimento.”*

**Provérbios 2:6**

## RESUMO

Considerando um cenário de reatores de quarta geração e sistemas híbridos, estudos que analisem a composição de combustíveis nucleares irradiados são essenciais, pois, além de investigarem a evolução do material, podem determinar a presença e a quantidade dos isótopos mais importantes na compreensão dos efeitos radiotóxicos e térmicos mais significativos, bem como o impacto destes na deposição temporária ou permanente destes combustíveis. Nesta pesquisa, os sistemas PWR, VHTR com combustível padrão, VHTR com combustível reprocessado e um sistema híbrido ADS-Fissão tiveram a evolução de seus combustíveis analisados e comparados até  $10^7$  anos. Foram avaliados parâmetros tais como a composição, a radioatividade, a radiotoxicidade por ingestão e inalação e o calor de decaimento. Na sequência foram feitos estudos de criticalidade e transferência de calor desses combustíveis queimados dentro de um repositório temporário e, por último, uma análise térmica dos materiais em um *canister* dentro de um repositório geológico. O reator PWR foi usado como padrão de comparação. O código computacional ORIGEN 2.1 foi utilizado para realizar os cálculos relativos à composição e os parâmetros de decaimento dos combustíveis irradiados, dando ênfase à contribuição dos isótopos de actínídeos e produtos de fissão mais relevantes para os mesmos. Para a investigação da criticalidade usou-se o código SCALE 6.0 módulo KENO V.a e, na análise térmica, o código ANSYS Student via módulos CFX e Transiente Térmico. Assim, este trabalho evidenciou o grande impacto dos sistemas inovadores na gestão do *back-end* do ciclo dos combustíveis nucleares. A comparação dos resultados calculados para o combustível de um reator PWR típico em repositórios temporários e permanentes com os valores encontrados para os combustíveis provenientes desses sistemas estabelece um marco para o aprofundamento desse tema. Dos resultados verifica-se a forte influência dos isótopos de plutônio, actínídeos menores e produtos de fissão sobre o comportamento dos combustíveis.

Palavras-chave: actínídeos; produtos de fissão; combustível nuclear; sistemas nucleares inovadores; repositórios; código ORIGEN 2.1; código SCALE 6.0; código ANSYS; radioatividade; calor de decaimento.



## ABSTRACT

Considering a scenario of fourth generation reactors and hybrid systems, studies that analyze the composition of irradiated nuclear fuels are essential, because in addition to investigate the evolution of the material, they can determine the presence and quantity of the most important isotopes for understanding of the most significant radiotoxic and thermal effects and the impact of the temporary or permanent disposal of these fuels. In this research, the systems PWR, VHTR with standard fuel, VHTR with reprocessed fuel and a hybrid ADS-Fission system were analyzed and compared until  $10^7$  years. Such parameters as the composition, radioactivity, radiotoxicity by ingestion and inhalation and decay heat were evaluated. In the sequence, studies about the criticality and heat transfer of these spent fuels were carried out inside a temporary repository, and finally, a thermal analysis of the materials into a canister inside a geological repository was done. The PWR reactor was used as standard basis of comparison. The computer code ORIGEN 2.1 was used to perform calculations on the composition and spent fuel decay parameters, emphasizing the contribution of the relevant actinide isotopes and fission products for them. The SCALE 6.0 code KENO V.a module was used to investigate the criticality and, in the thermal analysis, the ANSYS Student code via CFX and Transient Thermal modules. Thus, this work evidenced the great impact of innovative systems on the management of the back-end of the nuclear fuel cycle. The comparison of the calculated results for the fuel of a typical PWR reactor in temporary and permanent repositories with the values found for the fuels from these systems establishes a milestone for the deepening of this theme. From the results it is verified the strong influence of the isotopes of plutonium, minor actinides and fission products on the behavior of the fuels.

Keywords: actinides; fission products; nuclear fuel; innovative nuclear systems; repositories; ORIGEN 2.1 code; SCALE 6.0 code; ANSYS code; radioactivity; decay heat.

## LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 2.1 – Concepção artística do reator Chicago Pile-1 (CP-1).....	24
Figura 2.2 – Diagrama da evolução dos reatores (adaptado).....	28
Figura 2.3 – Seção de choque de fissão do $^{235}\text{U}$ .....	31
Figura 2.4 – Seção de choque de fissão do $^{238}\text{U}$ .....	31
Figura 2.5 – Seção de choque de fissão do $^{232}\text{Th}$ .....	32
Figura 2.6 – Corte longitudinal de um reator PWR.....	33
Figura 2.7 – Circuitos primário e secundário de um reator PWR.....	34
Figura 2.8 – Pastilha de combustível de um reator PWR.....	35
Figura 2.9 – Elemento de combustível de um reator PWR.....	35
Figura 2.10 – Núcleo hexagonal de um reator VHTR prismático.....	37
Figura 2.11 – Corte transversal de um reator VHTR prismático.....	38
Figura 2.12 – Elementos da matriz de combustível de um VHTR de bloco prismático.....	39
Figura 2.13 – Recarregamento do VHTR de bloco prismático em Fort Saint Vrain.....	39
Figura 2.14 – Reator VHTR pebble bed.....	40
Figura 2.15 – Partícula TRISO mostrada em corte.....	41
Figura 2.16 – Esquema de um sistema ADS.....	43
Figura 2.17 – Diagrama da proposta de Rubbia para um sistema ADS.....	44
Figura 2.18 – Etapas e partículas envolvidas em reação de spallation.....	47
Figura 2.19 – Rendimento de nêutrons gerados por spallation em alvo de chumbo de acordo com a energia do feixe de prótons acelerados.....	48
Figura 2.20 – Seção de choque microscópica de spallation para o $^{208}\text{Pb}$ e $^{209}\text{Bi}$ .....	49
Figura 2.21 – Seções de choque microscópicas para o $^{208}\text{Pb}$ .....	50
Figura 2.22 – Elemento linear unidimensional.....	59
Figura 2.23 – Sistemas de mapeamento do código ANSYS.....	62
Figura 2.24 – Fluxograma do ciclo do combustível nuclear (adaptado).....	64
Figura 2.25 – Fluxograma do método de reprocessamento PUREX.....	66
Figura 2.26 – Fluxograma do método de reprocessamento UREX+.....	68
Figura 2.27 – Fluxograma do método de reprocessamento GANEX.....	69
Figura 3.1 – Perfis transversal e longitudinal do reator VHTR simulado no código SCALE 6.0.....	73
Figura 3.2 – Perfis longitudinal e transversal do sistema ADS simulado com o código MONTEBURNS.....	75
Figura 3.3 – Série de decaimento do $^{235}\text{U}$ .....	79
Figura 3.4 – Série de decaimento do $^{238}\text{U}$ .....	80
Figura 3.5 – Série de decaimento do $^{232}\text{Th}$ .....	80
Figura 4.1 – Massas de actínídeos transmutadas ou produzidas nos combustíveis dos sistemas nucleares estudados, calculadas através do código ORIGEN 2.1.....	83
Figura 4.2 – Massas de produtos de fissão transmutadas nos combustíveis dos sistemas nucleares estudados, calculadas através do código ORIGEN 2.1.....	84
Figura 4.3 – Radioatividade total do combustível para cada sistema.....	93
Figura 4.4 – Radioatividade total do combustível para cada sistema, normalizada pela respectiva queima.....	94
Figura 4.5 – Radioatividade por actínídeos do combustível para cada sistema.....	94
Figura 4.6 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível para cada sistema.....	95
Figura 4.7 – Radioatividade total do combustível do reator PWR.....	96
Figura 4.8 – Radioatividade por actínídeos do combustível do reator PWR.....	96
Figura 4.9 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível do reator PWR.....	97
Figura 4.10 – Radioatividade total do combustível do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ).....	97

Figura 4.11 – Radioatividade por actínídeos do combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	98
Figura 4.12 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	99
Figura 4.13 – Radioatividade total do combustível do reator VHTR (Th-TU).....	100
Figura 4.14 – Radioatividade por actínídeos do combustível do reator VHTR (Th-TU).....	100
Figura 4.15 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível do reator VHTR (Th-TU).....	101
Figura 4.16 – Radioatividade total do combustível do sistema ADS.....	102
Figura 4.17 – Radioatividade por actínídeos do combustível do sistema ADS.....	102
Figura 4.18 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível do sistema ADS.....	103
Figura 4.19 – Radiotoxicidade total por ingestão para o combustível para cada sistema.....	104
Figura 4.20 – Radiotoxicidade total por ingestão para o combustível para cada sistema, normalizada pela respectiva queima.....	105
Figura 4.21 – Radiotoxicidade por ingestão por actínídeos do combustível para cada sistema.....	106
Figura 4.22 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos fissão do combustível para cada sistema.....	106
Figura 4.23 – Radiotoxicidade total por ingestão do combustível do reator PWR.....	107
Figura 4.24 – Radiotoxicidade por ingestão por actínídeos do combustível do reator PWR.....	108
Figura 4.25 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos de fissão do combustível do reator PWR.....	108
Figura 4.26 – Radiotoxicidade total por ingestão do combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> )....	109
Figura 4.27 – Radiotoxicidade por ingestão por actínídeos do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	110
Figura 4.28 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos de fissão do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	110
Figura 4.29 – Radiotoxicidade total por ingestão do combustível do reator VHTR (Th-TU).....	111
Figura 4.30 – Radiotoxicidade por ingestão por actínídeos do reator VHTR (Th-TU).....	112
Figura 4.31 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos de fissão do reator VHTR (Th-TU).....	113
Figura 4.32 – Radiotoxicidade total por ingestão do combustível do sistema ADS.....	114
Figura 4.33 – Radiotoxicidade por ingestão por actínídeos do sistema ADS.....	114
Figura 4.34 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos de fissão do sistema ADS.....	115
Figura 4.35 – Radiotoxicidade total por inalação para o combustível para cada sistema.....	116
Figura 4.36 – Radiotoxicidade total por inalação para o combustível para cada sistema, normalizada pela respectiva queima.....	117
Figura 4.37 – Radiotoxicidade por inalação por actínídeos do combustível para cada sistema.....	118
Figura 4.38 – Radiotoxicidade por inalação por produtos fissão do combustível para cada sistema.....	118
Figura 4.39 – Radiotoxicidade total por inalação do combustível do reator PWR.....	119
Figura 4.40 – Radiotoxicidade por inalação por actínídeos do combustível do reator PWR.....	120
Figura 4.41 – Radiotoxicidade por inalação por produtos de fissão do combustível do reator PWR.....	121
Figura 4.42 – Radiotoxicidade total por inalação do combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> )....	122
Figura 4.43 – Radiotoxicidade por inalação por actínídeos do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	122
Figura 4.44 – Radiotoxicidade por inalação por produtos de fissão do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	123
Figura 4.45 – Radiotoxicidade total por inalação do combustível do reator VHTR (Th-	

TU).....	124
Figura 4.46 – Radiotoxicidade por inalação por actínidos do reator VHTR (Th-TU).....	125
Figura 4.47 – Radiotoxicidade por inalação por produtos de fissão do reator VHTR (Th-TU).....	125
Figura 4.48 – Radiotoxicidade total por inalação do combustível do sistema ADS.....	126
Figura 4.49 – Radiotoxicidade por inalação por actínidos do sistema ADS.....	127
Figura 4.50 – Radiotoxicidade por inalação por produtos de fissão do sistema ADS.....	128
Figura 4.51 – Calor de decaimento total do combustível para cada sistema.....	129
Figura 4.52 – Calor de decaimento total do combustível para cada sistema, normalizado pela respectiva queima.....	130
Figura 4.53 – Calor de decaimento por actínidos do combustível para cada sistema.....	131
Figura 4.54 – Calor de decaimento por produtos fissão do combustível para cada sistema.....	131
Figura 4.55 – Calor de decaimento total do combustível do reator PWR.....	132
Figura 4.56 – Calor de decaimento por actínidos do combustível do reator PWR.....	133
Figura 4.57 – Calor de decaimento por produtos de fissão do combustível do reator PWR.....	134
Figura 4.58 – Calor de decaimento total do combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	135
Figura 4.59 – Calor de decaimento por actínidos do combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	135
Figura 4.60 – Calor de decaimento por produtos de fissão do combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	136
Figura 4.61 – Calor de decaimento total do combustível do reator VHTR (Th-TU).....	137
Figura 4.62 – Calor de decaimento por actínidos do combustível do reator VHTR (Th-TU).....	138
Figura 4.63 – Calor de decaimento por produtos de fissão do reator VHTR (Th-TU).....	139
Figura 4.64 – Calor de decaimento total do combustível do sistema ADS.....	140
Figura 4.65 – Calor de decaimento por actínidos do combustível do sistema ADS.....	140
Figura 4.66 – Calor de decaimento por produtos de fissão do combustível do sistema ADS.....	141
Figura 5.1 – Figura 5.1 – Elementos combustíveis adotados para análise de criticalidade simulados no código SCALE 6.0.....	144
Figura 5.2 – Corte longitudinal de elemento combustível do sistema PWR dentro da piscina de armazenagem simulado no código SCALE 6.0.....	144
Figura 5.3 – Massas relativas dos sistemas dentro da piscina de armazenagem comparadas ao sistema PWR.....	147
Figura 5.4 – Criticalidade dos combustíveis na piscina de armazenagem no tempo calculada pelo código SCALE 6.0.....	148
Figura 6.1 – Piscina de armazenagem de combustível irradiado simulada pelo código ANSYS Student.....	151
Figura 6.2 – Elementos do conceito britânico de repositório geológico.....	154
Figura 6.3 – <i>Canister</i> típico para deposição de combustível de reatores PWR.....	154
Figura 6.4 – Croqui de um repositório geológico.....	155
Figura 6.5 – Malhas ( <i>meshes</i> ) utilizadas na modelagem de uma porção do repositório geológico pelo código ANSYS Student.....	156
Figura 6.6(a) – Curva de ajuste de dados de calor de decaimento do sistema PWR.....	156
Figura 6.6(b) – Curva de ajuste de dados de calor de decaimento do sistema VHTR (UO <sub>2</sub> ).....	157
Figura 6.6(c) – Curva de ajuste de dados de calor de decaimento do sistema VHTR (Th-TU).....	157
Figura 6.6(d) – Curva de ajuste de dados de calor de decaimento do sistema ADS.....	158

Figura 6.7 – Temperatura da água da piscina do modelo paredes seladas em $t = 0$ calculada pelo código ANSYS Student.....	159
Figura 6.8 – Temperatura da água da piscina do modelo topo aberto em $t = 0$ calculada pelo código ANSYS Student.....	160
Figura 6.9 – Temperatura da água da piscina do modelo paredes seladas em $t = 10$ anos calculada pelo código ANSYS Student.....	161
Figura 6.10 – Temperatura da água da piscina do modelo topo aberto em $t = 10$ anos calculada pelo código ANSYS Student.....	161
Figura 6.11 – Evolução da temperatura na superfície dos canisters ao longo do tempo calculada pelo código ANSYS Student.....	164

## LISTA DE TABELAS

Tabela 2.1 – Características e parâmetros de operação de sistemas nucleares de Geração IV em desenvolvimento.....	29
Tabela 2.2 – Parâmetros da barra de combustível de um reator PWR.....	36
Tabela 2.3 – Parâmetros geométricos básicos de um reator VHTR prismático.....	38
Tabela 3.1 – Concentrações dos principais actínidos e produtos de fissão no combustível do reator PWR para uma queima de 33000 MWd/tHM ao longo de três anos, calculada pelo código ORIGEN 2.1.....	71
Tabela 3.2 – Concentrações dos principais actínidos e produtos de fissão no combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ) para uma queima de 97800 MWd/tHM ao longo de três anos, calculada pelo código SCALE 6.0.....	72
Tabela 3.3 – Concentrações dos principais actínidos e produtos de fissão no combustível do reator VHTR (Th-TU) para uma queima de 97800 MWd/tHM ao longo de três anos, calculada pelo código SCALE 6.0.....	74
Tabela 3.4 – Concentrações dos principais actínidos e produtos de fissão no combustível do sistema ADS para uma queima de 237600 MWd/tHM ao longo de vinte anos, calculada pelo código MONTEBURNS.....	76
Tabela 3.5 – Principais características dos reatores estudados.....	77
Tabela 3.6 – Propriedades físicas dos principais actínidos estudados.....	78
Tabela 3.7 – Propriedades físicas dos principais produtos de fissão estudados.....	79
Tabela 4.1 – Variações de massas dos actínidos nos combustíveis dos sistemas nucleares estudados, calculadas pelo código ORIGEN 2.1.....	82
Tabela 4.2 – Variações de massas dos produtos de fissão nos combustíveis dos sistemas nucleares estudados, calculadas pelo código ORIGEN 2.1.....	84
Tabela 4.3 – Composição isotópica dos actínidos no combustível do reator PWR calculada pelo código ORIGEN 2.1.....	85
Tabela 4.4 – Composição dos produtos de fissão no combustível do reator PWR calculada pelo código ORIGEN 2.1.....	86
Tabela 4.5 – Composição dos actínidos no combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ) calculada pelo código ORIGEN 2.1.....	87
Tabela 4.6 – Composição dos produtos de fissão no combustível do reator VHTR (UO <sub>2</sub> ) calculada pelo código ORIGEN 2.1.....	88
Tabela 4.7 – Composição dos actínidos no combustível do reator VHTR (Th-TU) calculada pelo código ORIGEN 2.1.....	89
Tabela 4.8 – Composição dos produtos de fissão no combustível do reator VHTR (Th-TU) calculada pelo código ORIGEN 2.1.....	90
Tabela 4.9 – Composição dos actínidos no combustível do sistema ADS calculada pelo código ORIGEN 2.1.....	91
Tabela 4.10 – Composição dos produtos de fissão no combustível do sistema ADS calculada pelo código ORIGEN 2.1.....	92
Tabela 5.1 – Valores de $k_{eff}$ para armazenagem de combustíveis nucleares.....	142
Tabela 5.2 – Configurações geométricas adotadas para análise de criticalidade.....	143
Tabela 5.3 – Criticalidade para lotação da piscina de armazenagem temporária calculada pelo código SCALE 6.0.....	145
Tabela 5.4 – Criticalidade para ocupação relativa da piscina de armazenagem calculada pelo código SCALE 6.0.....	147
Tabela 6.1 – Propriedades físicas dos materiais da piscina de armazenagem.....	152
Tabela 6.2 – Fluxos de calor e condições de contorno.....	152
Tabela 6.3 – Taxa de aumento da temperatura média da água ( $R_T$ ) nas piscinas de	

armazenagem em $t = 0$ calculada pelo código ANSYS Student.....	160
Tabela 6.4 – Taxa de aumento da temperatura média da água ( $R_T$ ) nas piscinas de armazenagem em $t = 10$ anos calculada pelo código ANSYS Student.....	162
Tabela 6.5 – Temperatura de saturação na superfície dos <i>canisters</i> calculada pelo código ANSYS Student.....	164

**LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS**

ABWR – Advanced Boiling Water Reactor  
ACR – Advanced CANDU Reactor  
ADS – Accelerator Driven System  
AGR – Advanced Gas-Cooled Reactor  
BWR – Boiling Water Reactor  
CANDU – Canada Deuterium Uranium Reactor  
CEA – Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives  
CERN – Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire  
CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear  
DIAMEX – Diamide Extraction  
DOE – US Department of Energy  
ENS – European Nuclear Society  
EPR – European Pressurized Reactor  
ESBWR – Economic Simplified Boiling Reactor  
GANEX – Group Actinide Extraction  
GFR – Gas Cooled Fast Reactor  
GWe – Gigawatt Elétrico  
IEA – International Energy Agency  
INL – Idaho National Laboratory  
kg – quilograma  
kWh – quilowatt-hora  
L - litro  
LFR – Lead Cooled Fast Reactor  
LLW – Low Level Waste  
LWR – Light Water Reactor  
Mev – Mega Elétron-Volt  
MIT – Massachusetts Institute of Technology  
MOX – Mixed Oxide Fuel  
MPa – Mega Pascal  
MWe – Mega Watt -Elétrico  
MJ – Mega Joule  
MSFR – Molten Salt Fast Reactor



MSR – Molten Salt Reactor

NEI – Nuclear Energy Institute

NERAC – Nuclear Energy Research Advisory Committee

ppm – partes por milhão

PUREX – Plutonium Uranium Reduction and Extraction

PWR – Pressurized Water Reactor

SANEX – Selective Actinide Extraction

SCWR – Supercritical Water Cooled Reactor

SFR – Sodium Cooled Fast Reactor

TRISO – TRIstructural ISOtropic

TRUEX – Transuranic Extraction

TWR – Traveling Wave Reactor

UNEX – Universal Extraction

UREX – Uranium Extraction

VHTR – Very High Temperature Reactor

WWER – Water-Water Energetic Reactor

WNA – World Nuclear Association

## SUMÁRIO

<b>1 INTRODUÇÃO .....</b>	<b>18</b>
<b>2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA .....</b>	<b>22</b>
<b>2.1 Reatores nucleares .....</b>	<b>22</b>
2.1.1 <i>Descrição histórica .....</i>	<i>22</i>
2.1.2 <i>Evolução da tecnologia dos reatores .....</i>	<i>24</i>
<b>2.2 Classificação dos reatores nucleares segundo o espectro de energia dos nêutrons</b>	<b>30</b>
<b>2.3 Pressurized water reactor (PWR) .....</b>	<b>32</b>
<b>2.4 Very high temperature reactor (VHTR) .....</b>	<b>36</b>
<b>2.5 Accelerator driven system (ADS) .....</b>	<b>42</b>
2.5.1 <i>Componentes de um ADS.....</i>	<i>45</i>
2.5.1.1 <i>O espectro de nêutrons .....</i>	<i>45</i>
2.5.1.2 <i>O combustível .....</i>	<i>46</i>
2.5.1.3 <i>O alvo de spallation.....</i>	<i>46</i>
2.5.1.4 <i>O refrigerante .....</i>	<i>49</i>
2.5.1.5 <i>O acelerador de partículas.....</i>	<i>51</i>
<b>2.6 Códigos computacionais utilizados.....</b>	<b>52</b>
2.6.1 <i>Código computacional ORIGEN 2.1 .....</i>	<i>52</i>
2.6.2 <i>Código computacional SCALE 6.0 .....</i>	<i>56</i>
2.6.3 <i>Código ANSYS.....</i>	<i>59</i>
<b>2.7 Ciclo do combustível nuclear .....</b>	<b>63</b>
<b>2.8 Métodos de reprocessamento de combustíveis nucleares.....</b>	<b>64</b>
2.8.1 <i>Método UREX+ .....</i>	<i>67</i>
2.8.2 <i>Método GANEX.....</i>	<i>68</i>
<b>3 SISTEMAS ANALISADOS.....</b>	<b>70</b>
<b>3.1 Combustível do reator PWR.....</b>	<b>70</b>
<b>3.2 Combustível do reator VHTR .....</b>	<b>71</b>
<b>3.3 Combustível do sistema ADS .....</b>	<b>75</b>
<b>4 ANÁLISE DA COMPOSIÇÃO E DOS PARÂMETROS DE DECAIMENTO DOS COMBUSTÍVEIS .....</b>	<b>81</b>
<b>4.1 Composição.....</b>	<b>81</b>
4.1.1 <i>Composição do combustível do reator PWR .....</i>	<i>85</i>
4.1.2 <i>Composição do combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>) .....</i>	<i>87</i>
4.1.3 <i>Composição do combustível do reator VHTR (Th-TU) .....</i>	<i>89</i>
4.1.4 <i>Composição do combustível do sistema ADS .....</i>	<i>91</i>
<b>4.2 Radioatividade .....</b>	<b>93</b>
<b>4.3 Radiotoxicidade por ingestão.....</b>	<b>104</b>
<b>4.4 Radiotoxicidade por inalação .....</b>	<b>116</b>

4.5 Calor de decaimento .....	129
<b>5 ESTUDO DA CRITICALIDADE DOS COMBUSTÍVEIS DOS SISTEMAS .....</b>	<b>142</b>
5.1 Descrição dos modelos .....	142
5.2 Cálculo da criticalidade para lotação da piscina de armazenagem .....	145
5.3 Cálculo da criticalidade para ocupação relativa da piscina de armazenagem .....	147
<b>6 ANÁLISE TÉRMICA DOS COMBUSTÍVEIS DOS SISTEMAS .....</b>	<b>149</b>
6.1 Descrição dos modelos .....	150
6.1.1 <i>Modelagens da piscina de armazenagem através do módulo CFX do código ANSYS Student</i> .....	150
6.1.2 <i>Modelagem do repositório geológico através do módulo Transiente Térmico do código ANSYS Student</i> .....	153
6.2 Análise dos resultados dos estudos térmicos .....	158
6.2.1 <i>Evolução da temperatura da piscina de armazenagem</i> .....	158
6.2.2 <i>Evolução da temperatura na superfície dos canisters de combustível no repositório geológico calculada pelo código ANSYS Student</i> .....	163
<b>7 CONCLUSÕES E TRABALHOS FUTUROS.....</b>	<b>165</b>
<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....</b>	<b>168</b>
<b>APÊNDICE A .....</b>	<b>178</b>

## 1 INTRODUÇÃO

Os reatores nucleares têm sido utilizados na geração de energia elétrica em escala comercial desde a metade final da década de 1950, quando em 1957 entrou em operação a planta nuclear de Shippingport, no estado americano da Pennsylvania (STACEY, 2007). Atualmente, há 442 plantas nucleares em funcionamento em 31 países no mundo, com uma capacidade de geração de energia elétrica instalada de 384 GWe e mais 66 plantas estão em construção em 16 países com uma capacidade de produção prevista de 65 GWe (ENS, 2016). Além disso, a matriz nuclear colabora com aproximadamente 11% da demanda global de energia elétrica (WNA, 2016a).

Comparativamente, as plantas nucleares produzem, anualmente, um volume médio de rejeitos nucleares correspondentes a 2.100 toneladas métricas contra as 320.000 toneladas métricas de poluentes lançados na atmosfera pela queima de carvão mineral das usinas termoelétricas (WNA, 2016a) (NEI, 2016). Há estudos que indicam que os custos, tanto para produção de energia, como para gerenciamento de rejeitos, quando se comparam as matrizes nucleares e os combustíveis fósseis, dependendo do processo e das exigências regulatórias locais, podem ser estimados pela metade para a via nuclear em relação aos custos requeridos pelas fontes fósseis (TSYPLENKOV, 1993) (LIDSKY et al., 1998) (MARI, 2014).

A despeito desses números, a utilização da tecnologia dos reatores nucleares tem que lidar com uma série de questionamentos relativos à produção, manejo, transporte e estocagem do material nuclear irradiado (ADAMANTIADES et al., 2009). Isso, porque, após o processo de fissão do material combustível, são gerados isótopos transurânicos e produtos de fissão que são altamente radiotóxicos, podendo causar danos à saúde de animais e humanos, além de provocarem prejuízos ao meio ambiente. A natureza e quantidade desses isótopos radiotóxicos irá depender de uma série de fatores, destacando-se a composição inicial do combustível, o nível de potência de funcionamento da instalação e o tempo de operação da planta nesse nível de potência (TSOULFANIDIS, 2013).

De acordo com alguns autores (LAKE, 2002) (KESSLER, 2002) o emprego de reatores nucleares na geração de energia no futuro estará condicionado ao cumprimento de alguns pressupostos de natureza econômica e também do ponto de vista da sustentabilidade e segurança do ciclo do combustível nuclear. Segundo esses autores, tais demandas implicam

que a tecnologia nuclear tenha que preencher alguns requisitos como: evitar o esgotamento dos recursos naturais em curto prazo; produção em escala extremamente reduzida de substâncias radiotóxicas ou com baixo potencial de risco para o meio ambiente, pessoas e animais; minoração da extensão dos danos em caso de um acidente mais severo; redução substancial do tempo de periculosidade dos rejeitos de alta atividade através da queima do plutônio e da transmutação dos actínídeos menores e dos produtos de fissão de longa-vida e precaução com relação à proliferação de armas nucleares (KESSLER, 2002).

Por isso, estudos que analisem a composição de combustíveis nucleares irradiados são essenciais, pois, além de determinarem a presença e quantidade dos radioisótopos mais relevantes em uma amostra, podem produzir conhecimento sobre a evolução desse combustível, bem como dos parâmetros fundamentais para o correto manejo e estocagem do material. Além disso, novas tecnologias de sistemas nucleares inovadores têm sido propostas visando a eficiência, a segurança e a competitividade econômica do ciclo do combustível nuclear; assim, avanços do conhecimento sobre esse assunto podem ser vitais para a consolidação dessas tecnologias, principalmente pelo fato de que as mesmas, em geral, focam os seus esforços em técnicas de reprocessamento, reciclagem e regeneração de combustíveis nucleares.

Nesse sentido, os reatores de Geração IV, também conhecidos como sistemas inovadores, podem apresentar-se como uma boa opção a esses questionamentos (LAKE, 2002). Primeiro, pelo fato de que a maioria desses equipamentos opera, ou pode operar, através do ciclo fechado do combustível. Isto, por si só, se constitui em vantagem, uma vez que, essa opção de utilização do material combustível visa a eficiência no uso dos recursos e também propicia uma redução significativa no volume de rejeitos produzidos por reatores nucleares (MOUROGOV et al., 2002). Em adição, segundo algumas pesquisas (KESSLER, 2002) (BROEDERS, 1997) (BOWMAN, 1999) (WADE, 2002), o emprego de sistemas inovadores tem-se demonstrado mais adequado para os processos de queima do plutônio e transmutação de actínídeos menores e produtos de fissão de longa-vida.

Assim, com o propósito de contribuir com o entendimento da evolução de combustíveis nucleares irradiados, notadamente combustíveis oriundos de sistemas inovadores, já que a literatura disponível é limitada em avaliações desse tipo, ou existem estudos com enfoques diferentes ou menos abrangentes; com o papel desempenhado pelos

isótopos de actínídeos e produtos de fissão no comportamento desses combustíveis e na possibilidade de participar na mudança de paradigmas que norteiam a armazenagem e deposição de materiais nucleares, esta pesquisa foi realizada.

Neste trabalho, foram investigados os combustíveis provenientes de quatro sistemas nucleares diferentes: um PWR (reator de água pressurizada) e um VHTR (reator refrigerado a gás a alta temperatura), ambos carregados com dióxido de urânio ( $UO_2$ ). Um reator VHTR com combustível reprocessado pelo método *UREX+* e, por último, um ADS (sistema híbrido de acelerador subcrítico), alimentado com combustível reprocessado pela técnica *GANEX*. Parâmetros como a radioatividade, a radiotoxicidade por ingestão e inalação e o calor de decaimento foram calculados pelo código *ORIGEN 2.1*. Em adição, foram feitos estudos de criticalidade desses combustíveis em um repositório temporário através do código *SCALE/KENO-V.a*. Para a análise térmica foi considerado que todos os combustíveis queimados estavam inseridos em piscinas de água, para se avaliar o comportamento da temperatura ao longo do tempo e, posteriormente, se analisou o armazenamento desses combustíveis em *canisters* depositados em repositórios geológicos. Esses dois últimos estudos foram realizados usando o código *ANSYS Student*. A ideia principal deste trabalho é, tomando como padrão o combustível de um reator PWR, comparar o comportamento dos combustíveis queimados nos sistemas inovadores, quando inseridos em repositórios temporários ou finais, projetados para PWR.

Os objetivos deste trabalho são:

- Analisar a composição e o comportamento de combustíveis nucleares irradiados em sistemas inovadores, VHTR e ADS, fazendo uma comparação dos mesmos com um combustível irradiado em um reator PWR típico e entre si;
- Investigar a influência dos actínídeos (maiores e menores) e produtos de fissão sobre parâmetros como a radioatividade, a radiotoxicidade e o calor de decaimento, que são muito relevantes para a armazenagem e deposição de combustíveis nucleares em repositórios temporários ou permanentes;
- Analisar a criticalidade de combustíveis provenientes de sistemas nucleares inovadores, VHTR e ADS, dentro de repositórios temporários, observando a

pertinência desses valores com relação às normas nacionais de estocagem de combustíveis irradiados;

- Estudar a evolução térmica de combustíveis irradiados em sistemas inovadores dentro de repositórios de armazenagem de combustíveis irradiados, investigando os possíveis desdobramentos decorrentes da falha do sistema de refrigeração externa;
- Estudar a evolução térmica de combustíveis irradiados em sistemas inovadores dentro de *canisters* metálicos depositados em repositórios geológicos, investigando a saturação térmica decorrente do calor de decaimento desses combustíveis;
- Contribuir como uma fonte de dados e informações para projetos de piscinas ou repositórios secos temporários e nos repositórios permanentes, em função da variação da composição final decorrente da evolução da queima dos combustíveis e de seus respectivos comportamentos após sua retirada do reator ou sistema de irradiação.
- Constituir uma fonte de dados e informações úteis no desenvolvimento de novas pesquisas relacionadas ao emprego de sistemas inovadores e na evolução da tecnologia de combustíveis nucleares, principalmente pelas possíveis mudanças no perfil dos reatores e, por consequência, no inventário do material armazenado.

Para apresentar esquematicamente a pesquisa desenvolvida, o presente trabalho está dividido em sete capítulos. No capítulo 1 é apontado o foco do estudo, a justificativa da execução da pesquisa e os objetivos que se espera alcançar. No capítulo 2 é feita uma revisão bibliográfica dos temas pertinentes ao arcabouço teórico do trabalho. No capítulo 3 é explicada a metodologia que levou à obtenção das composições dos combustíveis estudados e como foram feitos os cálculos de interesse deste trabalho. No capítulo 4 é feita a análise dos resultados obtidos pelos cálculos do código ORIGEN 2.1 para a evolução dos combustíveis estudados, bem como dos parâmetros de interesse desta pesquisa. No capítulo 5 é descrito um estudo da criticalidade dos combustíveis de cada sistema dentro de um repositório temporário e ainda, a pertinência desses valores em relação às normas brasileiras para estocagem de combustíveis irradiados. No capítulo 6 é feita a análise do comportamento térmico desses materiais dentro de uma piscina de combustível queimado e de um repositório geológico permanente. Por fim, no capítulo 7 são apresentadas as conclusões e considerações finais desta pesquisa.

## 2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

### 2.1 Reatores nucleares

#### 2.1.1 Descrição histórica

O termo *reator nuclear* se refere a equipamentos nos quais reações de fissão nuclear em cadeia controladas podem ser mantidas. Em tais equipamentos, os nêutrons são usados para induzir as reações de fissão nuclear em núcleos mais pesados. Esses núcleos de fissão produzem núcleos mais leves (fragmentos de fissão), acompanhados da liberação de energia (aproximadamente 200 MeV por evento) e dois a três nêutrons adicionais. Os nêutrons liberados podem então ser utilizados para induzir mais reações de fissão, gerando uma cadeia de eventos de fissão (DUDERSTADT and HAMILTON, 1976).

A história do advento dos reatores nucleares está inequivocamente ligada à descoberta do elemento urânio em 1789, pelo químico alemão Martin Klaproth, que homenageou o planeta Urano ao nomear o elemento que havia descoberto. Em 1895, o físico alemão Wilhelm Conrad Rontgen descobriu a radiação ionizante, ao passar uma corrente elétrica através de um tubo de vidro no qual fora feito vácuo e produzindo radiação eletromagnética no comprimento de onda dos raios X. Em 1896, o físico francês Antoine Henri Becquerel percebeu que minérios de urânio emitiam radiações que provocavam o surgimento de borrões escuros em placas de filmes fotográficos. Ele demonstrou que esse efeito era devido à emissão de partículas  $\alpha$  (núcleos de átomos de hélio duplamente ionizados) e  $\beta$  (elétrons de alta energia). Em 1900, o físico e químico francês Paul Ulrich Villard descobriu um terceiro tipo de emissão radioativa que foi denominada radiação  $\gamma$  e que, em essência, tinha a mesma natureza dos raios X (WNA, 2014).

As décadas subsequentes foram extremamente produtivas no estudo da estrutura da matéria, propiciando a aquisição de conhecimentos que permitiriam o estabelecimento da tecnologia dos reatores nucleares. Por exemplo, em 1911, o químico inglês Frederick Soddy descobriu que os elementos que são naturalmente radioativos possuem diferentes radioisótopos, todos com as mesmas características químicas. Nesse mesmo ano, o físico-químico húngaro George Charles de Hevesy demonstrou que os radionuclídeos poderiam ser



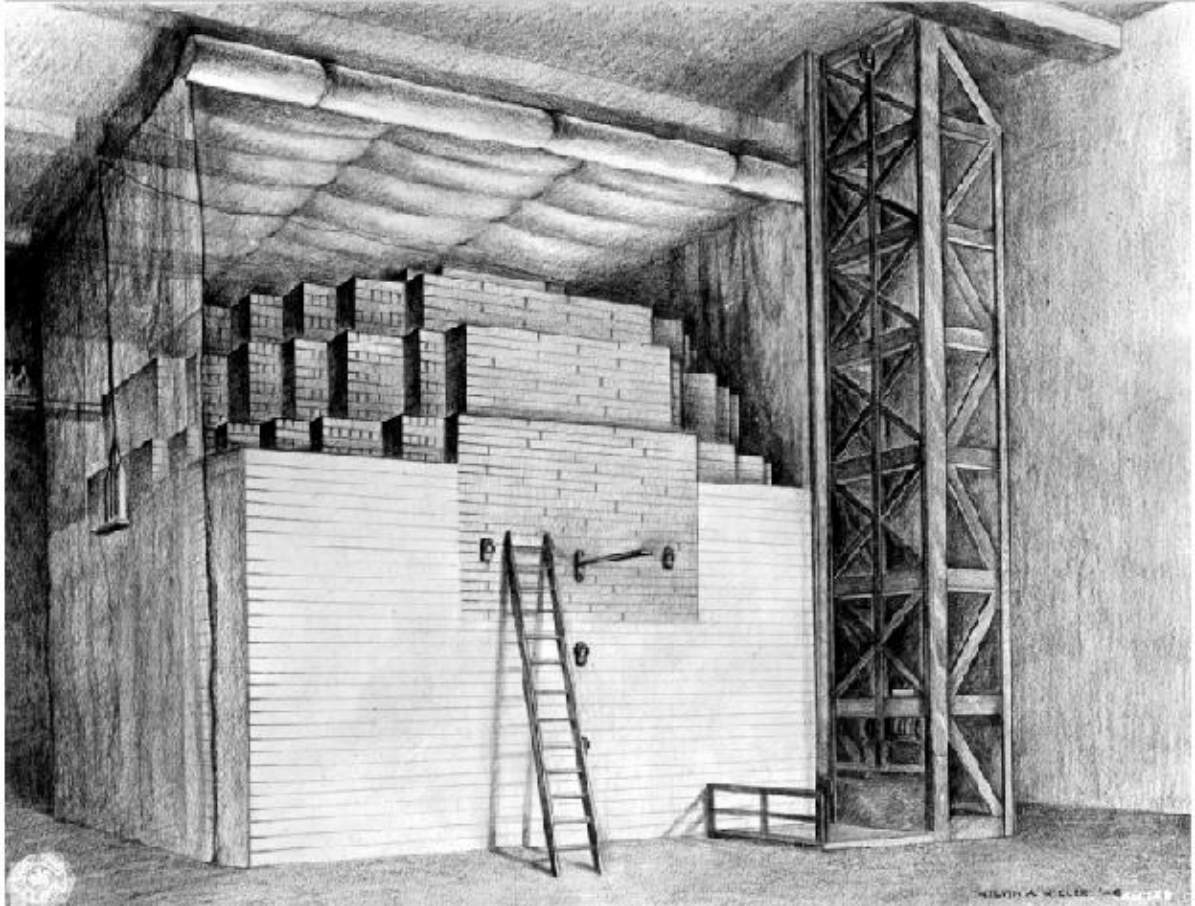
utilizados como traçadores, pois, ainda que em quantidades mínimas, eram detectados por instrumentos relativamente simples (WNA, 2014).

Em 1932, os físicos John Douglas Cockcroft e Ernest Thomas Sinton Walton realizaram o primeiro processo de transmutação nuclear artificial ao bombardear átomos com prótons acelerados (WNA, 2014). Em 1934, os físicos franceses Irène Joliot-Curie e Frédéric Joliot demonstraram que alguns desses isótopos obtidos artificialmente possuíam propriedades radioativas (JOLIOT-CURIE, 1966). Na sequência, em 1936, o físico italiano Enrico Fermi observou que uma variedade maior de radionuclídeos era produzida quando as partículas utilizadas no processo eram nêutrons.

Outras pesquisas que colaboraram decisivamente com a construção da tecnologia dos reatores nucleares continuaram a ser desenvolvidas. Em 1938, os químicos alemães Otto Hahn e Friedrich Wilhelm Strassmann realizaram experimentos que demonstraram que átomos mais leves, como o bário e outros, poderiam ser obtidos quando átomos de urânio eram bombardeados com nêutrons. Esse experimento foi extremamente relevante, pois, através dele, descobriu-se o processo de fissão nuclear, o mecanismo mais utilizado no funcionamento dos reatores. Nesse mesmo ano, os físicos alemães Lise Meitner e Otto Robert Frisch propuseram que a captura de um nêutron pelo núcleo atômico do urânio produziria uma instabilidade nuclear que desencadearia o fissionamento desse núcleo em duas partes não simétricas. Eles realizaram cálculos para determinar a energia liberada por cada evento de fissão e encontraram o valor de 200 MeV. Em 1939, através de experimentos, Frisch confirmou a validade de seus cálculos teóricos (DOE, 1994).

O grande divisor de águas na história dos reatores nucleares ocorreu no final do ano de 1942. Na manhã do dia 02 de dezembro daquele ano, uma equipe de cientistas, sob o comando de Enrico Fermi, estava pronta para dar o *startup* no primeiro reator nuclear artificial do mundo. No subsolo do antigo estádio Alonzo Stagg da Universidade de Chicago havia uma pilha de blocos de grafite, que funcionavam como moderadores de nêutrons, devidamente colocados ao redor de outra pilha de blocos de urânio e dióxido de urânio (UO<sub>2</sub>). Essa montagem rudimentar foi batizada de Chicago Pile-1 (CP-1) e era o primeiro reator construído pelo homem. Precisamente às 09h54min, a partida do reator foi dada, quando Fermi ordenou que as precárias barras de controle fossem retiradas aos poucos. Às 15h25min, Fermi informou à equipe que a criticalidade havia sido atingida e o reator assim permaneceu

pelos próximos vinte e oito minutos. Esse experimento foi a primeira reação nuclear artificial autossustentada da história e a humanidade entrava na era nuclear (WNA, 2014) (DOE, 1994). A figura 2.1 mostra uma concepção artística do reator CP-1.



**Figura 2.1 – Concepção artística do reator Chicago Pile-1 (CP-1).**

Fonte: University of Chicago Libray Archive, 2016.

### ***2.1.2 Evolução da tecnologia dos reatores***

Desde a criticalidade do Chicago Pile-1, a tecnologia dos reatores nucleares evoluiu bastante e passou por muitas transformações. Vários foram os fatores que colaboraram e que têm influenciado o emprego e desenvolvimento desses equipamentos. Destacam-se: a relação custo-eficiência, a segurança, as características de não-proliferação, a adequação da rede de distribuição, o planejamento de comercialização (incluindo construtividade e licenciamento) e a gestão do ciclo do combustível (GOLDBERG et al., 2011).

A relação custo-eficiência considera que para o consumidor final o preço de 1 kWh gerado por um reator nuclear é “indistinguível” de 1kWh gerado por uma fonte fóssil ou renovável. O que importa nesse caso é a competitividade econômica. Assim, por esse critério, interessa a definição de políticas e iniciativas que tornem a matriz nuclear mais competitiva que as demais matrizes energéticas, bem como as ações que fomentem o financiamento de futuras instalações. Com relação aos aspectos de segurança, a incorporação de procedimentos passivos que permitam a manutenção da integridade da planta devem ser considerados ao se propor o projeto de uma instalação em detrimento de sistemas que dependam de intervenção humana. Políticas de não-proliferação também devem ser implementadas. As medidas devem contemplar ações que minimizem riscos de roubo ou atos terroristas utilizando material nuclear, além das potenciais ameaças que eventualmente possam ser patrocinadas pelo Estado através da proliferação de armas nucleares (GOLDBERG et al., 2011).

O conjunto de redes de distribuição, local e nacional, deve ser dimensionado para receber a energia disponibilizada por uma planta nuclear a ser instalada. A adequação das redes de distribuição deve considerar a capacidade nominal da instalação e possíveis externalidades que venham ocorrer em virtude da rede elétrica previamente existente. Os impactos da rede de distribuição sobre os requisitos financeiros e a viabilidade econômica em longo prazo, não devem ser negligenciados ao se propor a construção de um reator nuclear. O planejamento de comercialização também é vital para o projeto e construção de uma planta nuclear. A adoção de uma fonte energética alternativa, historicamente, tem sido um processo evolutivo e gradual, sem mudanças radicais ou rompimentos abruptos. Transições repentinas entre sistemas de fornecimento de energia têm-se demonstrado inviáveis por uma série de fatores, sobretudo do ponto de vista econômico e financeiro. No roteiro de comercialização, os prazos de implantação devem ser plausíveis, uma vez que, no contexto atual, são imperativas as exigências dos mercados de processos de curto prazo. Nesse sentido, aquelas tecnologias que já foram testadas e implantadas ou, em última instância, as tecnologias que estão em estágios mais adiantados de implantação são mais susceptíveis ao êxito (KESSIDES, 2010) (GOLDBERG et al., 2011).

Dentro do escopo desta pesquisa, a gestão do ciclo do combustível é o fator mais relevante quando se trata do planejamento e projeto de uma planta nuclear. Os detalhes do ciclo do combustível de um reator nuclear são elementos críticos na determinação dos níveis de riscos quando se considera a integridade do sistema, os aspectos de segurança e até mesmo

o financiamento do projeto (GOLDBERG et al., 2011). É importante salientar que se entende como ciclo do combustível nuclear uma série de processos industriais que envolvem a geração de energia elétrica a partir da utilização de minérios em reatores nucleares. O ciclo do combustível nuclear começa com a extração do minério do solo, passa por uma série de beneficiamentos industriais e termina com a estocagem dos rejeitos em um repositório final (COCHRAN et al., 1999).

O tema da gestão eficiente do ciclo do combustível nuclear enseja que estudos e pesquisas sejam feitos de modo que se consiga a máxima utilização dos recursos energéticos para que volumes menores de rejeitos demandem por estocagem. Além do aspecto da quantidade, o ciclo do combustível deve administrar outras demandas intrínsecas da operação de reatores nucleares, como a emissão de calor e a radiotoxicidade. A política de estocagem de rejeitos de combustíveis nucleares deve ser o fruto de uma pesquisa robusta e inovadora, que leve ao desenvolvimento de um programa de gestão do ciclo do combustível em alto nível.

Quando se observa a evolução dos reatores nucleares à luz dos fatores previamente discutidos, é usual categorizá-los por gerações. Têm-se as Gerações I, II, III, III<sup>+</sup> e IV. A figura 2.2 mostra um diagrama que ilustra a evolução dos reatores nucleares segundo as respectivas gerações. Os reatores de Geração I incluem os protótipos e os primeiros reatores de potência destinados a finalidades civis. Uma característica marcante desses equipamentos era que, em sua concepção, não havia previsão para que se pudessem ser feitas atualizações nos mesmos de forma a se permitir alterações em seu nível de potência. Os reatores das plantas de Shippingport (USA) e Calder Hall-1 (UK) são exemplares dessa geração.

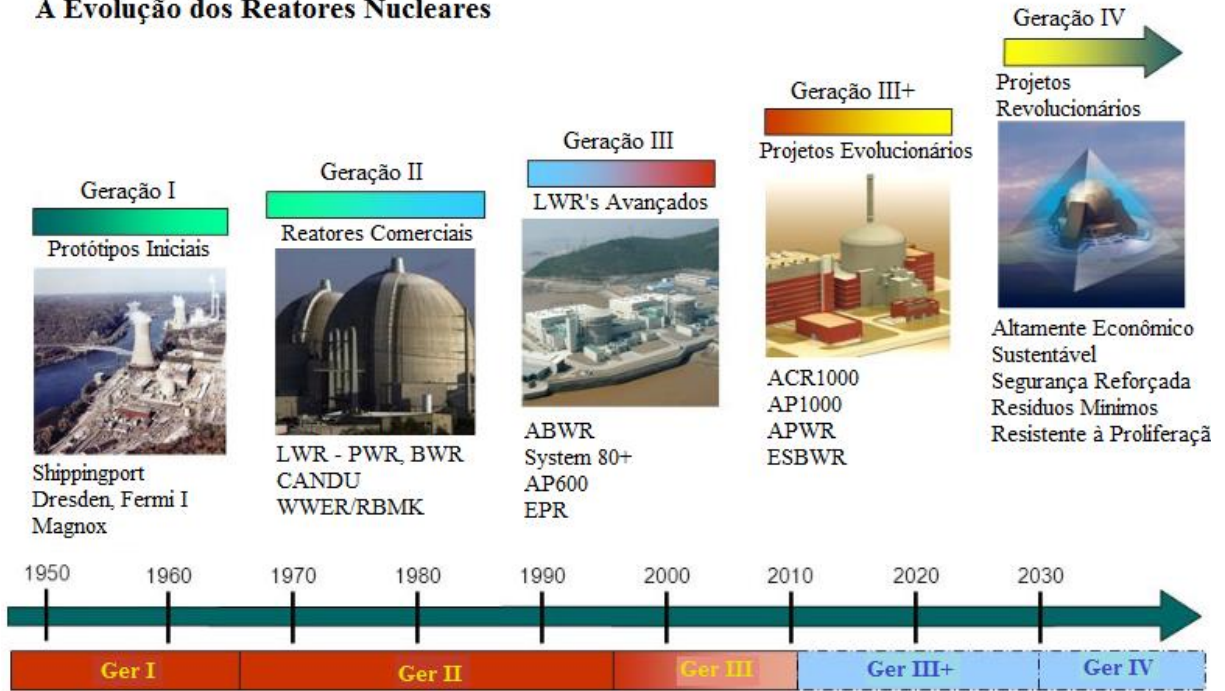
Os reatores de Geração II constituem um grupo de equipamentos projetados com a finalidade de serem economicamente viáveis e confiáveis. Esses equipamentos têm sido designados para operar por um tempo médio de 40 anos. Nesta geração estão incluídos todos LWR's (PWR's e BWR's), CANDU's, AGR's e WWER's. Cronologicamente, esses reatores entraram em operação nos anos finais da década de 1960. Uma característica marcante dessa geração é a presença de sistemas de segurança ativa, compostos por aparatos mecânicos ou elétricos, que podem ser acionados pelos operadores do reator ou, em alguns casos, automaticamente (GOLDBERG et al., 2011).

Os reatores de Geração III são equipamentos bem semelhantes à Geração II, porém, com melhorias em sua concepção. As principais características evolucionárias desses equipamentos em relação à geração anterior são: melhorias na tecnologia de combustíveis, eficiência térmica, construção modularizada, sistemas de segurança (particularmente com o uso de dispositivos passivos) e padronização de configuração. A combinação dessas melhorias tem por objetivo levar esses equipamentos a operarem por um tempo superior a 60 anos. São exemplares dessa geração de reatores os *Advanced Boiling Water Reactors* (ABWR's).

A Geração III<sup>+</sup> é composta por reatores que apresentam uma evolução em seu perfil, sobretudo no aspecto da segurança. O desenvolvimento dessa geração de reatores começou na década de 1990, através da ação combinada de americanos, japoneses e europeus. O emprego de processos passivos de segurança em alguns exemplares dessa geração, sem a presença de controles ativos ou a intervenção de operadores, mas sim, através ação da gravidade ou da convecção natural, de modo a reduzir o efeito de imprevistos, tem contribuído para acelerar os processos de certificação desses reatores e também reduzir a previsão de tempo para a instalação dos equipamentos. São representantes desta geração de reatores os ACR's, EPR's e ESBWR's (PIORO, 2016).

Os reatores de Geração IV têm as mesmas características dos reatores de Geração III<sup>+</sup>, porém, com a adição de características extremamente particulares, como por exemplo, ao operar em altas temperaturas, produzir hidrogênio, gerenciamento avançado de actínídeos e dessalinização de água. A proposta para o desenvolvimento desses equipamentos inovadores foi lançada em 1999, quando um grupo de nove nações se uniu com o objetivo de alcançarem uma tecnologia nuclear que estivesse em conformidade com as exigências da indústria e da sociedade em geral no século XXI e que pudesse ser atingida até o ano de 2040. Esse grupo de países, formado por Argentina, Brasil, Canadá, França, África do Sul, Coreia do Sul, Japão, Reino Unido e Estados Unidos se congregaram para formar o GIF – *Generation IV International Forum*, que tem por objetivo principal concentrar esforços para a aquisição e consolidação de uma tecnologia nuclear desse nível. No ano de 2002, seis sistemas nucleares inovadores foram selecionados pelos membros do GIF para se constituírem como embriões no desenvolvimento dessa tecnologia: SFR, LFR, GFR, MSR, VHTR e SCWR (PIORO, 2016). A tabela 2.1 mostra as características e os parâmetros de operação dos sistemas nucleares de Geração IV em desenvolvimento atualmente.

**A Evolução dos Reactores Nucleares**



**Figura 2.2 – Diagrama da evolução dos reatores (adaptado).**

Fonte: NERAC, 2002.

**Tabela 2.1 – Características e parâmetros de operação de sistemas nucleares de Geração IV em desenvolvimento.**

Características e Parâmetros de Funcionamento							
Reator	Nêutron	Refrigerante	Temperatura (°C)	Pressão	Combustível	Ciclo	Potência (MWe)
GFR	rápido	hélio	850	alta	U-238	fechado	1200
LFR	rápido	chumbo/ chumbo- bismuto	480-570	baixa	U-238	fechado	20-180 300- 1200 600-100
MSFR	rápido	fluoretos	700-800	baixa	UF	fechado	1000
MSR	térmico	fluoretos	750-1000		UO <sub>2</sub>	aberto	1000- 1500 30-150
SFR	rápido	sódio	500-550	baixa	U-238 MOX	fechado	300- 1500 1000- 2000 300-700
TWR	rápido	sódio	~ 510	baixa	U-235 U-238	aberto	400- 1500
SCWR	térmico/ rápido	água	510-625	muito alta	UO <sub>2</sub>	aberto (térmico) fechado (rápido)	1000- 1500
VHTR	térmico	hélio	900-1000	alta	UO <sub>2</sub>	aberto	250-300

Fonte: WNA, 2016b.

## 2.2 Classificação dos reatores nucleares segundo o espectro de energia dos nêutrons

Há diferentes critérios através dos quais os reatores nucleares podem ser classificados, mas, o principal deles é a distribuição de energia dos nêutrons que são utilizados nas reações de fissão nuclear ou espectro (STACEY, 2007). Segundo esse critério, os reatores podem ser classificados em lentos ou rápidos.

Os reatores lentos (ou térmicos) são aqueles em que os nêutrons que provocam as reações de fissão estão na faixa térmica ( $E \approx 0,025$  eV). Nêutrons na faixa térmica de energia fissionam alguns poucos núcleos de átomos, que são chamados de núcleos físseis, entre esses se destacam os isótopos  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ . No entanto, apenas o isótopo  $^{235}\text{U}$  é encontrado na natureza (LAMARSH et al., 2001).

Os reatores classificados como rápidos são aqueles em que os nêutrons que fissionam os núcleos têm altas energias ( $E > 1$  MeV). Os isótopos que sofrem interações de nêutrons rápidos são chamados férteis. Os principais isótopos férteis encontrados naturalmente são  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{U}$  (traços) e  $^{238}\text{U}$ . Entre os isótopos obtidos artificialmente devem ser citados  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{240}\text{Pu}$ . As figuras 2.3 a 2.5 mostram as seções de choque de fissão para os principais isótopos naturais utilizados em combustíveis de reatores nucleares,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ . Percebe-se que, de acordo com as faixas de energia, a probabilidade de ocorrência de eventos de fissão aumenta ou diminui para cada um dos isótopos.

As figuras 2.3 a 2.5 também corroboram com o que se espera para o comportamento diferenciado de isótopos físseis e férteis em função da energia dos nêutrons incidentes. Como se vê, a secção de choque de fissão do isótopo  $^{235}\text{U}$  atinge a magnitude de milhares de barns para nêutrons na faixa de energia térmica, enquanto para nêutrons rápidos, atinge apenas algumas dezenas de barns. Para nêutrons incidentes com energias próximas a 1 MeV, as probabilidades de ocorrência de fissão se tornam maiores para os isótopos férteis,  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , como dito anteriormente.



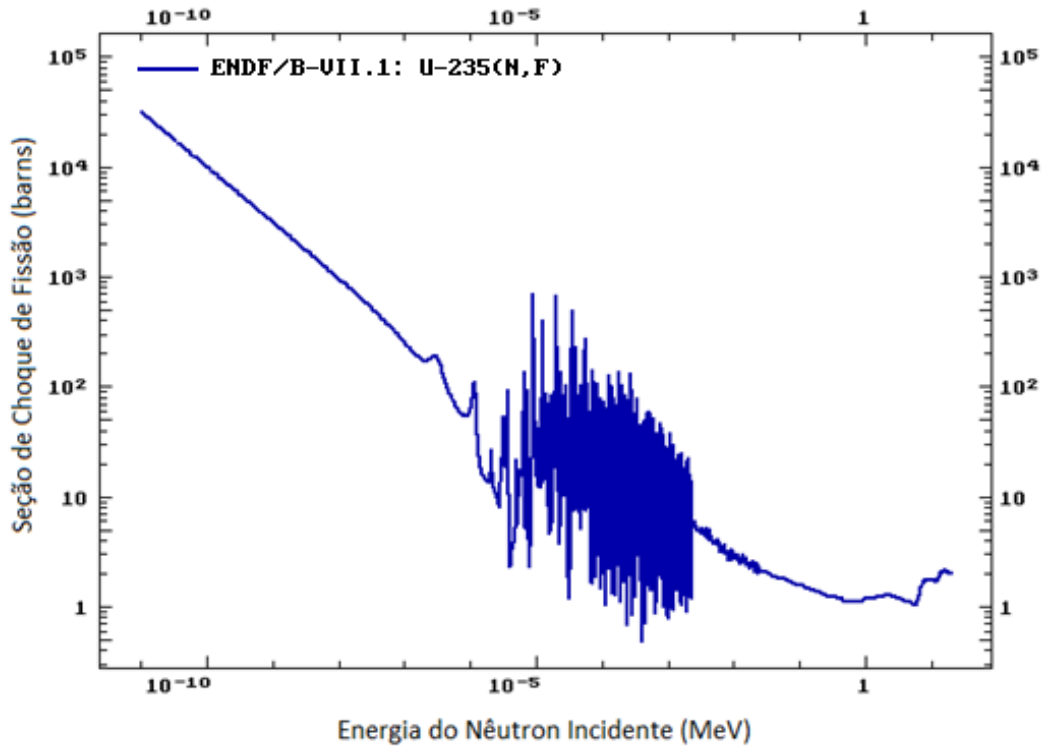


Figura 2.3 – Seção de choque microscópica de fissão do  $^{235}\text{U}$ .

Fonte: IAEA, 2011a.

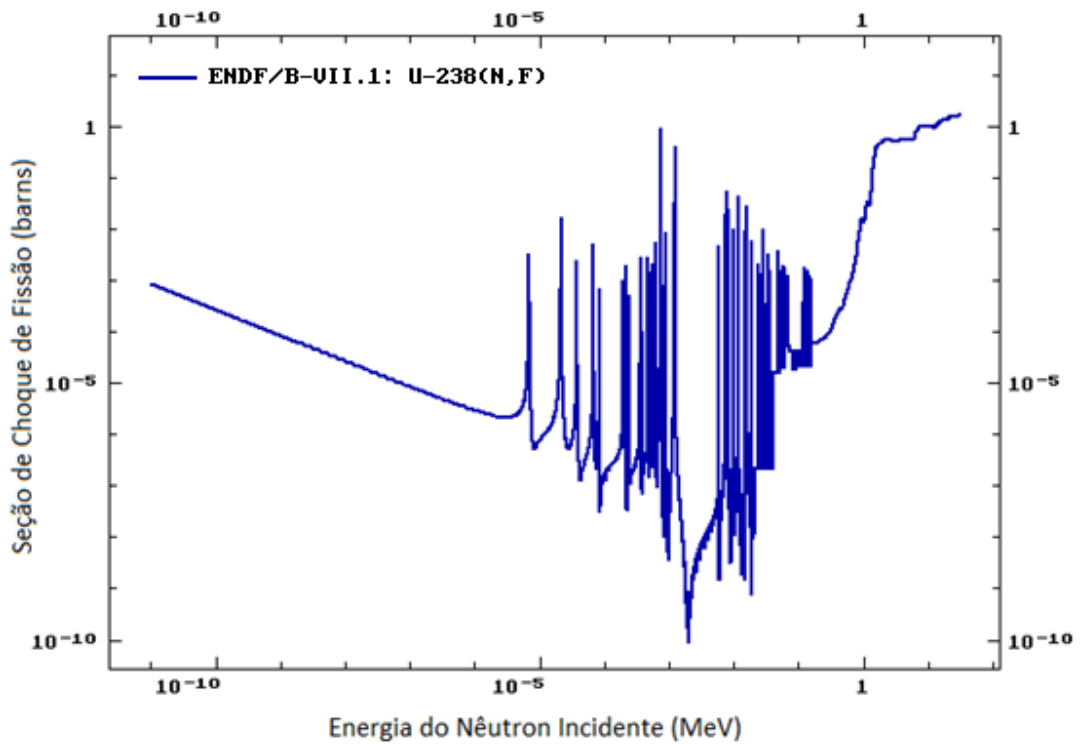


Figura 2.4 – Seção de choque microscópica de fissão do  $^{238}\text{U}$ .

Fonte: IAEA, 2011b.

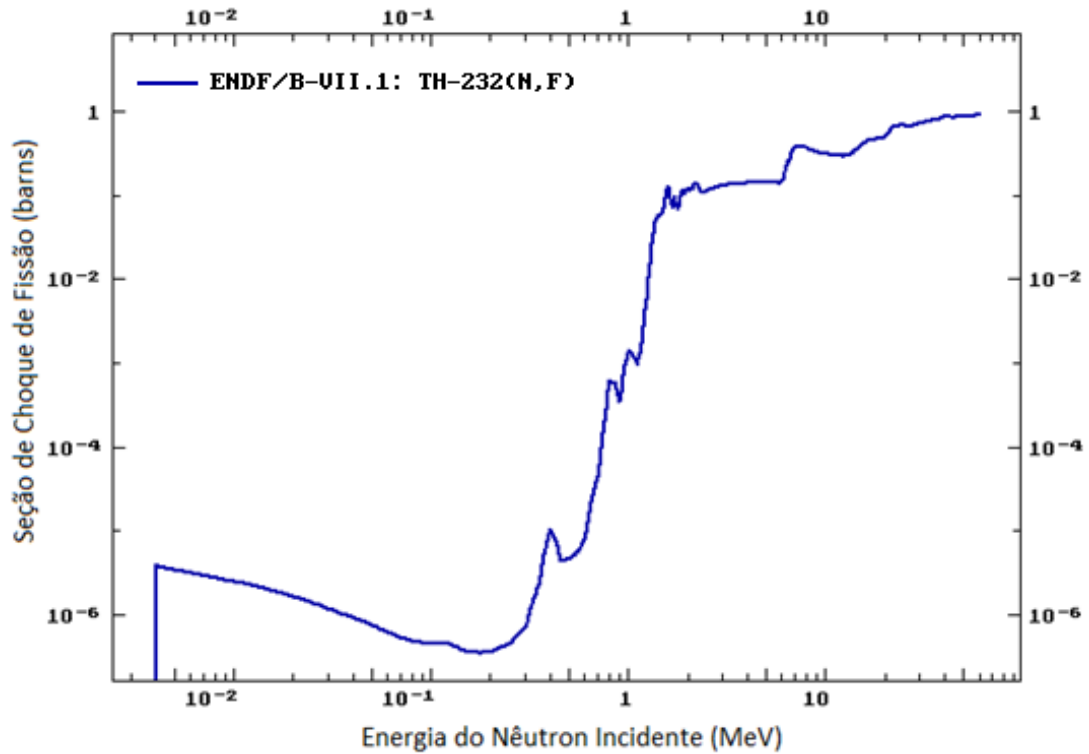
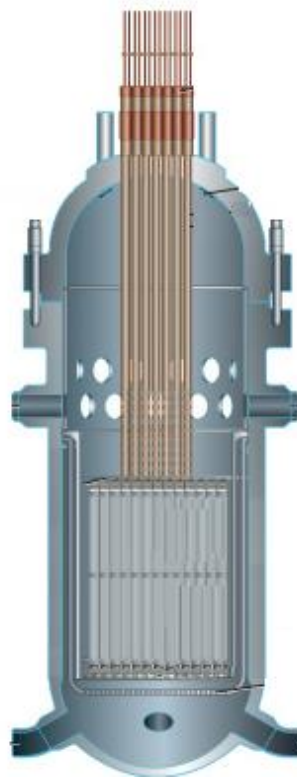


Figura 2.5 – Seção de choque microscópica de fissão do  $^{232}\text{Th}$ .

Fonte: IAEA, 2011c.

### 2.3 Pressurized water reactor (PWR)

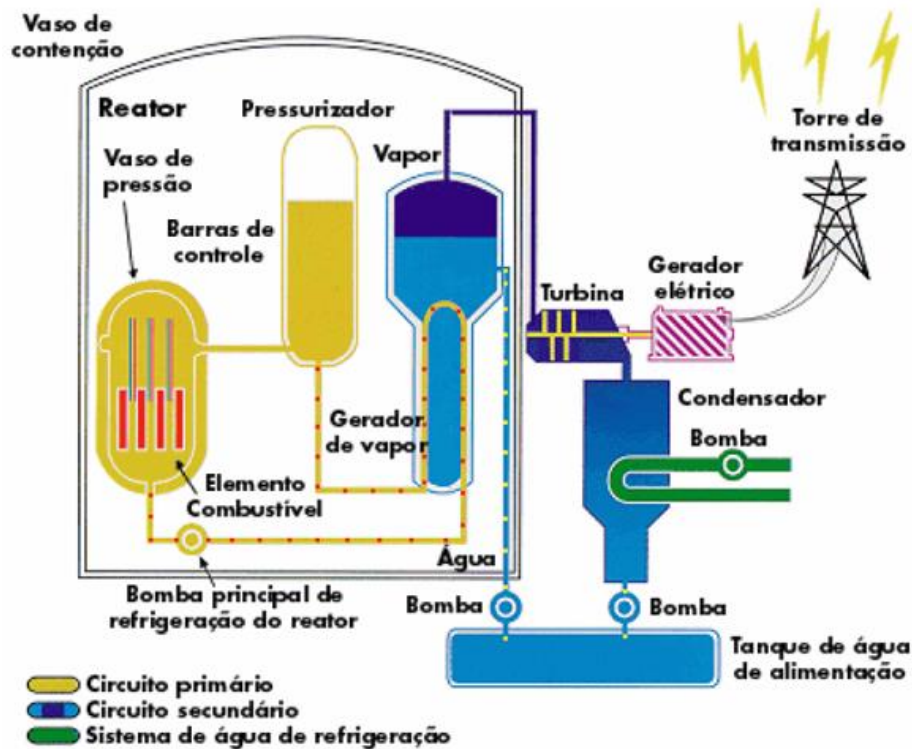
Os reatores de água pressurizada (PWR) estão entre os primeiros modelos de reatores nucleares a serem produzidos em escala comercial no Ocidente. Juntamente com os reatores de água fervente (BWR) e os reatores de água supercrítica (SCWR) formam a família dos reatores de água leve (LWR). Esses reatores utilizam água leve como moderador e refrigerante. Os PWR's se tornaram os reatores nucleares convencionais na propulsão de navios e embarcações (LAMARSH et al., 2001). A figura 2.6 é uma vista em corte longitudinal de um PWR típico.



**Figura 2.6 – Corte longitudinal de um reator PWR.**

**Fonte: Encyclopaedia Britannica, 2016.**

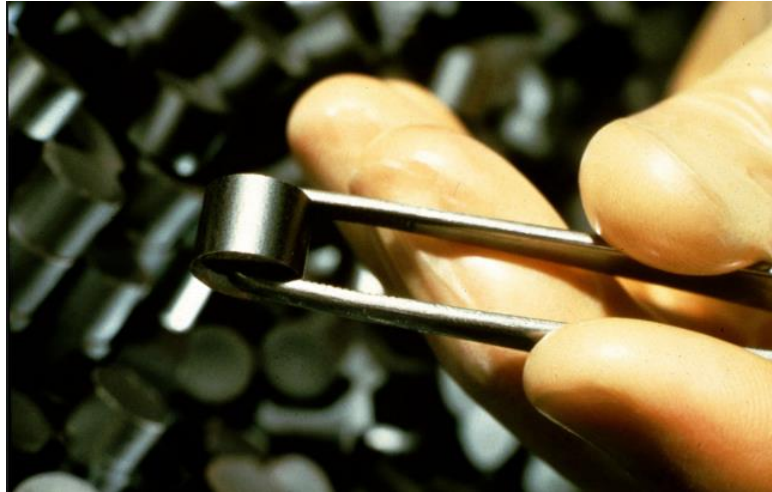
Em um reator PWR a água flui para dentro do vaso de pressão a temperatura de 560 K e, depois de ter sido aquecida, sai do vaso de pressão a temperatura aproximada de 600 K. No interior do vaso a água é mantida a uma pressão elevada, cerca de 15 MPa. Assim, a água não entra em ebulição. Este estágio é conhecido como circuito primário. O circuito secundário é onde o vapor que movimenta as turbinas é produzido. É constituído de um conjunto de tubos ligados externamente ao vaso de pressão. A água sob pressão do circuito primário aquece a água no interior do circuito secundário, gerando uma grande quantidade de vapor. O vapor é conduzido para as turbinas por tubos, e, após o movimento das turbinas, ocorre a produção de energia elétrica através de geradores elétricos ligados à rede de transmissão. No final do circuito secundário existe um condensador onde o vapor é arrefecido e se liquefaz. Através de bombas, a água é conduzida ao gerador de vapor e o processo é renovado. A figura 2.7 mostra uma representação simplificada dos circuitos primário e secundário de um reator PWR.



**Figura 2.7 – Circuitos primário e secundário de um reator PWR.**

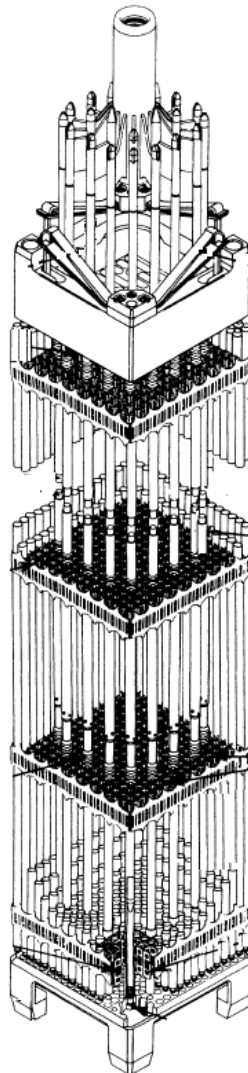
Fonte: ELETRONUCLEAR, 2005.

No núcleo de um PWR, o combustível é constituído por pastilhas de cerâmica, geralmente de dióxido de urânio ( $UO_2$ ), que são acondicionadas em uma barra metálica que as envolve. Atualmente esse revestimento é formado por uma liga metálica de zircônio. As barras de combustível são agrupadas em uma estrutura denominada elemento de combustível. Em geral, um elemento de combustível detém de 15 x 15 a 19 x 19 barras de combustível em sua formação. O número total de barras de combustível dentro do núcleo de um reator PWR pode ser de até 51000 unidades (WESTINGHOUSE, 1984). Na figura 2.8 é possível observar os aspectos geométricos e morfológicos de uma pastilha de combustível, que é a unidade primária do combustível em um reator PWR. A figura 2.9 mostra um elemento de combustível de um PWR. Na tabela 2.2 são indicados alguns parâmetros da barra de combustível desse reator.



**Figura 2.8 – Pastilha de combustível de um reator PWR.**

Fonte: NRC, 2015.



**Figura 2.9 – Elemento de combustível de um reator PWR.**

Fonte: Westinghouse Electric Corporation, 1984.

**Tabela 2.2 – Parâmetros da barra de combustível de um reator PWR.**

Comprimento	365,8 cm
Diâmetro externo	0,914 cm
Espessura do revestimento	0,0572 cm
Material do revestimento	Zircaloy-4
Gap diamétrico	0,0157 cm
Diâmetro da pastilha	0,7844 cm
<i>Lattice pitch</i>	1,260 cm

Fonte: Westinghouse Electric Corporation, 1984.

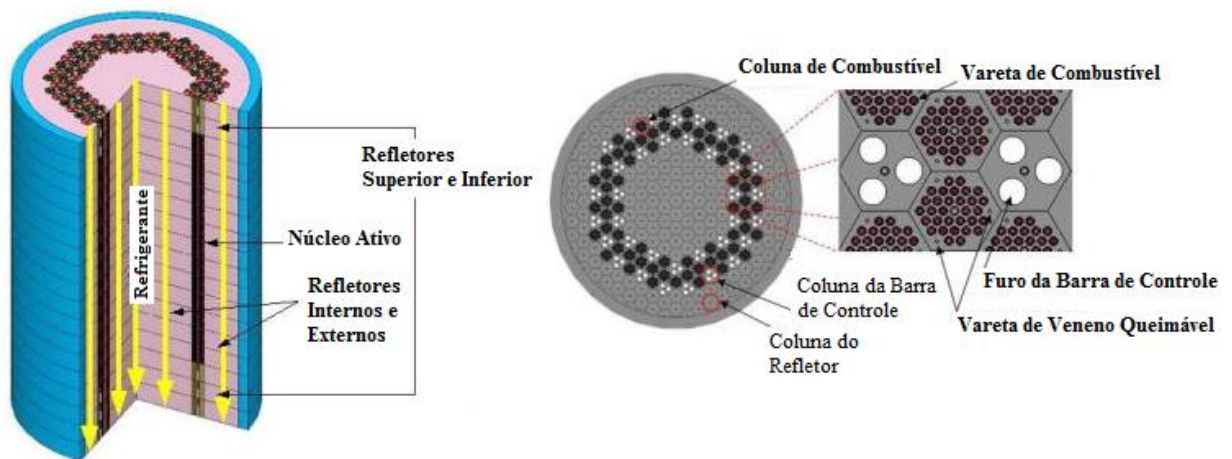
#### 2.4 *Very high temperature reactor (VHTR)*

A terminologia *Very High Temperature Reactor* – VHTR (reator refrigerado a gás de altíssima temperatura) é empregada para designar reatores nucleares cujo refrigerante atinge temperaturas próximo a 1000°C ou mais. Os VHTR se constituem em um passo evolucionário na tecnologia dos reatores refrigerados a gás a alta temperatura, HTGR (CHAPIN et al., 2004). A história dos reatores refrigerados a gás começa em outubro de 1956 com a inauguração da planta nuclear de Calder Hall, Inglaterra. Esses primeiros reatores eram moderados com grafite e tinham como refrigerante gás carbônico; o combustível era constituído de urânio natural e o revestimento por uma liga de magnésio, por isso, esses equipamentos foram chamados de *Magnox*. A segunda geração de reatores refrigerados a gás foi formada pelos *Advanced Gas Cooled Reactors* – AGR. Estes reatores diferiam da primeira geração por seu revestimento ser de aço inox e pela necessidade de se utilizar o urânio levemente enriquecido devido às perdas causadas pela absorção nessa liga (KASTEN, 1979) (DA SILVA, 2012).

A tecnologia dos reatores VHTR ainda é incipiente e demanda por investigações até seu pleno estabelecimento. No entanto, o prognóstico com relação a esses reatores é extremamente favorável, uma vez que, além do seu emprego na geração de energia elétrica, os VHTR's têm sido apontados como alternativas viáveis para a produção de hidrogênio, dessalinização da água do mar e no fornecimento de calor para a população em geral (CHAPIN et al., 2004) (DA SILVA, 2012).

Em suma, por sua elevada eficiência energética ( $> 50\%$ ), esses reatores têm despontado como uma via muito vantajosa na produção de energia elétrica e calor, se tornando potenciais substitutos para várias tecnologias emissoras de carbono. Por todas essas possibilidades, os VHTR's apresentam as características desejáveis aos modernos reatores de Geração IV. Entre as várias propostas de reatores VHTR, dois modelos se destacam: os reatores de bloco prismático, os quais têm o seu combustível em forma de barras e os reatores do tipo leito de bolas ou esferas, conhecidos como VHTR *pebble bed*.

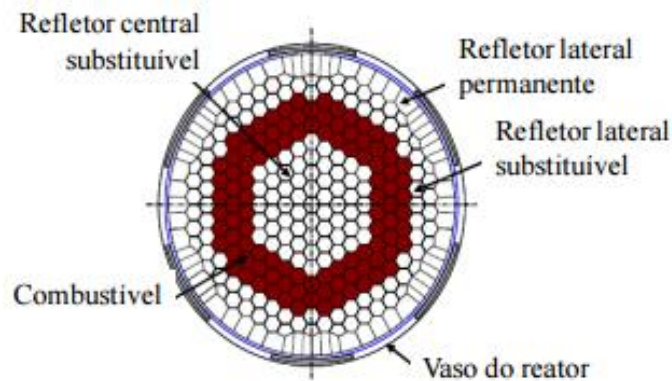
Um reator VHTR do modelo prismático tem em seu núcleo alguns blocos hexagonais de grafite com a finalidade de funcionarem como moderadores e refletores de nêutrons. Há também outros blocos do mesmo material que formam o núcleo ativo do reator. Nesses blocos há canais nos quais as barras de combustível são depositadas e por onde também o fluido refrigerante circula. A altura do núcleo ativo é aproximadamente 7,92 m e há, em média, 102 colunas de combustível. Em geral, os blocos podem ser empilhados em número de 10 unidades, formando assim um total de até 1020 colunas de combustível (CHAPIN et al., 2004). Quando necessário recarregar o núcleo, esses blocos são removidos e unidades novas são colocadas. A figura 2.10 mostra um núcleo hexagonal de um reator VHTR de bloco prismático.



**Figura 2.10 – Núcleo hexagonal de um reator VHTR prismático.**

Fonte: Tsvetkov et al., 2009.

A figura 2.11 representa um corte transversal no núcleo de um reator VHTR do tipo bloco prismático. A tabela 2.3 contém os parâmetros geométricos básicos desse reator. As figuras 2.12 e 2.13 mostram, respectivamente, os elementos que constituem a matriz de combustível utilizada no modelo VHTR de bloco prismático e o recarregamento de um desses reatores.



**Figura 2.11 – Corte transversal de um reator VHTR prismático.**

Fonte: General Atomics, 1996.

**Tabela 2.3 – Parâmetros geométricos básicos de um reator VHTR prismático.**

Altura do núcleo ativo	792 cm
Temperatura de saída	900 a 1200 K
Número de colunas de combustível	102
Número de blocos de combustível na coluna	10
Potência do reator	600 MW <sub>t</sub>
Combustível	UO <sub>2</sub> , ThO <sub>2</sub> , TRU
Diâmetro do canal de combustível	1,270 cm
Distância entre faces paralelas	36,00 cm
Altura dos blocos	79,30 cm
Refrigerante	hélio
Diâmetro do canal do refrigerante	1,588 cm
Material dos blocos refletores	grafite
Raio do vaso de pressão	353,0 cm
Material do vaso de pressão	aços SA508 e SA533

Fonte: Taiwo et al., 2005.





Figura 2.12 – Elementos da matriz de combustível de um VHTR de bloco prismático.

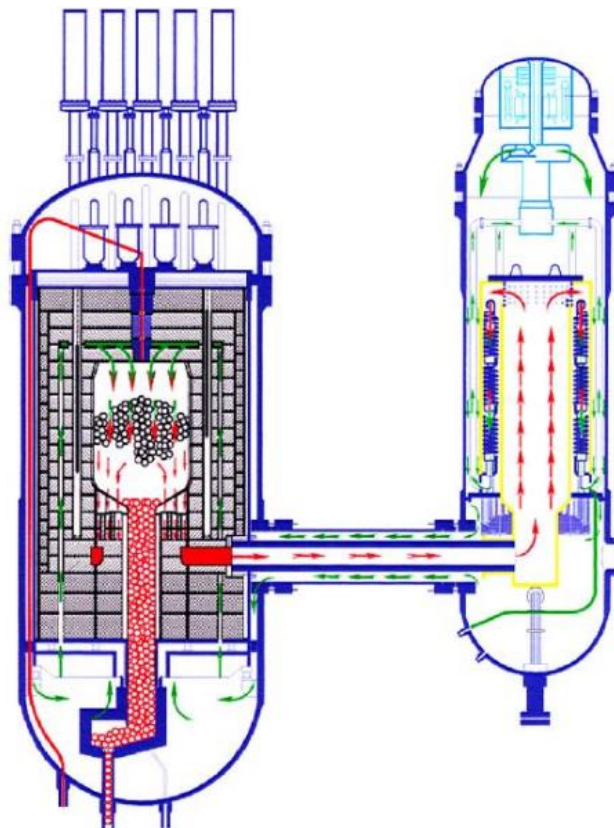
Fonte: INL, 2010.



Figura 2.13 – Recarregamento do VHTR de bloco prismático em Fort Saint Vrain.

Fonte: Kallman, 2013.

A geometria de um reator VHTR *pebble bed* não é muito distinta de um modelo de núcleo prismático, porém, há algumas diferenças entre os equipamentos (CHAPIN et al., 2004). No modelo *pebble bed* os blocos que acomodam o combustível são substituídos por esferas de combustível que têm o tamanho aproximado de uma bola de tênis. Essas esferas se movimentam no interior do núcleo pela ação da gravidade e, quando chegam ao fundo, têm a sua queima medida; aquelas esferas que estejam em condições retornam ao núcleo e as esferas esgotadas (*depleted*) são conduzidas a um repositório. À semelhança do modelo prismático, os conjuntos de refletores internos e externos são formados por blocos estáticos. Essa configuração facilita o manejo do combustível, porém, demanda pela substituição dessas peças em algum momento. Embora o manejo do reator *pebble bed* seja um pouco mais dispendioso, esse modelo tem a grande vantagem de ser recarregado em funcionamento. As duas propostas desses reatores possuem barras de controle e de segurança; no modelo *pebble bed* há a possibilidade de se inserir esferas absorvedoras que permitem o desligamento do equipamento no caso de uma emergência. Na figura 2.14 é mostrado um reator VHTR *pebble bed*.

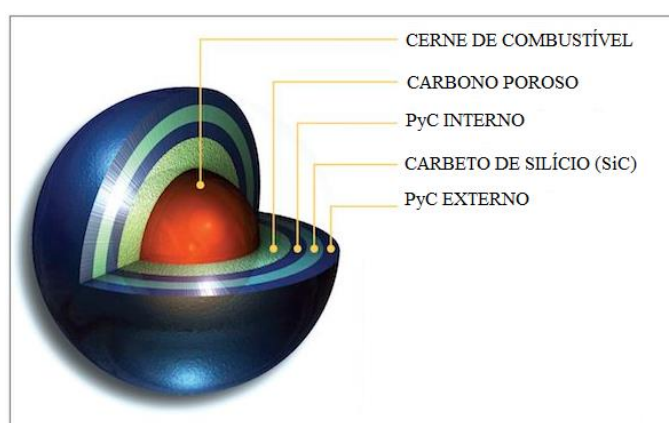


**Figura 2.14 – Reator VHTR *pebble bed*.**

Fonte: Center for Environment, Commerce & Energy, 2011.

Para ambos os modelos de reatores VHTR tem-se utilizado no combustível as partículas *TRISO*. Essas partículas têm sido muito empregadas em reatores Geração IV, especialmente para aqueles que operam em altas temperaturas. Suas principais vantagens são a manutenção da integridade do combustível, mesmo quando expostas a grande quantidade de calor e a capacidade de conter os gases que podem ser emitidos por produtos de fissão (STERBENTZ, 2007) (DEL CUL et al., 2002). Aliás, essa característica permite que o vaso de pressão de um reator VHTR seja menos robusto que o vaso de pressão de um LWR (CHAPIN et al., 2004).

Uma partícula *TRISO* consiste, basicamente, de um cerne esférico de 350  $\mu\text{m}$  de diâmetro de oxycarbeto de urânio ( $\text{UC}_{0,5}\text{O}_{1,5}$ ) ou de dióxido de urânio ( $\text{UO}_2$ ) coberto por múltiplas camadas de carbeto. Dependendo do tipo de reator, o cerne pode ser composto pelo óxido de algum isótopo físsil ou fértil, conforme cada caso. A primeira camada de cobertura é relativamente espessa, com 100  $\mu\text{m}$  de espessura e densidade de  $1,0 \text{ g/cm}^3$ . É composta de grafite e tem por finalidade absorver a energia cinética dos fragmentos de fissão e conter os gases dos produtos de fissão e elementos voláteis. A segunda camada é um revestimento de grafite pirolítico (PyC) de 35  $\mu\text{m}$  de espessura e densidade de  $1,9 \text{ g/cm}^3$ . A camada seguinte é constituída por carbeto de silício (SiC), tem 35  $\mu\text{m}$  de espessura e densidade de  $3,2 \text{ g/cm}^3$ . Sua função é conter possíveis migrações de produtos de fissão e apresentar alta força de resistência ao movimento de partículas. A camada final também é de grafite pirolítico (PyC), tem 40  $\mu\text{m}$  de espessura e densidade de  $1,87 \text{ g/cm}^3$ . A figura 2.15 mostra uma ilustração em corte de uma partícula *TRISO* (STERBENTZ, 2007).



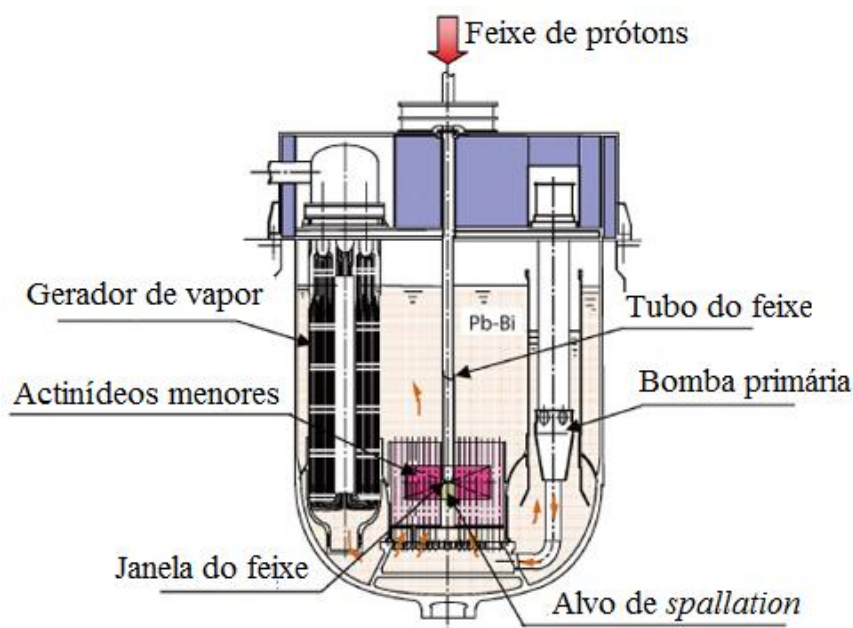
**Figura 2.15 – Partícula *TRISO* mostrada em corte.**

Fonte: Lee et al., 2013.

## 2.5 Accelerator driven system (ADS)

O combustível irradiado em reatores convencionais tem muitos radionuclídeos que decaem ao longo de uma escala de tempo muito extensa. Entre esses nuclídeos os produtos de fissão e os actinídeos de longa-vida (e.g. neptúnio, amerício e cúrio) são extremamente relevantes devido a seus potenciais de radiotoxicidade. Por exemplo, os isótopos transurânicos de longa-vida constituem aproximadamente um por cento da massa do material combustível irradiado; no entanto, após mil anos, a sua radiotoxicidade pode ser até vinte mil vezes maior do que a radiotoxicidade dos produtos de fissão (KAPOOR, 2002). Portanto, o desenvolvimento de tecnologias que tornem possível reduzir o volume destes radionuclídeos é extremamente desejável, especialmente no manejo e deposição destes rejeitos (MASCHEK et al., 2003).

Neste sentido, o *Accelerator Driven System* – ADS (sistema subcrítico impulsionado por acelerador) tem-se apresentado como uma boa proposta para a transmutação de radioisótopos em combustíveis irradiados e também para a regeneração de tório (BARROS, 2014) (KAPOOR, 2002). Basicamente, um sistema ADS é formado por um acelerador de partículas acoplado a um núcleo de reator subcrítico. Quando o acelerador emite um feixe de partículas carregadas de alta energia, geralmente prótons, esse feixe atinge um alvo que, por reações de *spallation*, libera várias outras partículas, entre essas há nêutrons que são empregados para manter a fissão em cadeia no núcleo do reator. Na maioria dos casos são utilizados elementos pesados como o tungstênio, o tântalo e o chumbo na constituição desses alvos. Quando comparados com os reatores críticos tradicionais, os ADS apresentam muitas vantagens, destacando-se: a baixa produção de actinídeos de vida média-longa, a eficiência na transmutação de actinídeos menores e baixa pressão do sistema (WNA, 2015) (BARROS, 2014). Ademais, os sistemas ADS são muito seguros do ponto de vista da criticalidade; isso porque, o fluxo de nêutrons produzido pelo *spallation* é dimensionado para manter a subcriticalidade durante toda a operação e, em adição, como uma fonte suplementar de nêutrons para manutenção da reação, com seu desligamento, o processo se encerra, mantendo-se o padrão de segurança (BARROS, 2014). Na figura 2.16 é feita uma representação simplificada de um sistema ADS.



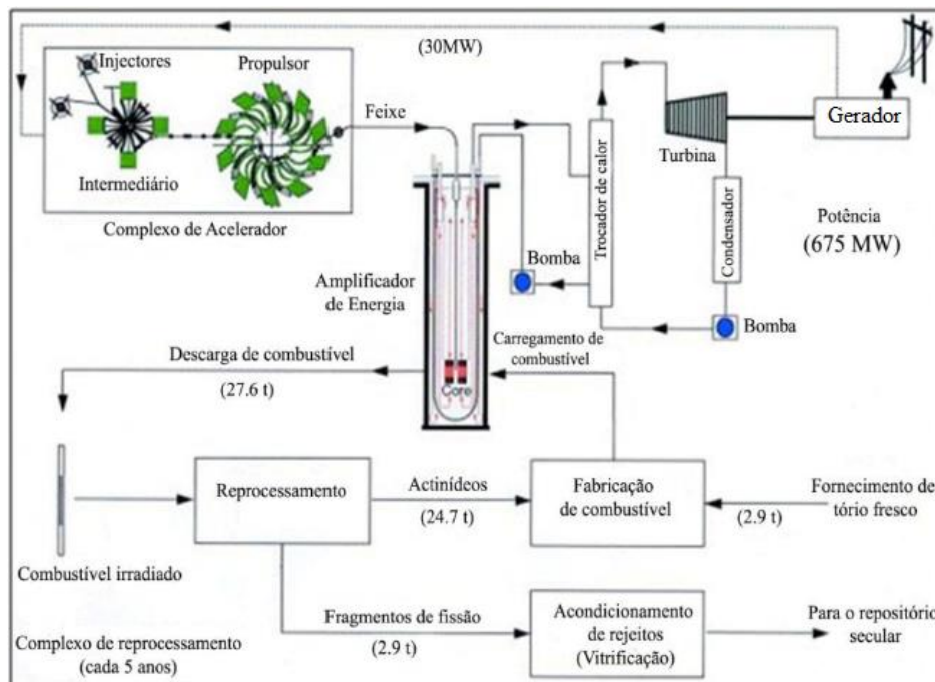
**Figura 2.16 – Esquema de um sistema ADS.**

Fonte: JAEA, 2006.

A cronologia dos ADS começa no início da década de 1940, quando já era sabido que o bombardeio do urânio por partículas pesadas, como prótons e deutérios, produziria nêutrons e que tais nêutrons poderiam ser utilizados na conversão de isótopos férteis em físséis. Já em 1941, Glenn Seaborg conseguiu produzir plutônio através de um processo artificial em um acelerador de partículas (BARROS, 2014) (EUROPEAN TECHNICAL WORKING GROUP ON ADS, 2001). Entre 1950 e 1954, várias iniciativas internacionais foram realizadas com o intuito de se utilizar aceleradores de partículas em processos de conversão e regeneração de combustíveis irradiados. Vale citar o programa *Materials Testing Accelerator (MTA)*, desenvolvido pelo *Lawrence Livermore Laboratory*; concomitantemente, houve uma iniciativa canadense, estimulada por Lewis, para produção de nêutrons através de *spallation* no cíclotron de McGill (EUROPEAN TECHNICAL WORKING GROUP ON ADS, 2001). Na década de 1960, prosseguiu o interesse pelo tema. Lawrence patenteou um acelerador de partículas que tinha por objetivo utilizar o urânio natural e o tório para se obter os isótopos físséis  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{233}\text{U}$ , respectivamente. Entre 1975 e 1988, o programa *Fertile-to-Fissile Conversion (FERFICON)*, uma iniciativa multinacional, investigou a dependência dos processos de conversão com os valores de energias até 800 MeV (BARROS, 2014).



Embora todas as propostas anteriores tenham sido apresentadas para o estabelecimento da tecnologia dos ADS, foi na década de 1990 que projetos realmente factíveis foram lançados. Em 1992 Bowman e sua equipe em Los Alamos, lançou um conceito denominado *The Accelerator Transmutation of Waste (ATW)*, que era um modelo operando no ciclo do Th/U e refrigerado por sais fundidos, utilizando nêutrons térmicos. Em 1993 Van Tuyle, no *Brookhaven National Laboratory*, propôs um modelo de ADS que focava a transmutação de rejeitos nucleares e a segurança do sistema. Mas foi em 1993 que C. Rubbia e F. Carminati, integrantes do *Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire (CERN)*, apresentaram um conceito chamado de *Energy Amplifier*, uma proposta que, até hoje, tem destaque na literatura especializada (BARROS, 2014) (RUBBIA et al., 1995) (CARMINATI et al., 1993) (VAN TUYLE et al., 1993) (BOWMAN et al., 1992). Em suma, o *Energy Amplifier* é um dispositivo nuclear subcrítico que opera no ciclo do Th/U, com um acelerador de prótons com feixe de intensidade de 1 GeV diretamente acoplado ao núcleo do reator. Esse núcleo subcrítico é refrigerado por chumbo e alimentado com uma mistura baseada no tório. A proposta do equipamento é a geração de energia com baixa produção de actínidos menores e produtos de fissão de meia-vida longa (EUROPEAN TECHNICAL WORKING GROUP ON ADS, 2001). A figura 2.17 mostra um diagrama da proposta de Rubbia para um projeto de sistema ADS.



**Figura 2.17 – Diagrama da proposta de Rubbia para um sistema ADS.**

Fonte: Rubbia, 1995.

### 2.5.1 Componentes de um ADS

Ainda que haja várias propostas de concepções de sistemas ADS, e as mesmas possuindo inúmeros componentes, basicamente, as partes e elementos constituintes desse tipo de sistema são: o tipo de espectro de nêutrons, o combustível, o alvo das reações de *spallation*, o refrigerante e o acelerador de partículas (BARROS, 2014). Nos itens que se seguem são feitas descrições sucintas de cada um desses elementos.

#### 2.5.1.1 O espectro de nêutrons

Pesquisas e trabalhos acadêmicos (CARMINATI et al., 1993) (BARROS, 2014) têm demonstrado que há limitações quando se usa fluxos de nêutrons térmicos em sistemas ADS que funcionam no ciclo Th/U. Para Carminati, considerando nêutrons térmicos, um ADS que funciona com uma densidade de potência  $q''' = 15 \text{ W/g}$  tem um fluxo ideal igual a  $\phi = 2,7 \times 10^{13} \text{ nêutrons/s.cm}^2$ . Se for considerada a mesma densidade de potência, porém, em um ADS que trabalha na faixa de nêutrons rápidos, o fluxo ideal seria 20 vezes superior. De fato, o fluxo de nêutrons depende de uma série de fatores, destacando-se a natureza dos materiais envolvidos, da fonte emissora de nêutrons e da existência ou não de um material moderador (BARROS, 2014). Outro fator que sinaliza desfavoravelmente para o espectro térmico de nêutrons é a competição entre as reações de fissão e captura radioativa. Para nêutrons térmicos, o fator de reprodução ( $\eta$ ), que determina o número médio de nêutrons produzidos por cada evento de fissão, é  $\eta = 2,29$  para o  $^{233}\text{U}$ ; este valor está muito próximo do limite mínimo ( $\eta = 2$ ) para que haja regeneração. Por outro lado, quando se tem nêutrons rápidos, o valor é  $\eta = 2,5$ . Isso demonstra que nêutrons térmicos são menos eficientes no processo de regeneração. Há também o efeito de dois isótopos,  $^{333}\text{Pa}$  e  $^{135}\text{Xe}$ , que reduzem a reatividade do sistema, pois, devido a suas seções de choque de absorção, competem pelos nêutrons com o material combustível, quando se opera com fluxos térmicos. A ação desses dois isótopos é menos pronunciada quando se trabalha com fluxos de nêutrons rápidos, o que favorece o processo de regeneração.

### 2.5.1.2 O combustível

Os sistemas ADS podem ser alimentados com combustíveis que operam através do ciclo do tório e também, com combustíveis de isótopos transurânicos. Quando se considera o tório é possível explorar a regeneração do combustível. Por outro lado, quando se usa os transurânicos há a possibilidade de se transmutar combustíveis irradiados em reatores convencionais. Ademais, se tem a opção de utilizar combustíveis com estados de agregação diferentes. Os combustíveis sólidos, principalmente óxidos, são bem conhecidos devido seu emprego em LWR's. Contudo, há a questão relativa aos produtos de fissão que não podem ser extraídos com o reator em funcionamento. Esses isótopos comprometem a economia de nêutrons, que por sua vez, afeta a capacidade de regeneração de combustível do reator. Combustíveis líquidos, diluídos em urânio ou tório, principalmente de sais fundidos, permitem o acompanhamento e a retirada desses produtos de fissão; o que proporciona maior capacidade de regeneração e transmutação. Por outro lado, esses equipamentos apresentam exigências de radioproteção mais incisivas, pois, além dos efeitos corrosivos desses sais fundidos, a circulação do líquido em tubos externos ao núcleo, possibilita a exposição aos efeitos de nêutrons oriundos de emissores atrasados, demandando barreiras protetivas e procedimentos de manutenção mais efetivos.

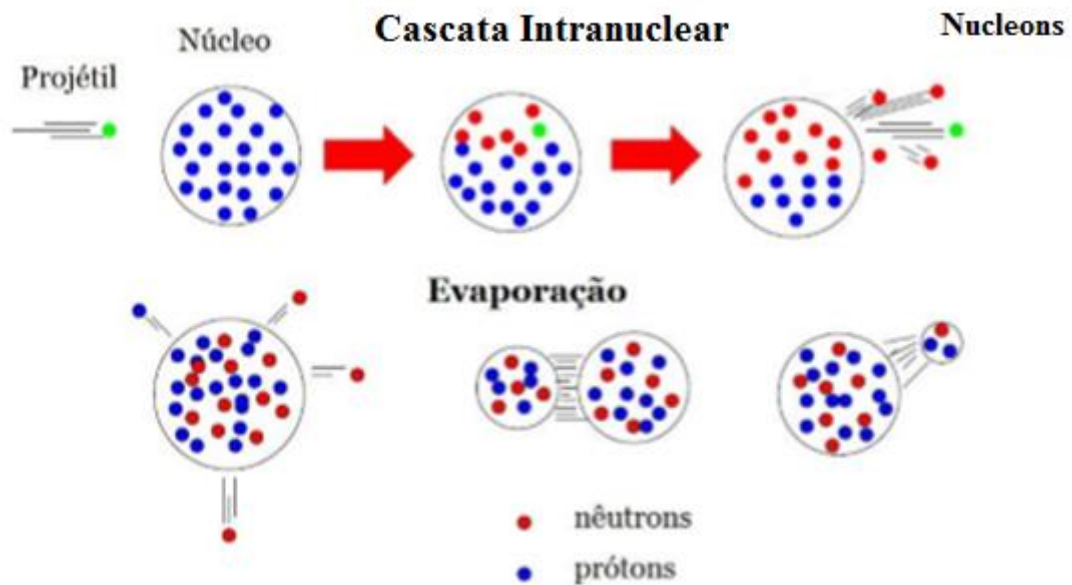
### 2.5.1.3 O alvo de *spallation*

O alvo de *spallation* é, provavelmente, o elemento mais importante em um sistema ADS. Essa afirmação se fundamenta no fato de que o alvo de *spallation* é o elo entre o acelerador de partículas e o núcleo subcrítico do sistema. As reações de *spallation* são processos nucleares onde partículas pesadas carregadas altamente energéticas ( $E \approx 100 \text{ MeV} - 2 \text{ GeV}$ ), como prótons e dêuterons, interagem com núcleos de elementos pesados, provocando a desintegração dos mesmos através da ejeção de seus nucleons (prótons e nêutrons) e com a consequente formação de núcleos mais leves (MURRAY, 2001) (BARROS, 2014).

Em geral, uma reação de *spallation* é composta por dois estágios. O primeiro estágio é conhecido como cascata intranuclear; o nucleon incidente espalha aleatoriamente os nucleons do núcleo alvo e deposita nos mesmos uma fração de sua energia. Essa reação nucleon-nucleon é possível porque a partícula incidente é altamente energética e tem pequeno



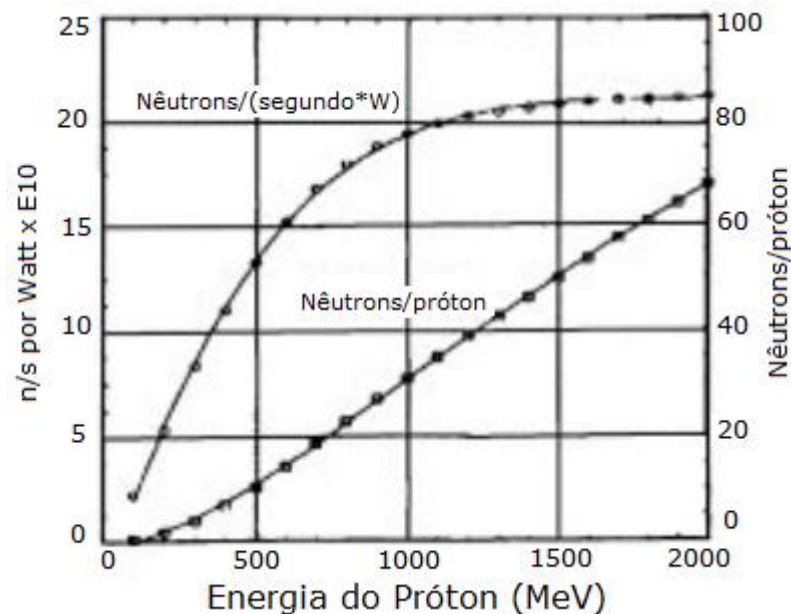
comprimento de onda, lhe permitindo interagir rapidamente com as partículas constituintes do núcleo alvo e propiciando a ejeção das mesmas, entre as quais está uma grande quantidade de nêutrons e, também, a excitação do núcleo residual. No segundo estágio da reação o núcleo instável se desexcitará através de dois processos: evaporação ou fissão. Quando a desexcitação ocorre por evaporação são gerados nucleons ou núcleos mais leves como D, T, He,  $\alpha$ , Li e Be. Esses nucleons irão interagir através de processos menos energéticos. Os prótons de segunda geração poderão, eventualmente, provocar novas reações de *spallation* limitadas a faixa de energia de 100 MeV. Os nêutrons de alta energia poderão induzir reações do tipo (n, xn), enquanto os nêutrons de baixa energia sofrerão sucessivos espalhamentos até deixarem o alvo ou serem capturados. Se no alvo houver algum material físsil, tanto nêutrons como prótons poderão induzir processos de fissão. Caso a desexcitação do núcleo residual ocorra por fissão, serão gerados dois fragmentos excitados de massas assimétricas que irão decair de acordo com as respectivas cadeias de desintegração (BERDEGUEZ, 2012) (MONGELLI et al., 2005). A figura 2.18 representa uma reação de *spallation*.



**Figura 2.18 – Etapas e partículas envolvidas em reação de *spallation*.**

Fonte: Berdeguez, 2012.

A ocorrência das reações de *spallation* aumenta com a energia das partículas incidentes e com a massa do núcleo alvo. De fato, há um limiar de energia que, se não for atingido, inviabiliza a ocorrência da reação. Pesquisas como a de Kapoor, 2002, têm demonstrado que para alvos de chumbo esse limiar está próximo de 1 GeV. A partir dessa energia os prótons incidentes atingem um platô e a eficiência na geração de nêutrons chega à condição ideal. Na energia de 1 GeV, cada próton incidente pode produzir entre 20 e 30 nêutrons por interação. Na figura 2.19 é mostrada a produção de nêutrons por próton incidente e, também, o número de nêutrons gerados como uma função da energia dos prótons constituintes do feixe (KAPOOR, 2002).

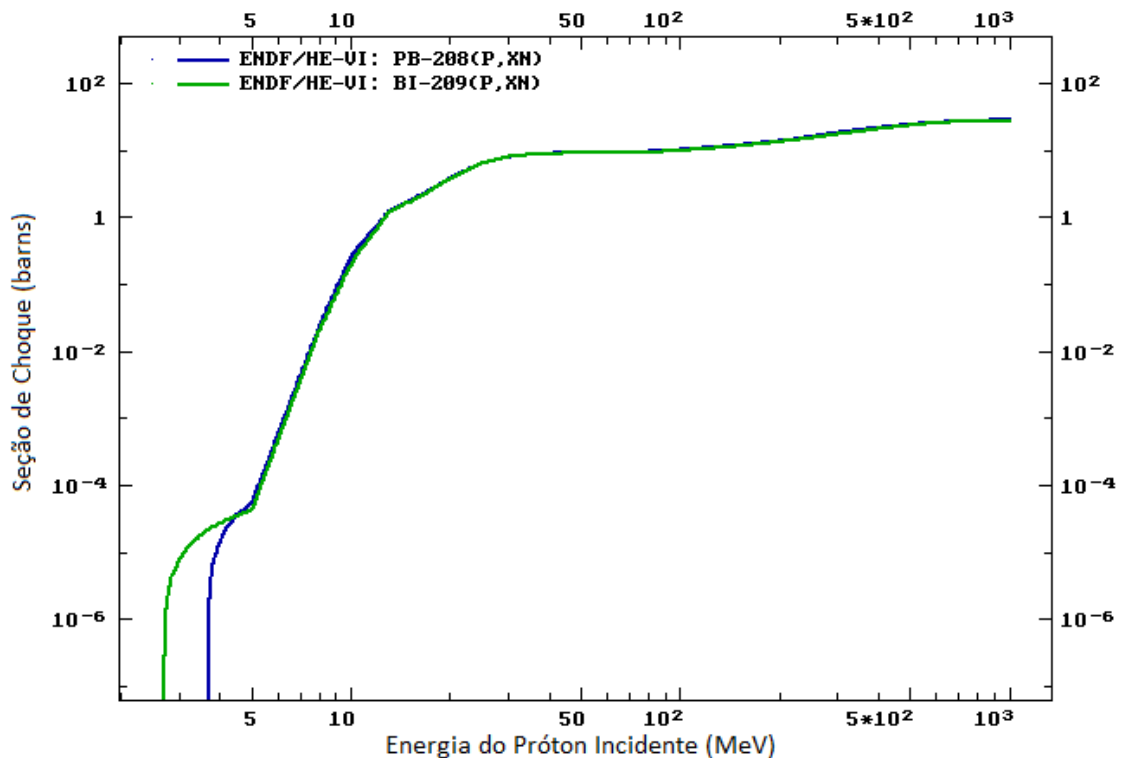


**Figura 2.19 – Rendimento de nêutrons gerados por *spallation* em alvo de chumbo de acordo com a energia do feixe de prótons acelerados.**

**Fonte: European Technical Working Group on ADS, 2001.**

Devido à demanda por nêutrons, somente elementos de número atômico elevado têm sido considerados como alvos de *spallation* em sistemas ADS. Ultimamente, têm sido apresentadas várias propostas que utilizam alvos no estado líquido, em especial, combinações de chumbo-bismuto (BARROS, 2014). De acordo com a figura 2.20 se percebe que os isótopos mais abundantes desses materiais têm seções de choque para reações de *spallation* muito próximas e que, para energias acima de 600 MeV, é atingido o limiar de energia para a reação. A combinação chumbo-bismuto tem-se demonstrado interessante, pois, apresenta uma solução intermediária aos problemas de alta temperatura de liquefação do chumbo, do custo

mais elevado do bismuto e da geração do isótopo  $^{210}\text{Po}$ , que é altamente radioativo e volátil (BARROS, 2014) (NIFENECKER et al., 2003).



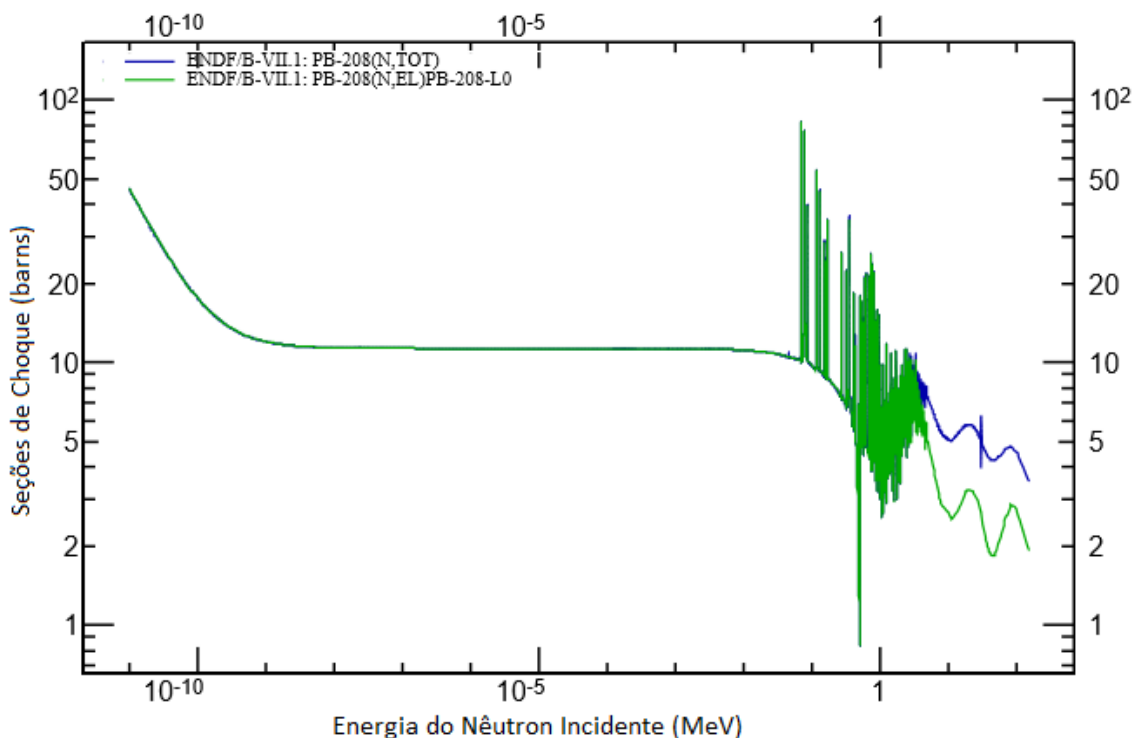
**Figura 2.20 – Seção de choque microscópica de *spallation* para o  $^{208}\text{Pb}$  e  $^{209}\text{Bi}$ .**

Fonte: IAEA, 1997.

#### 2.5.1.4 O refrigerante

Têm sido apresentadas inúmeras propostas de materiais como refrigerantes em sistemas ADS com suas respectivas indicações e desvantagens. Nifenecker et al., 2003 propõem, por exemplo, a utilização de gases a altas temperaturas. Segundo esse autor, elevadas temperaturas gerariam uma alta eficiência térmica com a consequente melhoria na taxa de queima do combustível. No entanto, pesariam contra essa proposta a baixa densidade de potência dos gases e a probabilidade de perda do refrigerante em caso de acidentes. Propostas como a de Rubbia et al., 1995 indicam o chumbo na refrigeração desses sistemas. Entre as vantagens decorrentes do uso do chumbo estariam a pequena seção de choque de absorção de nêutrons; a alta densidade e o bom coeficiente de expansão que facilitariam a transferência de calor por convecção e propiciariam uma alta geração de potência; a capacidade de blindagem do chumbo que reduziria extremamente as taxas de dose de radiação para o ambiente exterior, além de sua baixa eficiência como moderador, devido à pequena

seção de choque para colisões elásticas. Na figura 2.21 são mostradas as seções de choque microscópicas de absorção e para colisões elásticas que endossariam o emprego do chumbo como material refrigerante em um sistema ADS. Porém, em desfavor do chumbo, estaria a dificuldade em mantê-lo no estado líquido e, também, sua alta solubilidade para outros metais, o que poderia provocar desgastes e deterioração de alguns componentes do sistema no decorrer do tempo. Uma alternativa aos inconvenientes no uso do chumbo puro seria o emprego da liga chumbo-bismuto, principalmente, devido à redução na temperatura de trabalho do material. Há ainda propostas como a de Bowman et al., 1992 que indicam sais fundidos como material refrigerante em ADS. As vantagens na adoção de sais fundidos seria o melhor gerenciamento do combustível, propiciando um controle da reatividade e uma economia de nêutrons, gerada pela retirada de venenos do combustível. No entanto, a extração do protactínio e dos produtos de fissão, além da reinserção do combustível, demandariam operações extremamente complexas. Ademais, os sais potencializariam os efeitos de corrosão no sistema e, por serem utilizados como refrigerante e combustível, contaminariam o sistema secundário (BARROS, 2014).



**Figura 2.21 – Seções de choque microscópicas para o  $^{208}\text{Pb}$ .**

Fonte: IAEA, 2011d.

### 2.5.1.5 O acelerador de partículas

Na estrutura de um ADS o acelerador de partículas tem a função de participar na produção de nêutrons secundários que auxiliarão na manutenção do estado de criticalidade do reator. A produção de nêutrons ocorrerá através da colisão das partículas constituintes do feixe com o material do alvo de *spallation* e sua eficiência dependerá da energia dessas partículas e da intensidade do próprio feixe. Já foi dito no presente trabalho que a condição ideal para o feixe incidente é atingida quando suas partículas têm energias elevadas, aproximadamente 1 GeV. Esse nível de energia pode ser atingido em aceleradores lineares ou cíclotrons, no entanto, algumas adaptações se fazem necessárias. Aceleradores de partículas de alta energia devem possuir as seguintes características: as partículas do feixe necessitam da energia mínima de 600 MeV a fim de otimizar a produção de nêutrons através das reações de *spallation*; a potência do feixe deve ser superior a 10 MW de modo que correntes superiores a 10 mA sejam atingidas em prótons com energia da ordem de 1 GeV. As perdas através do feixe devem ser minimizadas de forma a se evitar ativação na estrutura do acelerador; a eficiência de energia do acelerador deve ser alta e também é necessário que se evite a ocorrência de *trip*, ou seja, pequenas interrupções no feixe que, se forem muito extensas, podem provocar *stress* térmico e aumento de fadiga na estrutura do equipamento (NIFENECKER et al., 2003) (BARROS, 2014).

## 2.6 Códigos computacionais utilizados

### 2.6.1 Código computacional ORIGEN 2.1

O código computacional ORIGEN 2.1 é um pacote de dados baseado na linguagem de programação Fortran desenvolvido no *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL) (LUDWIG, 1999) (CROFF, 1980). O principal uso do código ORIGEN 2.1 é o cálculo de evolução de combustíveis. Entre os parâmetros que são estimados pelo código se destacam a massa, a composição isotópica fracionária, a radioatividade, o calor de decaimento, a radiotoxicidade (por ingestão ou inalação) e a emissão de fótons (MIT, 2015).

Historicamente, o código ORIGEN foi escrito nos anos finais da década de 1960 e início da década de 1970 por Bell e Nichols (MIT, 2015). O pacote foi adquirido por cerca de 200 instituições de pesquisa, tendo uma boa aceitação. Em 1975 foram lançadas algumas atualizações e, em 1981, a nova versão chamada ORIGEN 2 veio a público. Anos mais tarde a versão ORIGEN 2.1 foi lançada, trazendo como melhoria mais relevante a adição de novas bibliotecas de dados. Essas bibliotecas permitiram avanços nos cálculos neutrônicos de reatores PWR e BWR. Em 1996 a versão para computador pessoal foi criada, permitindo a execução pela interface do Windows.

O método matemático empregado pelo código ORIGEN 2.1 é o da matriz exponencial. Dessa forma, o código resolve muitos problemas de sistemas lineares e acoplados, além de equações diferenciais de primeira ordem com coeficientes constantes (LUDWIG, 1999) (MIT, 2015). Uma das equações utilizadas pelo código na execução de cálculos que envolvem cadeias de núclídeos é a equação de Bateman (COTA, 1996) (1):

$$N_n(t) = \sum_{i=1}^n \left[ N_i(0) \left( \prod_{j=i}^{n-1} \left( \sum_{p=i, p \neq j}^n \left( \frac{e^{-\lambda_j t}}{\prod_{p=i, p \neq j}^n (\lambda_p - \lambda_j)} \right) \right) \right) \right] \quad (1)$$

Onde,

$t$  = tempo;

$i$  e  $j$  = isótopos da cadeia;

$N$  = concentração de núclídeos.

Em seus cálculos o código considera que a taxa em que o nuclídeo  $i$  muda como uma função do tempo ( $dX_i/dt$ ) pode ser calculado por uma expressão diferencial ordinária de primeira ordem como indicado na Equação (MIT, 2015) (2):

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^N l_{ij} \lambda_j X_j + \phi \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k X_k - (\lambda_i \phi \sigma_i + r_i) X_i + F_i \quad (2)$$

Onde,

$X_i$  = densidade atômica do nuclídeo  $i$ ;

$N$  = concentração de nuclídeos;

$l_{ij}$  = fração da desintegração radioativa por nuclídeo  $j$  que conduz à formação do nuclídeo  $i$ ;

$\lambda_j$  = constante de decaimento radioativo do nuclídeo  $j$ ;

$\lambda_i$  = constante de decaimento radioativo do nuclídeo  $i$ ;

$\phi$  = fluxo de nêutrons;

$f_{ik}$  = fração da absorção de nêutrons por nuclídeo  $k$  que conduz a formação do nuclídeo  $i$ ;

$\sigma_k$  = seção de choque de absorção de nêutrons média do nuclídeo  $k$ ;

$\sigma_i$  = seção de choque de absorção de nêutrons média do nuclídeo  $i$ ;

$r_i$  = taxa de remoção contínua do nuclídeo  $i$  do sistema;

$F_i$  = taxa de alimentação contínua do nuclídeo  $i$ ;

$t$  = tempo.

Portanto, se houver uma concentração  $N$  de nuclídeos para serem considerados, haverá  $N$  equações da mesma forma geral para serem resolvidas; cada uma das equações relativa a um nuclídeo específico. Quando esse conjunto de equações diferenciais simultâneas é resolvido pelo código ORIGEN 2.1 é possível contabilizar a concentração de cada nuclídeo presente ao fim de cada passo calculado (intervalo de integração) (MIT, 2015). A equação (2) deve ser aplicada a casos onde o meio é homogêneo e que esteja submetido a um fluxo médio de nêutrons constante e com seções de choque microscópicas médias ponderadas com o espectro dos nêutrons. Expressando a referida equação na forma matricial:

$$\dot{N} = A N \quad (3)$$

Onde,

$\dot{N}$  = vetor de concentração de núclídeos;

$A$  = matriz de transição contendo os coeficientes para as reações que se deseja calcular.

A solução da equação (3) é dada por:

$$N(t) = N_0 e^{\lambda t} = N_0 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(\lambda t)^m}{m!} \quad (4)$$

Onde,

$N_0$  = vetor das concentrações iniciais dos núclídeos;

$m = k^{th}$  transição de um núclídeo.

Para problemas onde ocorrem alterações nas concentrações dos núclídeos devido a fenômenos externos, ou seja, que não tenham natureza nuclear, como em processamentos químicos, a abordagem homogênea não será mais válida e a equação (3) não terá aplicabilidade. Nesse caso, é necessário adicionar um novo vetor,  $B$ , que represente as taxas de mudanças das concentrações nesses processos, assim:

$$\dot{N} = A N + B \quad (5)$$

A equação (5) é resolvida pela obtenção de uma solução particular e adicionando-se a solução do problema homogêneo:

$$N(t) = N_0 \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(\lambda t)^m}{m!} + \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(\lambda t)^m}{(m+1)!} B t \quad (6)$$

Nos casos descritos anteriormente, as concentrações de núclídeos de meias-vidas curtas são abordadas em separado e, por isso, não fazem parte da matriz de transição. Nessa categoria estão os núclídeos cujas meias-vidas têm duração inferior a 10% do intervalo de tempo considerado no problema. Esse procedimento se torna necessário para validar a aplicação das técnicas numéricas escolhidas para a resolução do problema. A abordagem



desses núclídeos é feita através de equações de cadeia de núclídeos, nas quais se considera os precursores de meias-vidas curtas para cada núclídeo de meia-vida longa. Na solução desse problema se empregam expressões geradas a partir da equação de Bateman.

$$N_i = N_i(0)e^{d_i t} + \sum_{k=1}^{i-1} N_k(0) \prod_{n=k}^{i-1} \frac{a_{n+1,n}}{d_n} \left[ \sum_{j=k}^{i-1} d_j \frac{e^{d_i t} - e^{-d_j t}}{(d_i - d_j)} \prod_{n=k, n \neq j}^{i-1} \frac{d_n}{d_n - d_j} \right] \quad (7)$$

Onde,

$N_i(0) \dots N_n(0)$  = concentrações iniciais dos precursores;

$a_{ij}$  = elemento da matriz de transição que carrega a taxa (constante de primeira ordem) de transformação da espécie  $j$  em  $i$  e  $d_i$  é igual a  $-a_{ij}$ .

O cálculo da radioatividade ou atividade total  $\mathcal{A}_i$  de uma concentração  $N$  de um núclídeo  $i$ , pode ser obtido pela resolução da seguinte expressão:

$$\mathcal{A}_i(t) = - \frac{dN}{dt} = \lambda_i N(t) = \lambda_i N_{i_0} e^{\lambda_i t} \quad (8)$$

Onde,

$\mathcal{A}_i$  = número de desintegrações ou decaimentos por segundo (Becquerel);

$N_{i_0}$  = concentração inicial do núclídeo  $i$ .

A radiotoxicidade  $R_i$ , por ingestão ou inalação, para um isótopo  $i$  pode ser calculada como se segue:

$$R_i(t) = F_i \mathcal{A}_i = F_i \lambda_i N_{i_0} e^{\lambda_i t} \quad (9)$$

Onde,

$F_i$  = fator de dose de ingestão ou inalação (Sievert/Becquerel);

$R_i$  = radiotoxicidade [Sievert ou  $\text{m}^3$  água (ingestão) /  $\text{m}^3$  ar (inalação)].

Após a determinação da concentração  $N$  dos núclídeos de interesse, para esta pesquisa actínídeos e produtos de fissão, o calor de decaimento pode ser estimado pela soma das parcelas das atividades nucleares em termos das energias médias das partículas  $\alpha$ ,  $\beta$  e fótons  $\gamma$  emitidos pelos decaimentos dos núclídeos investigados (NICHOLS, 2002). Considerando um núclídeo  $i$  cuja concentração é  $N_i$  em um tempo  $t$ , depois de retirado o combustível do sistema nuclear de irradiação e transcorrido o resfriamento, o calor de decaimento total é obtido por:

$$H_{\alpha}^i(t) = \sum_{i=1}^n \lambda_i N_i(t) E_{\alpha}^i \quad (10)$$

$$H_{\beta}^i(t) = \sum_{i=1}^n \lambda_i N_i(t) E_{\beta}^i \quad (11)$$

$$H_{\gamma}^i(t) = \sum_{i=1}^n \lambda_i N_i(t) E_{\gamma}^i \quad (12)$$

$$H_T^i(t) = H_{\alpha}^i(t) + H_{\beta}^i(t) + H_{\gamma}^i(t) \quad (13)$$

Onde,

$H_{\alpha}^i$ ,  $H_{\beta}^i$  e  $H_{\gamma}^i$  = valores de decaimento devido às partículas  $\alpha$ ,  $\beta$  e fótons  $\gamma$ , respectivamente, emitidos pelo núclídeo  $i$  no tempo  $t$ ;

$E_{\alpha}^i$ ,  $E_{\beta}^i$  e  $E_{\gamma}^i$  = energias médias das partículas  $\alpha$ ,  $\beta$  e fótons  $\gamma$ , respectivamente, para cada decaimento do núclídeo  $i$ ;

$H_T^i$  = calor de decaimento total do núclídeo  $i$  no tempo  $t$ ;

$n$  = enésimo evento de decaimento do núclídeo  $i$ .

### 2.6.2 Código computacional SCALE 6.0

A história do código SCALE (Standardized Computer Analysis for Licensing Evaluation) remonta a 1969 quando o corpo técnico da Divisão de Tecnologia e Ciências Nucleares do *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL) começou a desenvolver um código que oferecesse suporte ao pessoal da Comissão de Energia Atômica dos Estados Unidos (AEC, em inglês), ao utilizar o código KENO. Entre 1969 e 1976 o pessoal da equipe de certificação da AEC confiou aos técnicos do ORNL a tarefa de assisti-los no uso de códigos e na análise dos dados de criticalidade, blindagem e transferência de calor. Após a criação da Comissão de

Regulamentação Nuclear (NRC), foi proposto por sua equipe o desenvolvimento de um sistema de análise de fácil uso e que lhes proveesse as competências técnicas que os antigos módulos individuais, aos quais estavam familiarizados, lhes ofereciam. Foi dessa proposta que o código SCALE nasceu.

O corpo técnico da NRC forneceu ao pessoal do ORNL as diretrizes que deveriam nortear a criação do novo código: (1) foco em aplicações relacionadas a instalações de combustíveis nucleares e projetos; (2) uso de códigos computacionais e bibliotecas de dados bem estabelecidos; (3) arquivos de entrada que fossem acessíveis para usuários inexperientes ou ocasionais; (4) padronização de sequências de análises (módulos de controle) que automatizassem o uso de múltiplos códigos e bancos de dados para realizar a análise de sistemas e (5) documentação completa com disponibilidade para o público. Assim, a primeira versão do código SCALE foi lançada em 1980 pelo Centro de Computação de Informações de Segurança em Radiação (RSICC) no ORNL. A característica marcante do código SCALE é sua capacidade de simplificar o nível de conhecimento e esforços necessários na elaboração de misturas de materiais e também na definição da correta dependência de um problema com relação às seções de choque (BUSCH et al., 2005).

Com relação à estrutura do código, no centro das Sequências de Análises de Segurança de Criticalidade (CSAS) está alocada a biblioteca de sub-rotinas do código, denominada como Biblioteca Processadora de Informações e Materiais (MIPLIB). A proposta da MIPLIB é permitir que os usuários especifiquem o problema de materiais através do uso de palavras-chaves de fácil reconhecimento e memorização. Essas palavras estarão associadas a composições, elementos e núclídeos fornecidos pela Biblioteca de Composição Padrão. A MIPLIB também usa palavras-chaves e geometrias simples nas especificações dos arquivos de entrada (*inputs*) para os vários módulos que realizam o processamento da dependência dos problemas com relação às seções de choque. O CSAS é o módulo de controle primário para os cálculos do fator de multiplicação de nêutrons de um sistema. O conjunto de sequências múltiplas dentro do módulo CSAS prove a capacidade de execução de uma série de análises como o número de dimensões de um sistema, a busca pelos espaçamentos de geometria, concentrações de materiais e processamento de seções de choque.

O código SCALE é reconhecido mundialmente e amplamente utilizado como uma ferramenta importante no cálculo de criticalidade e cinética de reatores nucleares. De fato, o código funciona como uma plataforma de cálculos, pois em sua estrutura, abriga uma série de módulos que podem ser empregados em vários processos de análises de comportamento de sistemas nucleares. Entre os principais módulos do código merecem destaque: TRITON, BONAMI, KENO, ORIGEN-S, WORKER, CENTRM, PMC, COUPLE, KMART6 (BUSCH et al., 2005). Para o escopo desta pesquisa, o módulo mais relevante do código SCALE é o KENO V.a. Esse módulo é baseado no método de Monte Carlo e permite o cálculo do fator de multiplicação efetivo de nêutrons ( $k_{eff}$ ) em um sistema de três dimensões. Na execução dos cálculos o código emprega figuras geométricas básicas como cuboides, esferas e cilindros.

O método de Monte Carlo fornece soluções aproximadas para problemas matemáticos e físicos usando simulações de amostragens estatísticas aleatórias. Durante o processo de cálculo, cada um dos nêutrons tem toda a sua "vida" acompanhada até sua "morte" em algum tipo de interação de absorção ou espalhamento com a matéria. Uma vez que uma simples partícula não representa todo o sistema, um grande número de histórias deve ser devidamente registrado para caracterizar corretamente o fenômeno que está acontecendo. Os resultados obtidos são estimativas dos valores médios das variáveis calculadas, neste caso, os valores de  $k_{eff}$ , combinados com as respectivas incertezas (BOOTH, 2003). Para realizar o cálculo do valor médio de  $k_{eff}$  para eventos de fissão a seguinte equação é utilizada:

$$k_{eff} = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^n W_i \bar{\nu}_k \frac{\sigma_{fk}}{\sigma_{ck} + \sigma_{fk}} \quad (14)$$

Onde,

$N$  = quantidade de histórias consideradas para cada ciclo calculado;

$i$  = somatória sobre todas as reações de absorção nas quais os eventos de fissão se tornam possíveis;

$n$  = enésima reação de absorção na qual um evento de fissão ocorre;

$k$  = isótopo do material físsil envolvido no  $i^{th}$  evento de absorção;

$W_i$  = peso da partícula sobre o processo;

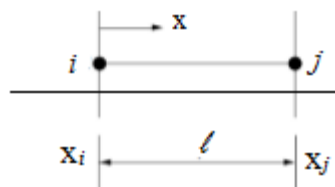
$\bar{\nu}_k$  = número médio de nêutrons prontos ou o número total de nêutrons produzidos por fissão no  $k^{th}$  isótopo do material físsil por nêutron incidente por energia;

$\sigma_{f_k}$  = seção de choque microscópica para fissão do  $k^{th}$  isótopo do material físsil por nêutron incidente por energia;

$\sigma_{c_k}$  = seção de choque microscópica para absorção do  $k^{th}$  isótopo do material físsil por nêutron incidente por energia.

### 2.6.3 Código ANSYS

O código ANSYS (**A**nalysis **S**ystem) é um software baseado no método de análise de elementos finitos, empregado na modelagem de problemas na área de engenharia que envolvem estudos de estruturas, mecânica, dinâmica de fluidos, fenômenos térmicos e elétricos. O método de elementos finitos é um procedimento matemático que, ao invés de resolver um problema através de um conjunto de equações cujo domínio é contínuo, aproxima a solução desse problema através de uma discretização do domínio em várias partes menores, chamados de elementos finitos. Então, são escolhidas funções que possam representar adequadamente a modelagem do problema, chamadas de equações de aproximação ou equações de interpolação. Os valores assumidos pelas funções de aproximação são determinados em pontos específicos, chamados de nodos ou pontos nodais. Em geral, os nodos são encontrados nas regiões de contorno dos elementos e realizam a conexão de um elemento aos demais elementos adjacentes. Além desses nodos de fronteira, um elemento pode possuir alguns nodos internos na modelagem do problema. O emprego dos valores nodais conjuntamente com as variáveis de aproximação define completamente o comportamento de um fenômeno dentro dos elementos (HUEBNER et al., 2001). Na figura 2.22 é mostrado um elemento linear típico com dois pontos nodais,  $i$  e  $j$ , onde se aplica o método dos elementos finitos (LEWIS et. al, 2004) (ACAR, 2013).



**Figura 2.22 – Elemento linear unidimensional.**

Fonte: Lewis et al., 2004.

Onde,

$\ell$  = comprimento.

A variação na temperatura do elemento pode ser expressa pela seguinte função linear:

$$T = \alpha_1 + \alpha_2 x \quad (15)$$

Uma vez que há duas constantes na função linear, são exigidos dois nodos para que se obtenham os valores dessas constantes. Substituindo os valores nodais  $i$  e  $j$ , pela equação (15) se obtém:

$$T_i = \alpha_1 + \alpha_2 x_i \quad (16)$$

$$T_j = \alpha_1 + \alpha_2 x_j \quad (17)$$

As soluções dessas equações apresentam os seguintes valores para  $\alpha_1$  e  $\alpha_2$ :

$$\alpha_1 = \frac{T_i x_j - T_j x_i}{x_j - x_i} \quad (18)$$

$$\alpha_2 = \frac{T_j - T_i}{x_j - x_i} \quad (19)$$

Substituindo os valores de  $\alpha_1$  e  $\alpha_2$  na equação (15), encontra:

$$T = T_i \left[ \frac{x_j - x}{x_j - x_i} \right] + T_j \left[ \frac{x - x_i}{x_j - x_i} \right] = N_i T_i + N_j T_j \quad (20)$$

$N_i$  e  $N_j$  representam as funções de interpolação. Utilizando a equação (20) a temperatura  $T$  pode ser calculada em qualquer ponto dentro de um elemento. Para sistemas formados por muitos elementos, a metodologia pode ser aplicada em cada um deles. Dessa forma, ao se agrupar todas as equações obtém-se uma equação global do sistema. Esse conjunto de equações pode ser escrito na seguinte forma matricial:

$$[K]\{T\} = \{f\} \quad (21)$$

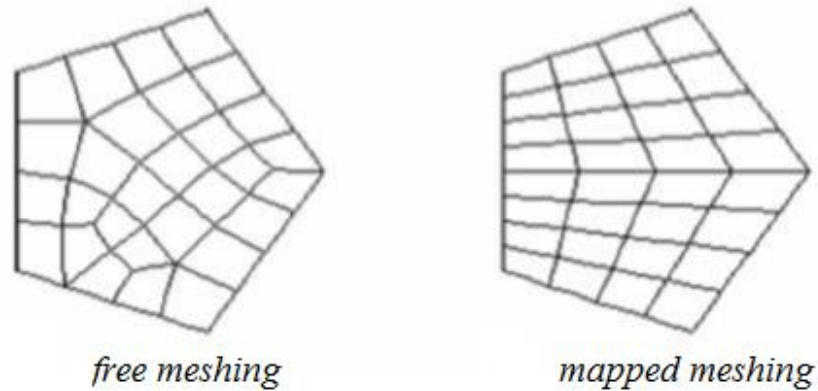
Onde,

$K$  = matriz do sistema global;

$T$  = vetor da grandeza nodal;

$f$  = vetor de carregamento do sistema.

Ao realizar a análise de um problema, o código ANSYS adota três passos distintos: geração do modelo (*preprocessor*), solução matemática (*solution*) e revisão dos resultados (*postprocessor*). Na execução de cada um desses passos o código usa algoritmos específicos que combinando suas ações permitem a solução dos problemas (ANSYS, 2009). No primeiro estágio, geração do modelo, a geometria do problema é estabelecida, há a definição do tipo de elemento a ser estudado, os materiais utilizados e suas propriedades físicas, além de ocorrer o mapeamento (*meshing*) da geometria com os elementos finitos. Há dois métodos de mapeamento de geometrias; o não estruturado (*free meshing*) e o estruturado (*mapped meshing*). No método *free meshing* não há restrições para o formato de cada elemento, tampouco há um padrão específico a ser seguido. No método *mapped meshing* há restrições no formato dos elementos e se deve respeitar um padrão regular. Na figura 2.23 são mostrados exemplos dos dois tipos de mapeamentos do código ANSYS. No segundo estágio, solução matemática, são escolhidos os tipos de análises a serem executadas e as opções são definidas, por exemplo, as condições de contorno da modelagem, então, a solução é gerada. O código ANSYS oferece sete tipos de análises: estática (*steady state*), modal, harmônica, transiente (dependente do tempo), espectro, *eigen buckling* e subestruturação. No terceiro estágio, os *postprocessors* são utilizados para se rever as soluções do problema. Caso haja necessidade, os resultados podem ser revistos pelo *postprocessor* geral ou através do *time history postprocessor*. Se o usuário escolher a primeira opção, irá rever os resultados da modelagem em etapas de carga e subpassos particulares (pontos temporais ou de frequências específicas). Se o usuário optar pelo segundo recurso, a revisão de um determinado item será feita através de pontos específicos do modelo com relação ao tempo, frequência ou algum outro item de resultado especificado.



**Figura 2.23 – Sistemas de mapeamento do código ANSYS.**

Fonte: ANSYS, 2009.

Nesta pesquisa, um fenômeno de difusão de calor transiente foi abordado ao se estudar a deposição de *canisters* contendo materiais irradiados em um repositório geológico. Após configurar-se a geometria do problema e especificarem-se os materiais utilizados na modelagem, suas propriedades físicas e as condições de contorno, o código ANSYS calculou a difusão de calor no repositório através de uma equação tridimensional de condução de calor que é expressa da seguinte maneira:

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho c_p T) = \frac{\partial}{\partial x} \left[ k \frac{\partial T}{\partial x} \right] + \frac{\partial}{\partial y} \left[ k \frac{\partial T}{\partial y} \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left[ k \frac{\partial T}{\partial z} \right] + q(t) \quad (22)$$

Onde,

$t$  = tempo;

$T$  = temperatura como uma função do espaço e tempo;

$\rho$  = densidade do meio;

$c_p$  = calor específico a pressão constante;

$k$  = coeficiente de condutividade térmica;

$q$  = taxa de geração de calor.

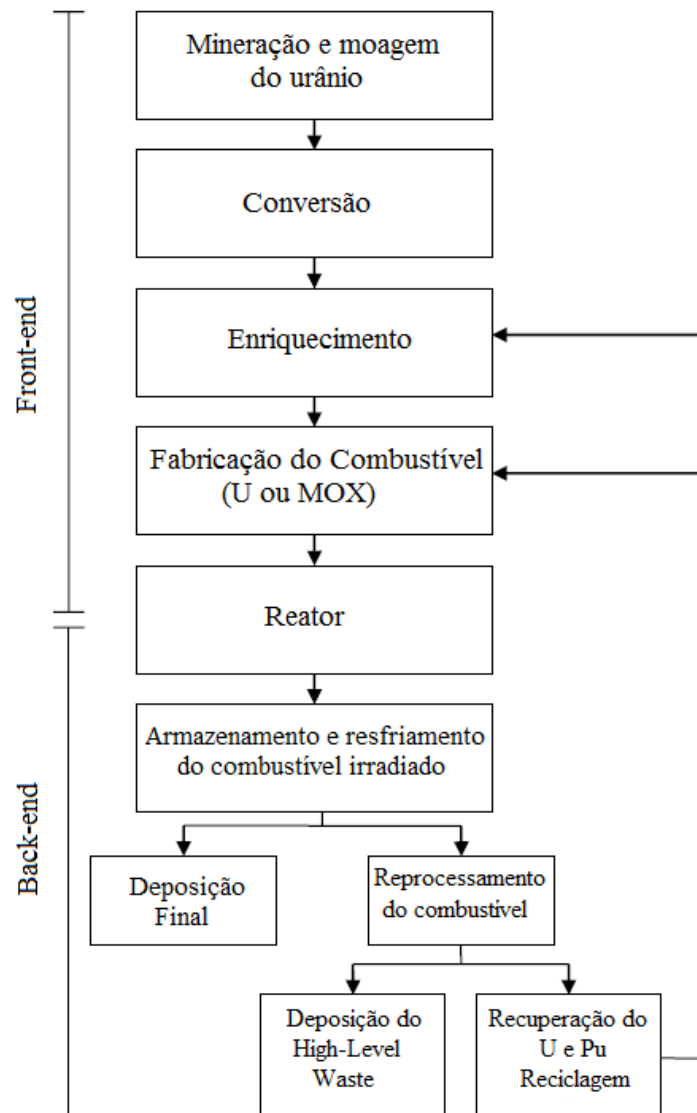


## 2.7 Ciclo do combustível nuclear

Entende-se como ciclo do combustível nuclear o conjunto de operações que envolvem a prospecção, exploração e mineração de um material radioativo, geralmente urânio, e que concluem com a deposição dos rejeitos em um repositório permanente (LAMARSH et al., 2001) (ACAR, 2013). O ciclo do combustível nuclear é composto por duas partes distintas. A primeira parte, chamada de *front-end*, é composta por todos os processos que antecedem o carregamento do combustível no núcleo do reator. Nesse estágio estão inseridas a mineração e moagem do mineral; a conversão, no caso do urânio, do concentrado de  $U_3O_8$  em  $UF_6$  gasoso; o enriquecimento e a fabricação do combustível propriamente dito.

A segunda parte do ciclo de combustível é chamada de *back-end* e engloba todos os procedimentos pós-descarregamento do material irradiado do núcleo do reator. O manejo desse combustível irradiado pode ser por dois caminhos distintos: a deposição direta em algum tipo de repositório ou a realização de alguma técnica de reprocessamento. Quando a via da deposição direta é escolhida, o ciclo do combustível é denominado *aberto* ou *once-through*. O material passa por um período de resfriamento de no mínimo 150 dias e, então, é levado para o repositório.

Na segunda opção, o ciclo é denominado *fechado* e, após ser retirado do núcleo, o combustível irradiado passa por um período de resfriamento que precede a extração dos isótopos que eventualmente possam ser reutilizados na geração de energia (ACAR, 2013). Atualmente, há vários procedimentos que permitem o reprocessamento de combustíveis nucleares irradiados. Podem ser citadas as seguintes técnicas: PUREX, UREX, TRUEX, DIAMEX, SANEX, UNEX, GANEX, etc. Após a execução do reprocessamento, o material que não tiver utilidade, denominado *High-Level Waste (HLW)*, é então encaminhado para um repositório permanente. Para este trabalho, as técnicas de reprocessamento mais relevantes são a UREX e a GANEX. Na figura 2.24 é apresentado um fluxograma generalizado do ciclo de combustível nuclear.



**Figura 2.24 – Fluxograma do ciclo do combustível nuclear (adaptado).**

Fonte: Acar, 2013.

## 2.8 Métodos de reprocessamento de combustíveis nucleares

Nesta pesquisa, já foi dito anteriormente que, entre os maiores desafios da engenharia nuclear estão o manejo e o gerenciamento do combustível nuclear irradiado. Isso porque esse material é rico em isótopos de actínídeos e produtos de fissão que podem apresentar efeitos extremamente deletérios à população humana, à fauna e flora, além do meio ambiente. Outra demanda que surge é com relação à questão da proliferação de armas nucleares e ataques terroristas. Há ainda outros questionamentos de ordem técnica, relacionados à eficiência energética das plantas nucleares e também da viabilidade econômica dos processos de utilização da matriz energética nuclear (VON HIPPEL, 2010).

A despeito desses aparentes entraves, o interesse pelo uso da matriz energética nuclear tem ressurgido em vários países. Esse interesse pode ser explicado pelos seguintes fatores: o desejo global pela diversificação das fontes de combustível, sobretudo pela redução do uso de recursos fósseis e a preocupação com relação a uma possível ruptura do sistema de suplementação energética; a volatilidade dos custos dos combustíveis fósseis quando comparados ao baixo custo do quilowatt-hora produzido através dos combustíveis nucleares; a necessidade de mitigar as mudanças climáticas globais decorrentes da emissão de gases que aceleram o efeito estufa e também, pela melhoria da qualidade do ar, uma vez que plantas nucleares não emitem poluentes atmosféricos e, por último, devido a uma possível transição para o uso do hidrogênio como uma fonte energética economicamente viável. Desta forma, o que torna a matriz nuclear interessante não é uma grande disponibilidade de recursos, mas sim, a possibilidade do uso da tecnologia dos *breeder reactors* (reatores regeneradores) e o reprocessamento do combustível recuperado do urânio não utilizado e do plutônio produzido; embora essa última assertiva seja alvo de grande controvérsia, sobretudo com relação ao risco de proliferação de armamentos nucleares (ADAMANTIADES et al., 2009).

Há diversos processos de separação química para realizar o reprocessamento de combustíveis nucleares irradiados. O método mais utilizado é o *PUREX* (*Plutonium Uranium Reduction and Extraction*) (IKEDA-OHNO, 2009). Nesse método, os isótopos de urânio e plutônio são extraídos através do uso de solventes orgânicos. No processo *PUREX* padrão o plutônio e o urânio são completamente separados. O fundamento da técnica é a boa solubilidade do nitrato de urânio e a baixa solubilidade dos produtos de fissão e do nitrato de plutônio (III). Primeiro, o combustível tem os produtos de fissão e demais actínídeos extraídos através do uso de ácido nítrico; posteriormente, o urânio e o plutônio são separados pelo uso de uma solução de tri-n-butil fosfato (TBP) a 30% em querosene. Este estágio é conhecido como partição e envolve ainda o uso de sulfonato de ferro que permite a redução do plutônio (IV) e (VI) em plutônio (III). Uma vez que, o plutônio não apresenta afinidade com o extrator orgânico, acaba por se liquefazer, se separando do urânio. Em seguida, o plutônio passa por um processo de oxidação com nitrato de sódio e se torna plutônio hexavalente (VI). O fator de recuperação para os dois elementos é de 99,9%, sendo o fator de descontaminação do urânio  $10^7$  e do plutônio  $10^8$ , respectivamente (YAMAURA, 1999). O urânio recuperado pode então ser re-enriquecido, refabricado e seguir para realimentação de um reator. O Pu produzido pode ser misturado com urânio natural ou esgotado, dando origem a um *MOX* que é introduzido em um reator nuclear (ACAR, 2013) (DA SILVA, 2012).

O método *PUREX* foi desenvolvido no *Argonne National Laboratory* e adotado pela *General Electric Company* na planta de Hanford em 1951. Em 1952 o *Knolls Atomic Power Laboratory* também desenvolveu a técnica *PUREX* junto ao *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL). Em 1954 foi inaugurada a grande planta de reprocessamento em Savannah River, desde então, o conhecimento sobre o método *PUREX* se consolidou e tem sido comercialmente usado em várias instalações de reprocessamento (ACAR, 2013) (BENEDICT et al., 1981). Para o presente trabalho dois métodos de reprocessamento são particularmente importantes, *UREX+* e *GANEX*. Na figura 2.25 é mostrado um fluxograma do método *PUREX*.

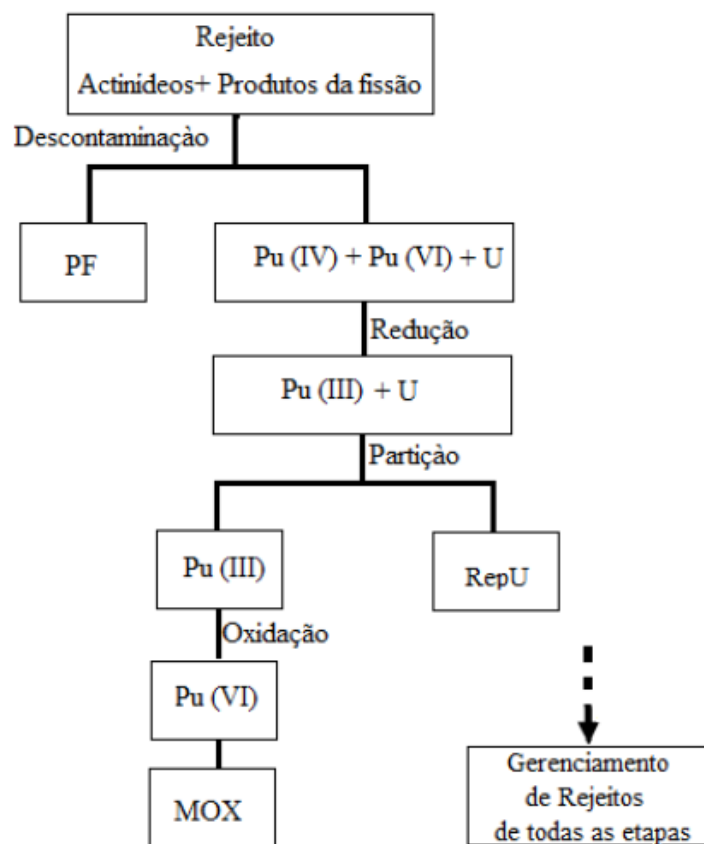


Figura 2.25 – Fluxograma do método de reprocessamento *PUREX*.

Fonte: Da Silva, 2012.

### 2.8.1 Método UREX+

O método de reprocessamento UREX+ (Uranium Extraction) tem sido desenvolvido pelo *Argonne National Laboratory* (ANL) conjuntamente com outros laboratórios vinculados ao US Department of Energy (DOE) (DA SILVA, 2012) (REGALBUTO et al., 2004) (VANDEGRIFT et al., 2004). O processo é constituído por cinco etapas de extração através de solventes, produzindo sete frações distintas do combustível irradiado: (1) recuperação do urânio, que pode ser classificado como *low level waste* (LLW); (2) eliminação do tecnécio como *high level waste* (HLW); (3) retirada do iodo como HLW; (4) armazenagem do céσιο e estrôncio para decaimento e posterior deposição como LLW; (5) extração do plutônio e neptúnio para produção de MOX; (6) separação do amerício e cúrio para produção de combustíveis de reatores rápidos ou para transmutação e (7) os demais produtos de fissão solúveis para deposição (REGALBUTO et al., 2004).

O urânio recuperado pelo método UREX+ pode atingir uma pureza de 99,95%, que lhe permite ser utilizado na produção de combustível reciclado. O tecnécio e o iodo atingem um percentual de recuperação maior que 95%. Para os isótopos do céσιο e estrôncio o percentual de recuperação deve atingir 97%; isso de forma a permitir que a contribuição dos mesmos para o calor de decaimento no repositório esteja na mesma ordem de grandeza dos demais produtos de fissão. Com relação aos isótopos de plutônio e neptúnio, o percentual de recuperação deve ser maior que 99%, permitindo o emprego desse material na composição de MOX. Na figura 2.26 é representado um fluxograma simplificado do método UREX+ de reprocessamento de combustíveis irradiados (DA SILVA, 2012) (VANDEGRIFT et al., 2004).

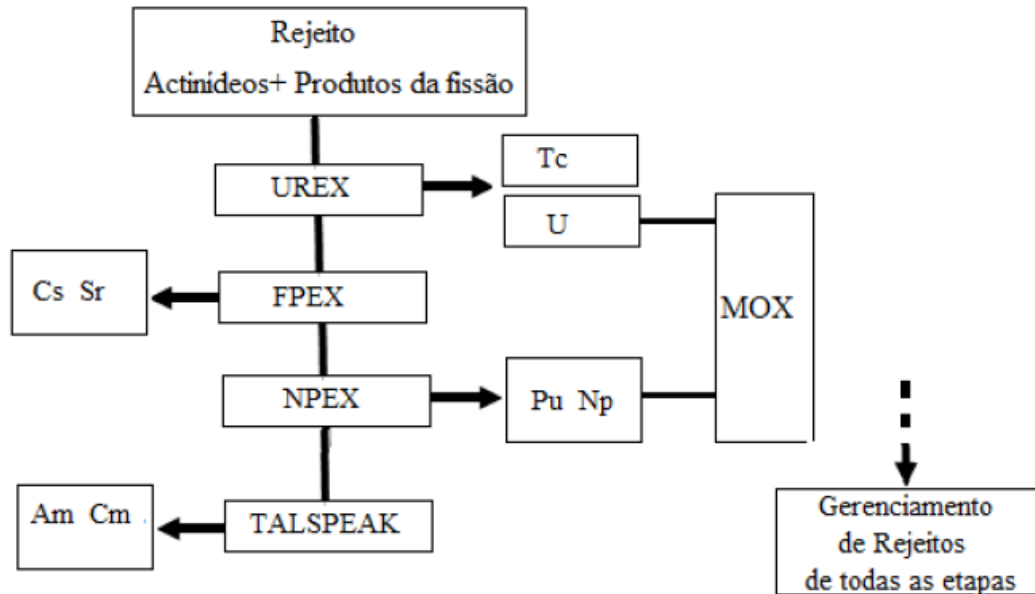


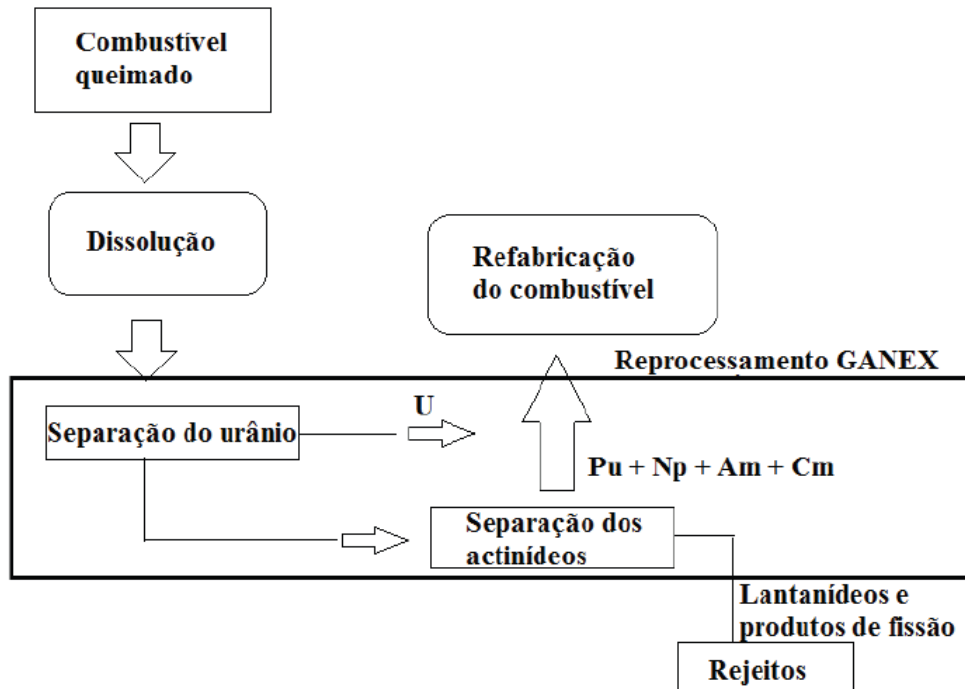
Figura 2.26 – Fluxograma do método de reprocessamento *UREX+*.

Fonte: Da Silva, 2012.

### 2.8.2 Método *GANEX*

O método de reprocessamento *GANEX* (Group Actinide Extraction) tem sido desenvolvido pelo *Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives* (CEA) que é a entidade estatal francesa de assuntos nucleares. Basicamente, é um processo hidrometalúrgico para o reprocessamento de combustíveis de reatores Geração IV e reciclagem homogênea de actinídeos (MIGUIRDITCHIAN et al., 2008). O método é composto de dois ciclos de extração que são precedidos pela dissolução do combustível irradiado em ácido nítrico. O urânio (IV) é extraído seletivamente a partir da solução de dissolução antes da separação do grupo de elementos transurânicos (Np, Pu, Am, Cm) dos produtos de fissão; a separação do grupo ocorre então na segunda fase que antecede o estágio de coconversão (BARROS, 2014) (DA SILVA, 2012) (MIGUIRDITCHIAN et al., 2008). O percentual de separação do urânio na primeira fase do processo pode chegar a 99,99%. As perdas de actinídeos são estimadas em 0,5%, essencialmente Np, isso confere ao método um percentual de recuperação de actinídeos de 99,5%. Segundo alguns autores, a contaminação por lantanídeos (Nd, Sm e Eu), é próximo a 5% (BARROS, 2014) (DA SILVA, 2012) (WARIN, 2010). O método *GANEX* tem uma boa aceitação por tratar-se de um processo não-proliferante. O desenvolvimento dessa técnica tem sido realizado na planta de reprocessamento Atalante, em Marcoule, França (DA SILVA, 2012) (WARIN et al., 2008).

As atividades dessa instalação foram iniciadas em 1992, como uma ação multinacional, envolvendo americanos, franceses e japoneses, com a finalidade de desenvolver a pesquisa sobre a tecnologia de reprocessamento e reciclagem de combustíveis irradiados. Na figura 2.27 temos um fluxograma simplificado do método *GANEX*.



**Figura 2.27 – Fluxograma do método de reprocessamento *GANEX*.**

Fonte: Barros, 2014.

### 3 SISTEMAS ANALISADOS

Para este estudo, se fez uso de sistemas já projetados, modelados e avaliados em estudos anteriores que serão devidamente citados ao longo do texto. As análises serão realizadas tomando como base um combustível queimado segundo as características de cada sistema antecipadamente avaliado. Os combustíveis foram queimados para quatro sistemas distintos: PWR, avaliado através do código ORIGEN 2.1 (LUDWIG, 1999) (CROFF, 1980); dois modelos de VHTR simulados no código SCALE 6.0, via módulo TRITON 6 (DEHART, 2009) e ADS calculado pelo código MONTEBURNS (MCNP/ORIGEN 2.1) (TRELLE et al, 1999). Considerando o material após o descarregamento de cada sistema, parâmetros como a composição isotópica, a radioatividade, a radiotoxicidade e o calor de decaimento foram avaliados através do código ORIGEN 2.1 até  $10^7$  anos. Utilizando o código SCALE 6.0, módulo KENO-V.a foram realizados estudos de criticalidade no repositório temporário e, usando o código ANSYS, foram realizados estudos térmicos tanto no repositório temporário, quanto em um repositório geológico. As condições de queima de cada combustível e algumas características relevantes dos mesmos são descritas nas seções que se seguem.

#### 3.1 Combustível do reator PWR

Nesta pesquisa, o combustível irradiado de um reator PWR foi estudado e considerado como uma referência. O combustível bem como o reator adotado como referência são descritos em *benchmarks* usados para validar o código ORIGEN 2.1. Apesar de apresentar um enriquecimento e uma queima abaixo dos valores empregados nos reatores atuais, representa a maioria dos combustíveis armazenados atualmente e, portanto, será bem representativo como combustível padrão. O combustível fresco era  $\text{UO}_2$  enriquecido a 3,2% em peso de  $^{235}\text{U}$ . A queima adotada foi 33000 MWd/tHM ao longo de três anos, para uma potência térmica de 3800 MWt (CROFF, 1980). O comprimento total do elemento combustível do reator PWR é 4,059 m e seu formato é um quadrado cujos lados medem 21,4 cm. Em cada arranjo há um conjunto de 17 x 17 barras, sendo que 264 destas barras são de combustível; a massa total de  $\text{UO}_2$  é 523,4 kg por elemento combustível. As barras de combustível do reator PWR têm um comprimento total de 3,851 m e uma altura ativa de 3,658 m. O raio do combustível mede 0,41212 cm, a espessura do *gap* 0,00526 cm e o revestimento 0,05834 cm. Uma descrição mais detalhada de outros dados geométricos e de parâmetros neutrônicos operacionais desse reator PWR podem ser encontrados no relatório ORNL/TM-6051 (CROFF et al., 1978). Os



resultados de queima foram calculados através do código ORIGEN 2.1 e um volume total de 1,0 tonelada métrica de combustível irradiado foi considerado. É relevante salientar que o código ORIGEN 2.1 não demanda por informações de geometria para realizar os cálculos de queima, mas apenas a composição do combustível e as massas totais de cada isótopo. Na tabela 3.1 são mostradas as composições isotópicas do combustível do reator PWR nos momentos do carregamento e da extração do reator, após o período de irradiação (CROFF, 1980). São consideradas as concentrações dos principais actínídeos e produtos de fissão.

**Tabela 3.1 – Concentrações dos principais actínídeos e produtos de fissão no combustível do reator PWR para uma queima de 33000 MWd/tHM ao longo de três anos, calculada pelo código ORIGEN 2.1 (CROFF, 1980).**

Nuclídeo	Frações em peso (%)	
	Carga	Descarga
<sup>232</sup> Th	-	2,07x10 <sup>-8</sup>
<sup>233</sup> U	-	1,40x10 <sup>-7</sup>
<sup>234</sup> U	2,90x10 <sup>-2</sup>	1,80x10 <sup>-2</sup>
<sup>235</sup> U	3,20x10 <sup>0</sup>	7,97x10 <sup>-1</sup>
<sup>236</sup> U	-	3,96x10 <sup>-1</sup>
<sup>238</sup> U	9,68x10 <sup>1</sup>	9,44x10 <sup>1</sup>
<sup>237</sup> Np	-	4,31x10 <sup>-2</sup>
<sup>238</sup> Pu	-	1,31x10 <sup>-2</sup>
<sup>239</sup> Pu	-	4,94x10 <sup>-1</sup>
<sup>240</sup> Pu	-	2,36x10 <sup>-1</sup>
<sup>241</sup> Pu	-	1,22x10 <sup>-1</sup>
<sup>241</sup> Am	-	3,25x10 <sup>-3</sup>
<sup>242</sup> Cm	-	1,47x10 <sup>-3</sup>
<sup>244</sup> Cm	-	2,39x10 <sup>-3</sup>
<sup>93</sup> Zr	-	-
<sup>99</sup> Tc	-	7,66x10 <sup>-2</sup>
<sup>129</sup> I	-	1,77x10 <sup>-2</sup>
<sup>135</sup> Cs	-	-
<sup>137</sup> Cs	-	1,19x10 <sup>-1</sup>
<sup>147</sup> Pm	-	1,35x10 <sup>-2</sup>
<sup>151</sup> Sm	-	1,33x 10 <sup>-3</sup>
<sup>155</sup> Eu	-	1,43x 10 <sup>-3</sup>

### 3.2 Combustível do reator VHTR

Os dois casos de reatores VHTR investigados nesta pesquisa adotaram como modelo geométrico o núcleo de bloco prismático. É oportuno ressaltar que esses dois casos têm a mesma geometria, porém, diferem no combustível com o qual foram alimentados. No primeiro modelo de VHTR, chamado VHTR (UO<sub>2</sub>), o combustível é UO<sub>2</sub> fresco enriquecido a 15% em peso de <sup>235</sup>U (DA SILVA, 2012). A queima adotada foi 97800 MWd/tHM ao longo de três anos, para uma energia térmica de 600 MWt (NERAC, 2002). Os cálculos dessa

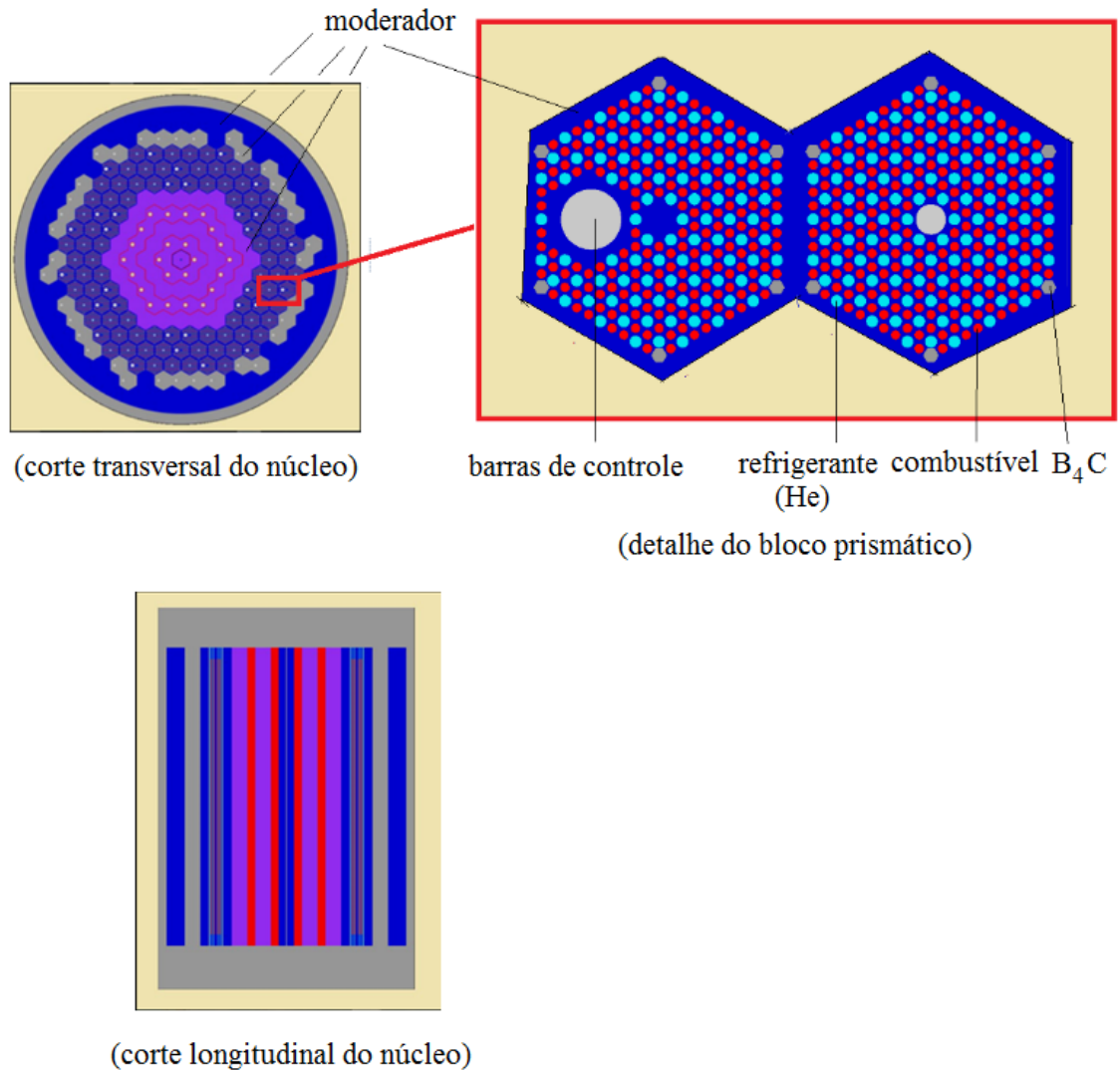
queima foram realizados através do código SCALE 6.0, via módulo TRITON 6 em trabalhos prévios já divulgados (DA SILVA, 2012). Na tabela 3.2 são indicadas as composições desse combustível no ato do carregamento e na descarga, após a queima.

**Tabela 3.2 – Concentrações dos principais actinídeos e produtos de fissão no combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>) para uma queima de 97800 MWd/tHM ao longo de três anos, calculada pelo código SCALE 6.0 (DA SILVA, 2012).**

Nuclídeo	Frações em peso (%)	
	Carga	Descarga
<sup>232</sup> Th	-	1,11x10 <sup>-7</sup>
<sup>233</sup> U	-	2,56x10 <sup>-7</sup>
<sup>234</sup> U	-	1,52x10 <sup>-3</sup>
<sup>235</sup> U	1,50x10 <sup>1</sup>	5,50x10 <sup>0</sup>
<sup>236</sup> U	-	2,56x10 <sup>0</sup>
<sup>238</sup> U	8,50x10 <sup>1</sup>	8,59x10 <sup>1</sup>
<sup>237</sup> Np	-	2,96x10 <sup>-1</sup>
<sup>238</sup> Pu	-	1,25x10 <sup>-1</sup>
<sup>239</sup> Pu	-	2,77x10 <sup>0</sup>
<sup>240</sup> Pu	-	8,13x10 <sup>-1</sup>
<sup>241</sup> Pu	-	4,71x10 <sup>-1</sup>
<sup>241</sup> Am	-	1,46x10 <sup>-2</sup>
<sup>242</sup> Cm	-	3,29x10 <sup>-3</sup>
<sup>244</sup> Cm	-	8,78x10 <sup>-3</sup>
<sup>93</sup> Zr	-	2,46x10 <sup>-1</sup>
<sup>99</sup> Tc	-	2,58x10 <sup>-1</sup>
<sup>129</sup> I	-	4,65x10 <sup>-2</sup>
<sup>135</sup> Cs	-	2,52x10 <sup>-1</sup>
<sup>137</sup> Cs	-	4,16x10 <sup>-1</sup>
<sup>147</sup> Pm	-	5,59x10 <sup>-2</sup>
<sup>151</sup> Sm	-	9,36x10 <sup>-3</sup>
<sup>155</sup> Eu	-	4,23x10 <sup>-3</sup>

No segundo modelo, denominado VHTR (Th-TU), foi calculada a evolução dos parâmetros em um combustível reprocessado pelo método UREX+ (REGALBUTO et al., 2004) (VANDEGRIFT et al., 2004). O histórico completo desse combustível é o seguinte: originalmente, o material irradiado foi removido de um PWR cuja queima era 33000 MWd/tHM ao longo de três anos e, então, encaminhado para uma piscina de resfriamento durante cinco anos (COTA, 1996). Em seguida, o combustível foi reprocessado. Na execução do reprocessamento o material foi enriquecido com elevado percentual de tório e elementos transurânicos, atingindo 13,24% de enriquecimento de material físsil, particularmente <sup>239</sup>Pu e <sup>241</sup>Pu (DA SILVA, 2012). Com essa composição foram feitos os cálculos de queima no código SCALE 6.0, via módulo TRITON 6. A configuração de queima foi a mesma empregada no modelo anterior de reator VHTR. Posteriormente, os processos de decaimento foram determinados pelo código ORIGEN 2.1 que adotou um volume de 1,0 tonelada métrica

de combustível irradiado para ambos os casos de reatores VHTR. A figura 3.1 representa aspectos da geometria simulada através do código SCALE 6.0. A tabela 3.3 contém as composições do combustível reprocessado antes e após a queima.



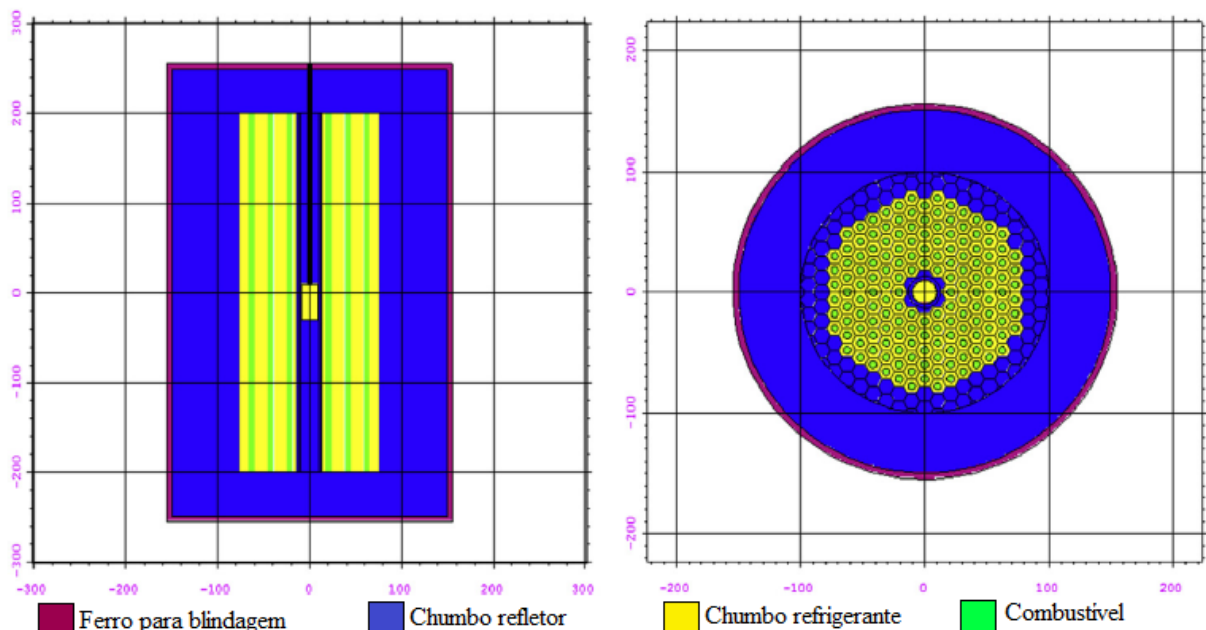
**Figura 3.1 – Perfis transversal e longitudinal do reator VHTR simulado no código SCALE 6.0.**

**Tabela 3.3 – Concentrações dos principais actínídeos e produtos de fissão no combustível do reator VHTR (Th-TU) para uma queima de 97800 MWd/tHM ao longo de três anos, calculada pelo código SCALE 6.0 (DA SILVA, 2012).**

Nuclídeo	Frações em peso (%)	
	Carga	Descarga
<sup>232</sup> Th	7,59x10 <sup>1</sup>	7,67x10 <sup>1</sup>
<sup>233</sup> U	-	3,25x10 <sup>0</sup>
<sup>234</sup> U	-	6,84x10 <sup>-1</sup>
<sup>235</sup> U	-	1,49x10 <sup>-1</sup>
<sup>236</sup> U	-	1,24x10 <sup>-2</sup>
<sup>238</sup> U	-	1,31x10 <sup>-5</sup>
<sup>237</sup> Np	7,91x10 <sup>-1</sup>	3,98x10 <sup>-1</sup>
<sup>238</sup> Pu	4,19x10 <sup>-1</sup>	9,95x10 <sup>-1</sup>
<sup>239</sup> Pu	1,22x10 <sup>1</sup>	4,95x10 <sup>0</sup>
<sup>240</sup> Pu	5,13x10 <sup>0</sup>	5,01x10 <sup>0</sup>
<sup>241</sup> Pu	2,77x10 <sup>0</sup>	2,82x10 <sup>0</sup>
<sup>241</sup> Am	8,48x10 <sup>-1</sup>	5,61x10 <sup>-1</sup>
<sup>242</sup> Cm	1,95x10 <sup>-5</sup>	-
<sup>244</sup> Cm	7,77x10 <sup>-2</sup>	5,28x10 <sup>-1</sup>
<sup>93</sup> Zr	-	1,91x10 <sup>-1</sup>
<sup>99</sup> Tc	-	2,36x10 <sup>-1</sup>
<sup>129</sup> I	-	7,62x10 <sup>-2</sup>
<sup>135</sup> Cs	-	3,68x10 <sup>-1</sup>
<sup>137</sup> Cs	-	4,28x10 <sup>-1</sup>
<sup>147</sup> Pm	-	4,86x10 <sup>-2</sup>
<sup>151</sup> Sm	-	1,97x10 <sup>-2</sup>
<sup>155</sup> Eu	-	8,13x10 <sup>-3</sup>

### 3.3 Combustível do sistema ADS

O combustível estudado para o caso do sistema ADS tem sua origem no reator PWR da planta nuclear de Angra-I (BARROS et al., 2015). Nesta instalação, o combustível se constitui de  $\text{UO}_2$  com 3,1% de enriquecimento de  $^{235}\text{U}$  em peso, a queima é 33000 MWd/tHM ao longo de três anos com uma energia térmica de 515 MWt (BARROS, 2014) (COTA, 1996). Após sua retirada do núcleo do reator, o material é conduzido para uma piscina de resfriamento e permanece por cinco anos nesse local. Posteriormente, admitiu-se que o combustível foi reprocessado pelo método *GANEX* (MIGUIRDITCHIAN et al., 2008). Para evitar problemas advindos da alta criticidade em função da concentração de isótopos físséis ( $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ ), esse material foi diluído com 82% de tório, atingindo um percentual de enriquecimento de 11,7% de material físsil (BARROS et al., 2015) (BARROS, 2014). A queima desse combustível reprocessado foi calculada pelo código MONTEBURNS e, que considerou 237600 MWd/tHM ao longo de vinte anos com uma energia térmica de 515 MWt (BARROS, 2014). Na execução dos cálculos, o código MONTEBURNS usou 292 ciclos de 25 dias cada, com um número inicial de 2000 partículas. A figura 3.2 ilustra a geometria do sistema ADS simulada pelo código MONTEBURNS. A tabela 3.4 contém as composições desse combustível antes e após a irradiação.



**Figura 3.2 – Perfis longitudinal e transversal do sistema ADS simulado com o código MONTEBURNS.**

Fonte: Barros et al., 2015.

**Tabela 3.4 – Concentrações dos principais actínídeos e produtos de fissão no combustível do sistema ADS para uma queima de 237600 MWd/tHM ao longo de vinte anos, calculada pelo código MONTEBURNS (BARROS, 2014).**

Nuclídeo	Frações em peso (%)	
	Carga	Descarga
<sup>232</sup> Th	8,20x10 <sup>1</sup>	6,88x10 <sup>1</sup>
<sup>233</sup> U	3,78x10 <sup>-10</sup>	7,66x10 <sup>0</sup>
<sup>234</sup> U	2,82x10 <sup>-5</sup>	1,26x10 <sup>0</sup>
<sup>235</sup> U	1,47x10 <sup>-3</sup>	1,81x10 <sup>-1</sup>
<sup>236</sup> U	7,51x10 <sup>-4</sup>	3,47x10 <sup>-2</sup>
<sup>238</sup> U	1,79x10 <sup>-1</sup>	1,44x10 <sup>-1</sup>
<sup>237</sup> Np	8,64x10 <sup>-1</sup>	1,88x10 <sup>-1</sup>
<sup>238</sup> Pu	3,38x10 <sup>-1</sup>	5,33x10 <sup>-1</sup>
<sup>239</sup> Pu	8,85x10 <sup>0</sup>	1,41x10 <sup>0</sup>
<sup>240</sup> Pu	3,02x10 <sup>0</sup>	2,79x10 <sup>0</sup>
<sup>241</sup> Pu	2,84x10 <sup>0</sup>	4,75x10 <sup>-1</sup>
<sup>241</sup> Am	1,51x10 <sup>-1</sup>	4,09x10 <sup>-1</sup>
<sup>242</sup> Cm	4,73x 10 <sup>-2</sup>	1,54x10 <sup>-2</sup>
<sup>244</sup> Cm	5,43x 10 <sup>-2</sup>	1,89x10 <sup>-1</sup>
<sup>93</sup> Zr	-	6,40x10 <sup>-1</sup>
<sup>99</sup> Tc	-	5,48x10 <sup>-1</sup>
<sup>129</sup> I	-	2,42x10 <sup>-1</sup>
<sup>135</sup> Cs	-	1,15x10 <sup>0</sup>
<sup>137</sup> Cs	-	9,09x10 <sup>-1</sup>
<sup>147</sup> Pm	-	6,51x10 <sup>-2</sup>
<sup>151</sup> Sm	-	6,28x 10 <sup>-2</sup>
<sup>155</sup> Eu	-	-

Basicamente, a geometria estudada inclui o alvo de *spallation*, que é constituído por um cilindro de chumbo localizado na posição central da montagem e o núcleo subcrítico do equipamento. O acelerador de partículas tem o tubo do feixe representado por um cilindro de raio 1,5 cm, posicionado axialmente sobre o centro do alvo de *spallation*. É oportuno dizer que nesse cilindro central também está incluída a fonte de nêutrons. O núcleo subcrítico é representado por um cilindro de volume 12 m<sup>3</sup> preenchido com um arranjo hexagonal formado por 156 barras de combustível. Cada uma dessas barras é um cilindro de 3,0 cm de raio e comprimento de 400 cm. Essas barras são constituídas pelo combustível reprocessado pelo método *GANEX* que foi previamente caracterizado. Mais informações sobre o combustível aqui considerado e sobre a geometria descrita podem ser encontrados nas respectivas referências (BARROS et al., 2015) (BARROS, 2014). Nos cálculos, o código *ORIGEN 2.1* considerou um volume de 1,0 tonelada métrica de combustível irradiado. A tabela 3.5 contém um sumário das principais características de cada sistema que foi analisado nesta pesquisa. Nas tabelas 3.6 e 3.7 são apresentadas algumas propriedades físicas relevantes dos principais actínídeos e produtos de fissão investigados neste trabalho. Nas figuras 3.3, 3.4

e 3.5 são mostradas as séries naturais de decaimento dos principais isótopos usados em combustíveis nucleares,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ .

**Tabela 3.5 – Principais características dos reatores estudados.**

Tipo de reator	PWR <sup>(a)</sup>	VHTR (UO <sub>2</sub> ) <sup>(b)</sup>	VHTR (Th-TU) <sup>(b)</sup>	ADS <sup>(c)</sup>
Enriquecimento inicial de material físsil (%)	3,2	15,0	13,24	11,7
Potência térmica (MW <sub>t</sub> )	3800	600	600	515
Queima (GWd/tHM)	33	97,80	97,80	237,6
Tempo de queima (ano)	3,0	3,0	3,0	20,0

(a) Croff, 1980; (b) Da Silva, 2012 e (c) Barros, 2014.

**Tabela 3.6 – Propriedades físicas dos principais actínídeos estudados.**

Nuclídeo	Meia-vida (anos)	Tipo de decaimento	Principais emissões de gamas	Atividade específica (Bq/kg)	Calor de decaimento (W/kg)
<sup>232</sup> Th	1,41x10 <sup>10</sup>	α + fissão espontânea	63,8 keV (0,26%) 140,9 keV (0,02%)	4,059x10 <sup>6</sup>	2,654x10 <sup>-6</sup>
<sup>233</sup> U	1,59x10 <sup>5</sup>	α + fissão espontânea	42,4 keV (0,07%) 54,7 keV (0,02%) 97,1 keV (0,02%)	3,565x10 <sup>11</sup>	2,804x10 <sup>-1</sup>
<sup>234</sup> U	2,47x10 <sup>5</sup>	α + fissão espontânea	53,2 keV (0,12%) 120,9 keV (0,03%) 445 keV (3,0x10 <sup>-5</sup> %)	2,302x10 <sup>11</sup>	1,792x10 <sup>-1</sup>
<sup>235</sup> U	7,04x10 <sup>8</sup>	α + fissão espontânea	143,8 keV (11,0%) 163,3 keV (5,08%) 185,7 keV (57,2%)	7,996x10 <sup>7</sup>	5,994x10 <sup>-5</sup>
<sup>236</sup> U	2,39x10 <sup>7</sup>	α + fissão espontânea	49,5 keV (0,08%) 112,8 keV (0,02%) 171 keV (6,0x10 <sup>-5</sup> %)	2,393x10 <sup>9</sup>	1,753x10 <sup>-3</sup>
<sup>238</sup> U	4,47x10 <sup>9</sup>	α + fissão espontânea	49,6 keV (0,06%) 113,5 keV (0,01%) 1879 keV (32,0%) 2513 keV (65,3%)	1,244x10 <sup>7</sup>	8,508x10 <sup>-6</sup>
<sup>237</sup> Np	2,14x10 <sup>6</sup>	α + fissão espontânea	27,7 keV (0,84%) 29,4 keV (14,1%) 86,5 keV (12,4%)	2,603x10 <sup>10</sup>	2,070x10 <sup>-2</sup>
<sup>238</sup> Pu	8,60x10 <sup>1</sup>	α + fissão espontânea	43,5 keV (0,04%) 99,9 keV (7,0x10 <sup>-3</sup> %) 153 keV (9,0x10 <sup>-4</sup> %)	6,334x10 <sup>14</sup>	5,678x10 <sup>5</sup>
<sup>239</sup> Pu	2,44x10 <sup>4</sup>	α	13,0 keV (0,03%) 38,7 keV (0,01%) 51,6 keV (0,03%)	2,295x10 <sup>12</sup>	1,929x10 <sup>0</sup>
<sup>240</sup> Pu	6,58x10 <sup>3</sup>	α + fissão espontânea	45,2 keV (0,03%) 104 keV (7,0x10 <sup>-3</sup> %) 160 keV (4,0x10 <sup>-4</sup> %)	8,399x10 <sup>12</sup>	7,070x10 <sup>0</sup>
<sup>241</sup> Pu	1,32x10 <sup>1</sup>	β <sup>-</sup> (≅100%) α (0,00245%)	104 keV (1,0x10 <sup>-4</sup> %) 114 keV (8,0x10 <sup>-5</sup> %) 149 keV (2,0x10 <sup>-4</sup> %)	3,811x10 <sup>15</sup>	1,294x10 <sup>2</sup>
<sup>241</sup> Am	4,58x10 <sup>2</sup>	α + fissão espontânea	26,3 keV (2,27%) 33,2 keV (0,13%) 59,5 keV (35,9%) 662 keV (3,6x10 <sup>-8</sup> %)	1,269x10 <sup>14</sup>	1,147x10 <sup>2</sup>
<sup>242</sup> Cm	4,46x10 <sup>-1</sup>	α + fissão espontânea	44,1 keV (0,03%) 102 keV (3,0x10 <sup>-3</sup> %) 157 keV (1,0x10 <sup>-3</sup> %) ≥ 942 keV (≈10 <sup>-6</sup> %)	1,258x10 <sup>17</sup>	1,212x10 <sup>5</sup>
<sup>244</sup> Cm	1,81x10 <sup>1</sup>	α + fissão espontânea	42,8 keV (2,5x10 <sup>-4</sup> %) 98,9 keV (1,0x10 <sup>-3</sup> %) 153 keV (1,0x10 <sup>-3</sup> %) 818 keV (7,2x10 <sup>-7</sup> %)	3,034x10 <sup>15</sup>	2,842x10 <sup>3</sup>

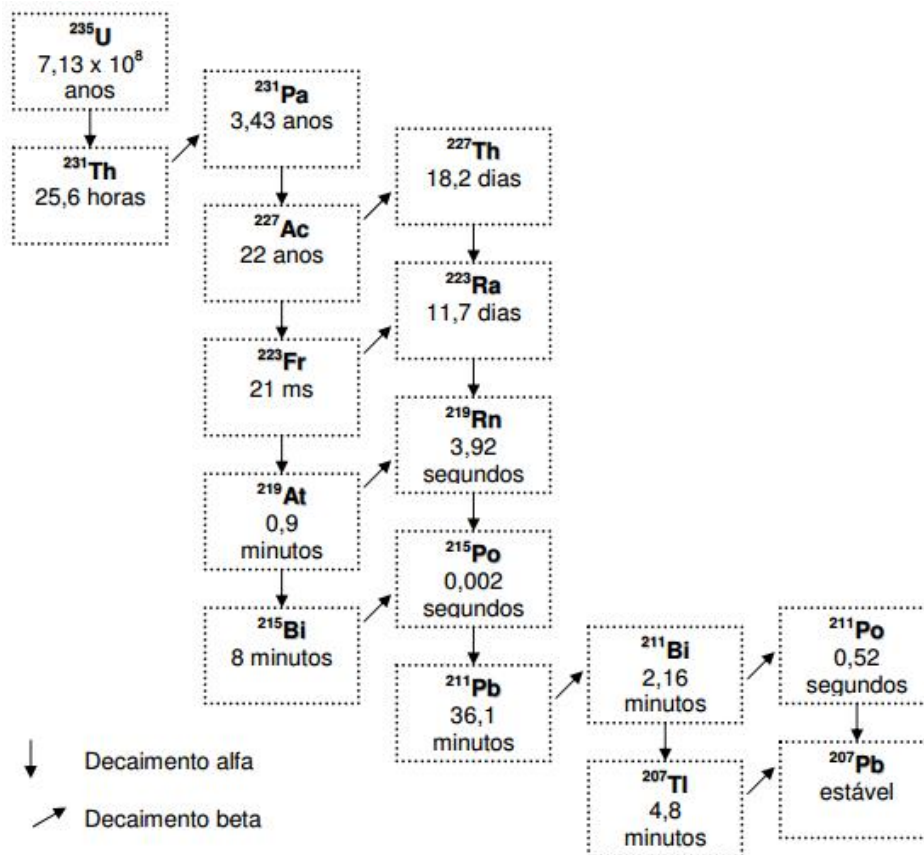
Fonte: JAEA, 2016.



**Tabela 3.7 – Propriedades físicas dos principais produtos de fissão estudados.**

Nuclídeo	Meia-vida (anos)	Tipo de decaimento	Atividade específica (Bq/kg)
$^{147}\text{Pm}$	2,62	$\beta^-$	$3,43 \times 10^{16}$
$^{155}\text{Eu}$	4,75	$\beta^-$	$5,20 \times 10^{14}$
$^{137}\text{Cs}$	30,8	$\beta^-$	$6,20 \times 10^{13}$
$^{151}\text{Sm}$	90,0	$\beta^-$	$4,19 \times 10^{12}$
$^{99}\text{Tc}$	$2,11 \times 10^5$	$\beta^-$	$8,64 \times 10^{-6}$
$^{93}\text{Zr}$	$1,61 \times 10^6$	$\beta^-$	$9,42 \times 10^3$
$^{135}\text{Cs}$	$2,30 \times 10^6$	$\beta^-$	$1,25 \times 10^{10}$
$^{129}\text{I}$	$1,57 \times 10^7$	$\beta^-$	$6,22 \times 10^9$

Fonte: IAEA, 2014.

**Figura 3.3 – Série de decaimento do  $^{235}\text{U}$ .**

Fonte: De Souza, 2006.

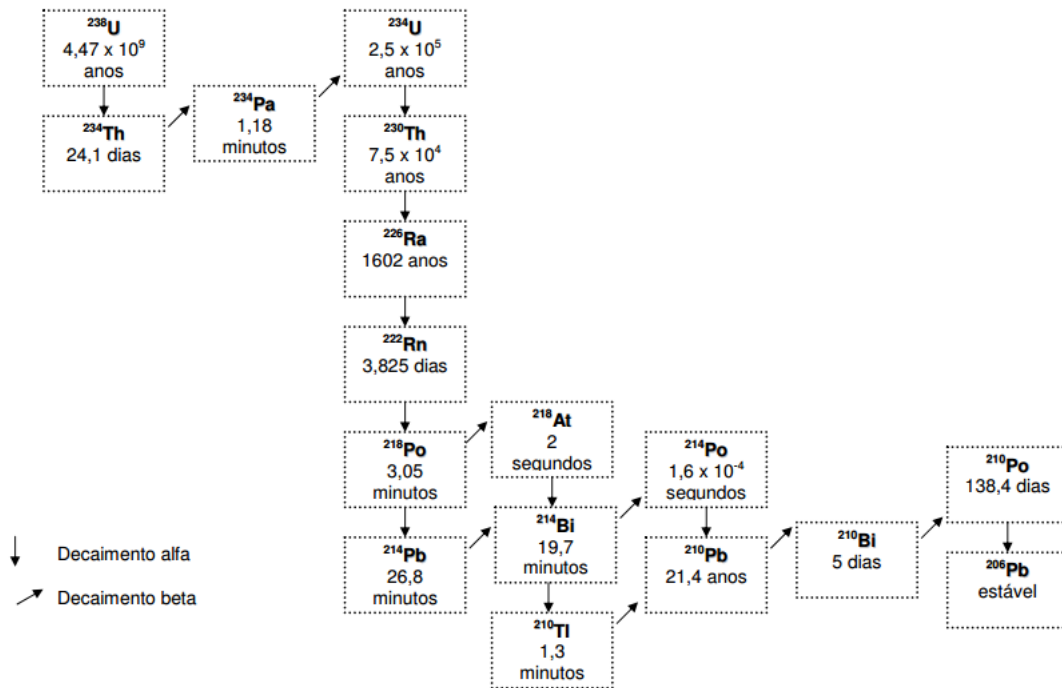


Figura 3.4 – Série de decaimento do  $^{238}\text{U}$ .  
Fonte: De Souza, 2006.

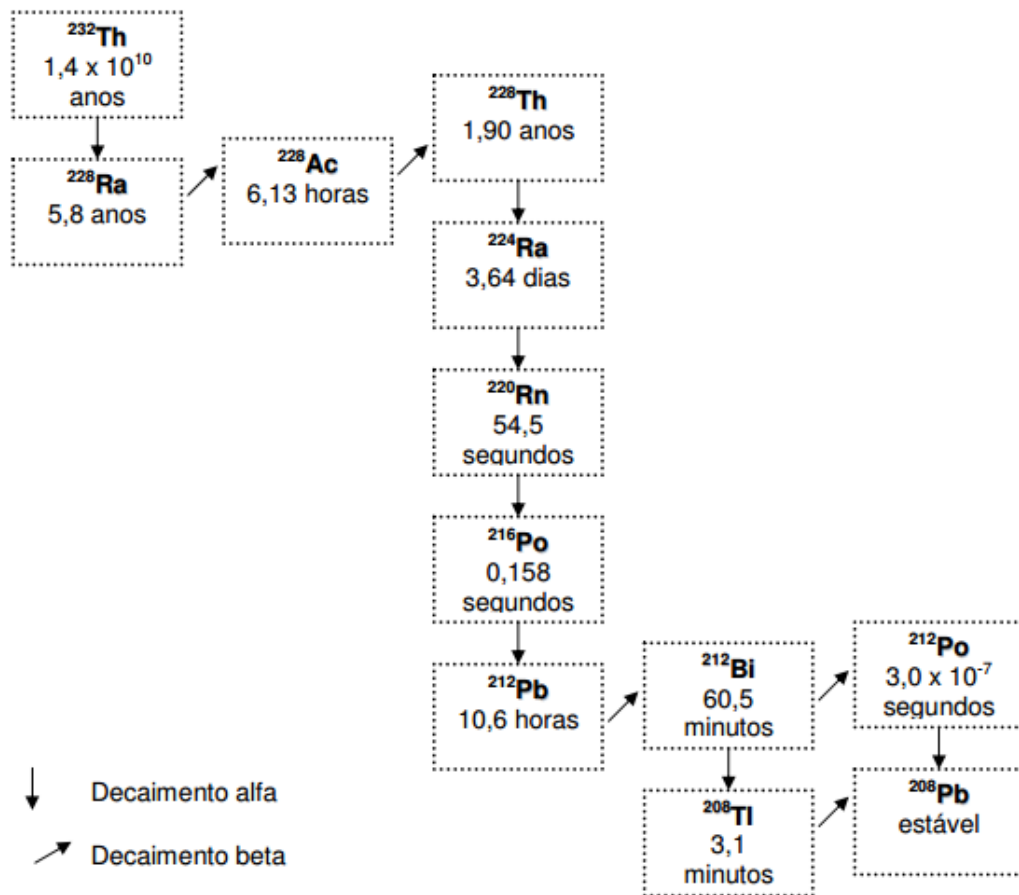


Figura 3.5 – Série de decaimento do  $^{232}\text{Th}$ .  
Fonte: De Souza, 2006.

## 4 ANÁLISE DA COMPOSIÇÃO E DOS PARÂMETROS DE DECAIMENTO DOS COMBUSTÍVEIS

Os resultados obtidos através dos cálculos realizados pelo código ORIGEN 2.1 são apresentados nos subitens que se seguem. Primeiramente será feita uma análise da composição isotópica dos combustíveis dos quatro sistemas no decorrer do tempo, após sua saída do núcleo. Nesta abordagem serão acompanhados os actínídeos maiores e menores, além dos produtos de fissão mais representativos para essa pesquisa. Em seguida, serão investigados os demais parâmetros pertinentes a este trabalho, a radioatividade, a radiotoxicidade por ingestão e inalação e o calor de decaimento. A abordagem adotada é comparar inicialmente os resultados gerais dos parâmetros investigados para os combustíveis oriundos dos quatro modelos de sistemas nucleares. 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. Finalmente, é feita uma análise mais detalhada, onde se considera a influência dos isótopos mais relevantes para cada parâmetro, quer seja um actínídeo ou um produto de fissão.

### 4.1 Composição

A composição isotópica do combustível nuclear varia ao longo do tempo, tanto no período de irradiação, como também, durante o seu decaimento. Fatores como a queima, o tipo e potência de funcionamento do equipamento, o espectro de nêutrons que induzem os processos de fissão e as seções de choque para cada tipo de reação dos próprios isótopos do material determinam o comportamento temporal do combustível nuclear. A composição isotópica inicial do combustível é o ponto de partida para que se possa entender a evolução do mesmo. De acordo com essa combinação de isótopos pode-se prever, com boa razoabilidade, as mudanças que irão transcorrer em função dos processos de irradiação.

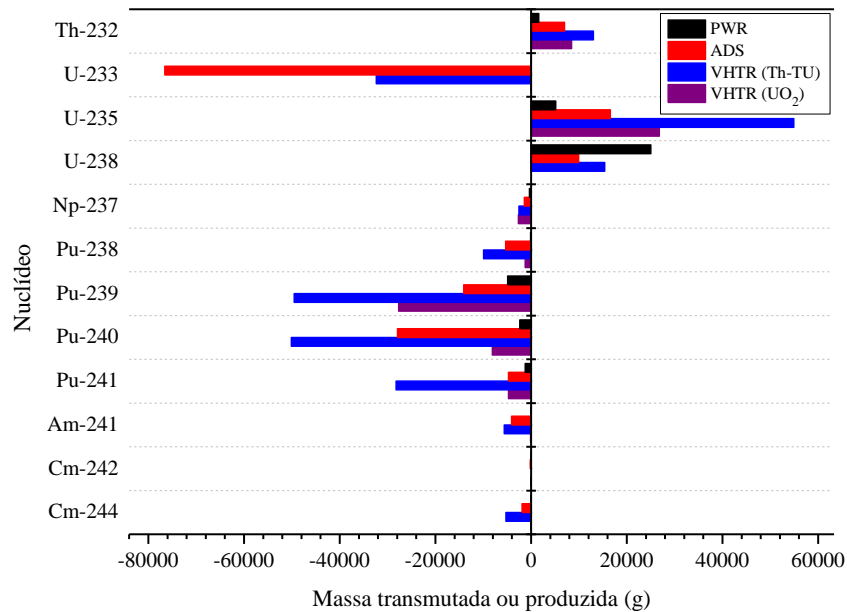
Os reatores que operam no ciclo do urânio têm um combustível constituído principalmente de urânio natural, que é uma mistura de vários isótopos de urânio, destacando  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  e  $^{238}\text{U}$ . O  $^{235}\text{U}$  é o principal isótopo físsil, sua concentração pode variar de 0,72% para o urânio natural até 90% de acordo com o nível de enriquecimento. Reatores que funcionam no ciclo do tório têm o combustível composto principalmente por  $^{232}\text{Th}$  e  $^{233}\text{U}$  ou  $^{235}\text{U}$ . Se o combustível é derivado a partir de qualquer técnica de reprocessamento, haverá

outros isótopos gerados nos processos de transmutação que ocorrem a partir das reações de fissão (STACEY, 2007). Os actínídeos que têm suas concentrações analisadas para os combustíveis de cada sistema estudado são: os férteis  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ ; os físséis  $^{235}\text{U}$  e  $^{233}\text{U}$ ; os isótopos do elemento plutônio  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ ; os actínídeos menores  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$  e  $^{244}\text{Cm}$ . Essa coleção específica de isótopos tem sido considerada por sua adoção em outros trabalhos (BERDEGUEZ, 2012) (NEA, 2013) (BARROS, 2014) (BARROS et al., 2015). Além desses actínídeos, serão consideradas também as variações nas concentrações dos seguintes produtos de fissão:  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{135}\text{Cs}$  e  $^{129}\text{I}$ . Os quatro primeiros isótopos de produtos de fissão serão tratados como de meia-vida médio-curta e os outros como de meia-vida longa.

Nas tabelas 4.1 e 4.2 são apresentadas as massas produzidas ou transmutadas pelos sistemas nucleares estudados para os isótopos de actínídeos e produtos de fissão de interesse desta pesquisa. Os valores positivos indicam massas produzidas e os valores negativos massas transmutadas. Esses valores representam a diferença entre a massa de cada isótopo estudado ao final de  $10^7$  anos e a massa do respectivo isótopo no momento de descarga do combustível do sistema de irradiação. De acordo com essas tabelas, nos combustíveis irradiados em sistemas que operam com materiais reprocessados, VHTR (Th-TU) e ADS, ocorreu transmutação ou produção de maiores massas de isótopos de actínídeos e produtos de fissão, do que nos combustíveis que inicialmente eram compostos por  $\text{UO}_2$  fresco. Essa observação é comprovada quando se analisa as figuras 4.1 e 4.2.

**Tabela 4.1 – Variações de massas dos actínídeos nos combustíveis dos sistemas nucleares estudados, calculadas pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Sistema de irradiação			
	PWR	VHTR ( $\text{UO}_2$ )	VHTR (Th-TU)	ADS
	$\Delta m$ (g)	$\Delta m$ (g)	$\Delta m$ (g)	$\Delta m$ (g)
$^{232}\text{Th}$	1,61E+03	8,48E+03	1,30E+04	7,00E+03
$^{233}\text{U}$	4,90E+00	2,22E+01	-3,24E+04	-7,66E+04
$^{235}\text{U}$	5,13E+03	2,68E+04	5,49E+04	1,66E+04
$^{238}\text{U}$	2,50E+04	-	1,54E+04	9,96E+03
$^{237}\text{Np}$	-3,64E+02	-2,66E+03	-2,52E+03	-1,45E+03
$^{238}\text{Pu}$	-1,31E+02	-1,25E+03	-9,95E+03	-5,33E+03
$^{239}\text{Pu}$	-4,94E+03	-2,77E+04	-4,95E+04	-1,41E+04
$^{240}\text{Pu}$	-2,36E+03	-8,13E+03	-5,01E+04	-2,79E+04
$^{241}\text{Pu}$	-1,22E+03	-4,71E+03	-2,82E+04	-4,75E+03
$^{241}\text{Am}$	-3,25E+01	-1,46E+02	-5,61E+03	-4,09E+03
$^{242}\text{Cm}$	-1,47E+01	-3,29E+01	-	-1,54E+02
$^{244}\text{Cm}$	-2,39E+01	-8,78E+01	-5,28E+03	-1,89E+03



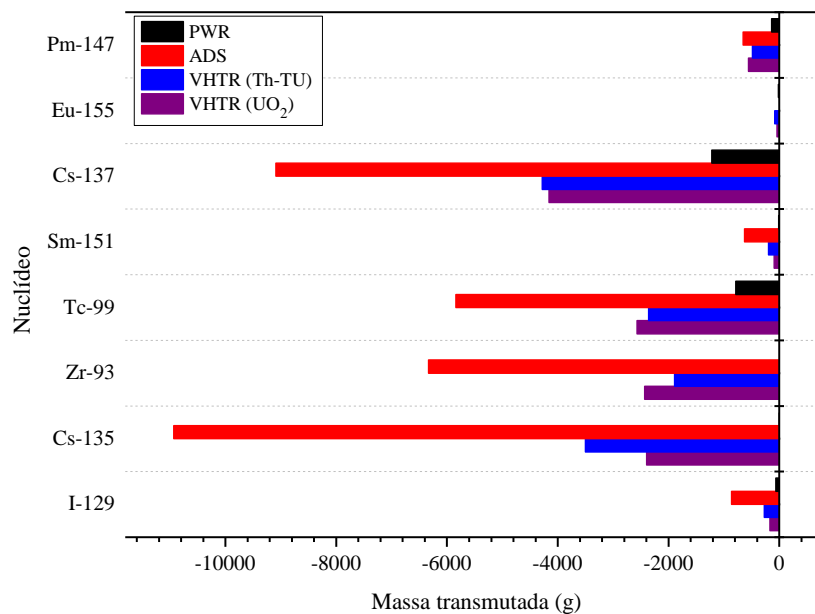
**Figura 4.1 – Massas de actínidos transmutadas ou produzidas nos combustíveis dos sistemas nucleares estudados, calculadas através do código ORIGEN 2.1.**

Na figura 4.1 é mostrado que no combustível do sistema ADS se destacou a transmutação de uma grande massa do isótopo  $^{233}\text{U}$  e também massas de outros actínidos maiores como  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{238}\text{Pu}$ , além de actínidos menores como  $^{241}\text{Am}$  e  $^{244}\text{Cm}$ . No combustível do reator VHTR (Th-TU) sobressaiu-se a transmutação de actínidos maiores, especialmente isótopos do plutônio,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ , além do isótopo  $^{233}\text{U}$ . Destaca-se também, a transmutação dos actínidos menores,  $^{241}\text{Am}$  e  $^{244}\text{Cm}$ . De acordo com a figura 4.1, por cálculos do código ORIGEN 2.1, houve ainda a produção de massas de alguns isótopos. No combustível do sistema ADS destacou-se  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ . No caso do reator VHTR (Th-TU), ocorreu uma grande geração de  $^{235}\text{U}$  e também  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ . Menciona-se a produção de massa do isótopo  $^{235}\text{U}$  no combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>) e  $^{238}\text{U}$  no caso do reator PWR.

**Tabela 4.2 – Variações de massas dos produtos de fissão nos combustíveis dos sistemas nucleares estudados, calculadas pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Sistema de irradiação			
	PWR	VHTR (UO <sub>2</sub> )	VHTR (Th-TU)	ADS
	$\Delta m$ (g)	$\Delta m$ (g)	$\Delta m$ (g)	$\Delta m$ (g)
<sup>147</sup> Pm	-1,39E+02	-5,59E+02	-4,86E+02	-6,51E+02
<sup>155</sup> Eu	-1,43E+01	-4,23E+01	-8,13E+01	-
<sup>137</sup> Cs	-1,22E+03	-4,16E+03	-4,28E+03	-9,09E+03
<sup>151</sup> Sm	-1,37E+01	-9,36E+01	-1,97E+02	-6,28E+02
<sup>99</sup> Tc	-7,87E+02	-2,57E+03	-2,36E+03	-5,84E+03
<sup>93</sup> Zr	-	-2,43E+03	-1,89E+03	-6,33E+03
<sup>135</sup> Cs	3,51E-02	-2,40E+03	-3,50E+03	-1,09E+04
<sup>129</sup> I	-6,50E+01	-1,67E+02	-2,72E+02	-8,60E+02

De acordo com a tabela 4.2, em geral, as maiores massas de produtos de fissão a serem transmutadas foram para o combustível irradiado no sistema ADS. Outra observação dessa tabela é que as massas transmutadas dos combustíveis dos reatores VHTR's apresentaram valores bem aproximados. Na figura 4.2 é indicado que, tanto para o sistema ADS, bem como para os reatores VHTR's, destacaram-se as massas transmutadas dos isótopos <sup>135</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>93</sup>Zr e <sup>99</sup>Tc. No caso do combustível oriundo do reator PWR, as maiores transmutações ocorreram para as massas dos isótopos <sup>137</sup>Cs e <sup>99</sup>Tc.



**Figura 4.2 – Massas de produtos de fissão transmutadas nos combustíveis dos sistemas nucleares estudados, calculadas através do código ORIGEN 2.1.**

#### 4.1.1 Composição do combustível do reator PWR

Na tabela 4.3 é mostrada a evolução isotópica do combustível do reator PWR para os isótopos de actínídeos. São apresentadas as massas totais para cada intervalo de tempo após a descarga do reator.

**Tabela 4.3 – Composição isotópica dos actínídeos no combustível do reator PWR calculada pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Tempo (anos)							
	Descarga	1,00E+01	1,00E+02	1,00E+03	1,00E+04	1,00E+05	1,00E+06	1,00E+07
	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)
<sup>232</sup> Th	2,07E-04	1,40E-03	1,21E-02	1,22E-01	1,45E+00	1,80E+01	1,83E+02	1,61E+03
<sup>233</sup> U	1,40E-03	2,93E-03	1,80E-02	3,41E-01	5,34E+00	4,35E+01	9,60E+01	4,90E+00
<sup>235</sup> U	7,97E+03	8,19E+03	8,21E+03	8,33E+03	9,46E+03	1,30E+04	1,33E+04	1,31E+04
<sup>238</sup> U	9,44E+05	9,70E+05	9,70E+05	9,70E+05	9,70E+05	9,70E+05	9,70E+05	9,69E+05
<sup>237</sup> Np	4,31E+02	4,59E+02	6,06E+02	1,45E+03	1,71E+03	1,66E+03	1,24E+03	6,73E+01
<sup>238</sup> Pu	1,31E+02	1,26E+02	6,20E+01	5,06E-02	-	-	-	-
<sup>239</sup> Pu	4,94E+03	5,17E+03	5,15E+03	5,02E+03	3,87E+03	2,90E+02	-	-
<sup>240</sup> Pu	2,36E+03	2,37E+03	2,35E+03	2,13E+03	8,21E+02	5,89E-02	-	-
<sup>241</sup> Pu	1,22E+03	7,72E+02	1,02E+01	1,55E-18	-	-	-	-
<sup>241</sup> Am	3,25E+01	5,06E+02	1,12E+03	2,67E+02	1,44E-04	-	-	-
<sup>242</sup> Cm	1,47E+01	-	-	-	-	-	-	-
<sup>244</sup> Cm	2,39E+01	-	-	-	-	-	-	-

Analisando a tabela 4.3 percebe-se um aumento da massa do isótopo fértil <sup>232</sup>Th, principalmente no intervalo de tempo após 10<sup>6</sup> anos. A provável causa desse incremento é a transmutação do isótopo <sup>236</sup>U, vida-média 2,39x10<sup>7</sup> anos, que decai através da emissão de partículas  $\alpha$ . Esse comportamento explica a redução do <sup>240</sup>Pu, que têm vida-média 6,58x10<sup>3</sup> anos e que, por decaimento  $\alpha$ , gera o isótopo <sup>236</sup>U. O aumento da massa do isótopo <sup>233</sup>U é um processo decorrente da cadeia de transmutação do <sup>232</sup>Th, quando esse absorve um nêutron e, por decaimento  $\beta^-$ , gera o <sup>233</sup>U. O isótopo <sup>235</sup>U apresenta um considerável incremento de sua massa após 10<sup>4</sup> anos; a causa dessa variação é o decaimento  $\alpha$  que ocorre no isótopo <sup>239</sup>Pu, cuja a meia-vida é 2,44x10<sup>4</sup> anos. A massa de <sup>238</sup>U se manteve estável no decorrer do tempo considerado por esta pesquisa, isso se justifica diante da meia-vida do isótopo que é de 4,47x10<sup>9</sup> anos. A massa do <sup>241</sup>Pu, meia-vida 13,2 anos, se reduz rapidamente, pois esse isótopo, através de decaimento  $\beta^-$ , gera <sup>241</sup>Am. O <sup>241</sup>Am, meia-vida 458 anos, tem sua massa aumentada sensivelmente no período compreendido entre 10<sup>2</sup> e 10<sup>3</sup> anos, principalmente pela contribuição do <sup>241</sup>Pu; mas, após 10<sup>3</sup> anos sua massa se reduz, isso em função de seu decaimento para <sup>237</sup>Np por emissão de partículas  $\alpha$ . O isótopo <sup>237</sup>Np tem uma meia-vida

extensa,  $2,14 \times 10^6$  anos, por isso apresenta redução de sua massa apenas no intervalo final de tempo considerado por esta pesquisa, quando decai por emissão de partículas  $\alpha$  para  $^{233}\text{Pa}$ . O isótopo  $^{238}\text{Pu}$  tem toda sua massa transmutada após  $10^3$  anos, isso porque, sua meia-vida é de apenas 86 anos e o mesmo decai por emissão de  $\alpha$  para  $^{234}\text{U}$ . O isótopo  $^{242}\text{Cm}$  decai em 163 dias e tem sua massa transmutada em  $^{238}\text{Pu}$  por decaimento  $\alpha$ . Por último, o isótopo  $^{244}\text{Cm}$ , meia-vida 18,1 anos, tem sua massa convertida em  $^{240}\text{Pu}$ , por emissão  $\alpha$ .

Na tabela 4.4 é indicada a evolução isotópica dos principais produtos de fissão para esta pesquisa. Como se observa pelas massas, há uma separação entre os isótopos de meia-vida curta e aqueles de meia-vida longa. Como será discutido posteriormente, os produtos de fissão de meia-vida médio-curta, participam intensamente dos processos de decaimento do combustível retirado do reator. Em geral, esse efeito se limita ao período compreendido entre  $10^2$  e  $10^3$  anos; como se vê na tabela 4.4, isso coincide com a presença dos isótopos do  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{147}\text{Pm}$ . Os produtos de fissão de meia-vida longa, embora sejam mais perenes, têm uma participação ligeiramente menor sobre os processos de decaimento quando se compara com os isótopos de vida mais curta, os principais produtos de fissão de vida longa são o  $^{99}\text{Tc}$  e  $^{129}\text{I}$ . Com relação à ausência do isótopo  $^{93}\text{Zr}$ , se deve ao fato do código ORIGEN 2.1 não lançar sua contribuição no rol de isótopos.

**Tabela 4.4 – Composição dos produtos de fissão no combustível do reator PWR calculada pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Tempo (anos)							
	Descarga	1,00E+01	1,00E+02	1,00E+03	1,00E+04	1,00E+05	1,00E+06	1,00E+07
	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)
$^{147}\text{Pm}$	1,39E+02	9,90E+00	4,64E-10	-	-	-	-	-
$^{155}\text{Eu}$	1,43E+01	3,53E+00	1,22E-05	-	-	-	-	-
$^{137}\text{Cs}$	1,22E+03	9,68E+02	1,21E+02	1,13E-07	-	-	-	-
$^{151}\text{Sm}$	1,37E+01	1,27E+01	6,34E+00	6,19E-03	-	-	-	-
$^{99}\text{Tc}$	7,87E+02	7,87E+02	7,87E+02	7,84E+02	7,62E+02	5,68E+02	3,04E+01	5,80E-12
$^{93}\text{Zr}$	-	-	-	-	-	-	-	-
$^{135}\text{Cs}$	-	7,14E-01	7,14E-01	7,14E-01	7,12E-01	6,93E-01	5,28E-01	3,51E-02
$^{129}\text{I}$	1,82E+02	1,82E+02	1,82E+02	1,82E+02	1,82E+02	1,82E+02	1,74E+02	1,17E+02



#### 4.1.2 Composição do combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>)

Na tabela 4.5, é mostrada a evolução isotópica do combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>) para os isótopos de actinídeos. São apresentadas as massas totais para os respectivos intervalos de tempo após a retirada do material do reator. Na tabela 4.6, são listadas as massas dos produtos de fissão para o caso desse reator.

**Tabela 4.5 – Composição dos actinídeos no combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>) calculada pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Tempo (anos)							
	Descarga	1,00E+01	1,00E+02	1,00E+03	1,00E+04	1,00E+05	1,00E+06	1,00E+07
	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)
<sup>232</sup> Th	1,11E-03	8,56E-03	7,57E-02	7,58E-01	8,35E+00	9,57E+01	9,64E+02	8,48E+03
<sup>233</sup> U	2,56E-03	1,26E-02	1,07E-01	1,70E+00	2,42E+01	1,98E+02	4,36E+02	2,22E+01
<sup>235</sup> U	5,50E+04	5,49E+04	5,50E+04	5,57E+04	6,18E+04	8,11E+04	8,26E+04	8,18E+04
<sup>238</sup> U	8,59E+05	8,59E+05	8,59E+05	8,59E+05	8,59E+05	8,59E+05	8,60E+05	8,59E+05
<sup>237</sup> Np	2,96E+03	3,04E+03	3,60E+03	6,80E+03	7,77E+03	7,54E+03	5,64E+03	3,05E+02
<sup>238</sup> Pu	1,25E+03	1,20E+03	5,88E+02	4,80E-01	-	-	-	-
<sup>239</sup> Pu	2,77E+04	2,80E+04	2,79E+04	2,72E+04	2,11E+04	1,59E+03	8,76E-09	-
<sup>240</sup> Pu	8,13E+03	8,15E+03	8,13E+03	7,39E+03	2,85E+03	2,04E-01	-	-
<sup>241</sup> Pu	4,71E+03	2,90E+03	3,82E+01	5,83E-18	-	-	-	-
<sup>241</sup> Am	1,46E+02	1,92E+03	4,23E+03	1,01E+03	5,43E-04	-	-	-
<sup>242</sup> Cm	3,29E+01	6,02E-06	-	-	-	-	-	-
<sup>244</sup> Cm	8,78E+01	5,98E+01	1,91E+00	2,09E-15	-	-	-	-

O comportamento dos isótopos de actinídeos no combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>) é similar àquele observado para o combustível oriundo do reator PWR. Isso já deveria ser esperado, pois, os dois combustíveis são iguais. De um modo geral, os actinídeos menores (neptúnio, amerício e cúrio) têm suas massas reduzidas até o intervalo 10<sup>4</sup> anos; isso, em virtude de meias-vidas curtas. O isótopo <sup>242</sup>Cm decai muito rapidamente em <sup>238</sup>Pu através de emissão de partículas  $\alpha$ . O isótopo <sup>244</sup>Cm (18,1 anos) tem massa transmutada para <sup>240</sup>Pu até aproximadamente 10<sup>3</sup> anos por decaimento  $\alpha$ . Para o <sup>241</sup>Am há um incremento de massa até 10<sup>2</sup> anos. Atribui-se isso ao decaimento do isótopo do plutônio <sup>241</sup>Pu (13,2 anos), através de emissão de partículas  $\beta^-$ . Após 10<sup>2</sup> anos, o <sup>241</sup>Am decai até 10<sup>4</sup> anos por emissão de  $\alpha$ , gerando um incremento na massa de <sup>237</sup>Np. Em virtude de meia-vida longa, o isótopo <sup>237</sup>Np, só apresenta redução em sua massa após 10<sup>5</sup> anos, quando decai por  $\alpha$  para <sup>233</sup>Pa. Com relação aos isótopos de plutônio, o <sup>238</sup>Pu tem sua massa transmutada para <sup>234</sup>U, através de decaimento  $\alpha$ , até 10<sup>3</sup> anos. Embora o <sup>240</sup>Pu receba uma pequena contribuição em decorrência da transmutação de <sup>244</sup>Cm, sua massa é convertida em <sup>236</sup>U, por emissão de  $\alpha$ , até

aproximadamente  $10^5$  anos. Na tabela 4.5, é visto que o isótopo  $^{239}\text{Pu}$  tem sua massa reduzida a partir de  $10^3$  anos. Isso decorre da transmutação desse isótopo para  $^{235}\text{U}$  como pode ser visto pelos valores contidos na tabela 4.5. O  $^{232}\text{Th}$  têm significativo aumento de massa após  $10^5$  anos. Esse fato decorre da transmutação do  $^{236}\text{U}$  por emissão de partículas  $\alpha$ . Vale destacar que já foi comentada a contribuição do  $^{240}\text{Pu}$  no incremento de massa do  $^{236}\text{U}$ . As variações de massa do isótopo  $^{233}\text{U}$  decorrem do processo de regeneração do  $^{232}\text{Th}$ . O isótopo  $^{238}\text{U}$  manteve sua massa estável, principalmente, por sua meia-vida ser longa.

**Tabela 4.6 – Composição dos produtos de fissão no combustível do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ) calculada pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Tempo (anos)							
	Descarga	1,00E+01	1,00E+02	1,00E+03	1,00E+04	1,00E+05	1,00E+06	1,00E+07
	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)
$^{147}\text{Pm}$	5,59E+02	3,97E+01	1,89E-09	-	-	-	-	-
$^{155}\text{Eu}$	4,23E+01	1,05E+01	3,60E-05	-	-	-	-	-
$^{137}\text{Cs}$	4,16E+03	3,30E+03	4,13E+02	3,83E-07	-	-	-	-
$^{151}\text{Sm}$	9,36E+01	8,66E+01	4,33E+01	4,23E-02	-	-	-	-
$^{99}\text{Tc}$	2,57E+03	2,57E+03	2,57E+03	2,57E+03	2,49E+03	1,86E+03	9,92E+01	1,89E-01
$^{93}\text{Zr}$	2,46E+03	2,46E+03	2,46E+03	2,46E+03	2,46E+03	2,35E+03	1,56E+03	2,65E+01
$^{135}\text{Cs}$	2,52E+03	2,52E+03	2,52E+03	2,52E+03	2,52E+03	2,45E+03	1,87E+03	1,24E+02
$^{129}\text{I}$	4,65E+02	4,64E+02	4,64E+02	4,64E+02	4,64E+02	4,62E+02	4,44E+02	2,98E+02

### 4.1.3 Composição do combustível do reator VHTR (Th-TU)

Na tabela 4.7 é indicado o comportamento isotópico dos actinídeos no combustível irradiado no reator VHTR (Th-TU). As massas totais dos isótopos são indicadas em função dos respectivos períodos de tempo após a retirada do material do reator. A tabela 4.8 contém a composição dos produtos de fissão mais representativos para o combustível desse reator.

**Tabela 4.7 – Composição dos actinídeos no combustível do reator VHTR (Th-TU) calculada pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Tempo (anos)							
	Descarga	1,00E+01	1,00E+02	1,00E+03	1,00E+04	1,00E+05	1,00E+06	1,00E+07
	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)
<sup>232</sup> Th	7,67E+05	7,67E+05	7,67E+05	7,67E+05	7,67E+05	7,67E+05	7,69E+05	7,80E+05
<sup>233</sup> U	3,25E+04	3,49E+04	3,49E+04	3,47E+04	3,35E+04	2,35E+04	2,52E+03	1,06E+02
<sup>235</sup> U	1,49E+03	1,50E+03	1,63E+03	2,88E+03	1,43E+04	5,37E+04	5,69E+04	5,64E+04
<sup>238</sup> U	1,31E-01	4,08E-01	2,90E+00	2,78E+01	2,74E+02	2,53E+03	1,29E+04	1,54E+04
<sup>237</sup> Np	3,98E+03	4,16E+03	8,10E+03	3,04E+04	3,71E+04	3,61E+04	2,69E+04	1,46E+03
<sup>238</sup> Pu	9,95E+03	9,20E+03	4,52E+03	3,69E+00	-	-	-	-
<sup>239</sup> Pu	4,95E+04	4,95E+04	4,94E+04	4,87E+04	4,07E+04	3,34E+03	1,84E-08	-
<sup>240</sup> Pu	5,01E+04	5,17E+04	5,46E+04	4,97E+04	1,92E+04	1,37E+00	-	-
<sup>241</sup> Pu	2,82E+04	1,74E+04	2,29E+02	3,50E-17	-	-	-	-
<sup>241</sup> Am	5,61E+03	1,62E+04	2,94E+04	7,00E+03	3,77E-03	-	-	-
<sup>242</sup> Cm	-	-	-	-	-	-	-	-
<sup>244</sup> Cm	5,28E+03	3,60E+03	1,15E+02	1,26E-13	-	-	-	-

Embora o combustível do reator VHTR (Th-TU) seja oriundo da técnica de reprocessamento UREX+, de uma forma em geral, o comportamento desse combustível não divergiu dos demais materiais estudados. Uma ressalva deve ser feita para o caso do isótopo <sup>242</sup>Cm que não teve massa indicada pelo cálculo de queima no código SCALE 6.0 e, por isso, não teve sua evolução isotópica acompanhada pelos cálculos do código ORIGEN 2.1. O <sup>244</sup>Cm teve sua massa reduzida até 10<sup>3</sup> anos, esse isótopo decai para <sup>240</sup>Pu através de emissão de partículas  $\alpha$ . A massa do isótopo <sup>237</sup>Np teve um incremento de quase uma ordem de grandeza entre a extração do material do reator e o tempo de 10<sup>4</sup> anos. Como se conclui da tabela 4.7, isso pode ser explicado pela transmutação dos isótopos de <sup>241</sup>Am por decaimento  $\alpha$ . Aliás, o <sup>241</sup>Am tem contribuições oriundas do <sup>241</sup>Pu, que, por emissão de  $\beta^-$ , se transmuta para <sup>241</sup>Am. Ainda com relação à massa de <sup>237</sup>Np, percebe-se que irá decrescer somente após 10<sup>5</sup> anos. Essa conclusão é óbvia, visto que o tempo de meia-vida desse isótopo é 2,14x10<sup>6</sup> anos. O isótopo <sup>240</sup>Pu, meia-vida 6,58x10<sup>3</sup> anos, transmuta sua massa por decaimento  $\alpha$ , para o isótopo <sup>236</sup>U, no intervalo compreendido entre 10<sup>2</sup> e aproximadamente 10<sup>5</sup> anos. O <sup>238</sup>Pu não contabilizou nenhuma contribuição em sua massa devido à transmutação do <sup>242</sup>Cm, pelas

razões mencionadas anteriormente. Por isso, esse isótopo manteve sua massa estável até 10 anos. Após esse período, passou a transmutar-se para  $^{234}\text{U}$ , através de decaimento  $\alpha$ , até  $10^3$  anos. O isótopo  $^{239}\text{Pu}$  manteve sua massa estável até aproximadamente  $10^4$  anos, após esse tempo, sua massa decaiu para  $^{235}\text{U}$  através de emissão de partículas  $\alpha$ . Isso corrobora o incremento da massa de  $^{235}\text{U}$  indicado nos valores da tabela 4.7. A massa de  $^{232}\text{Th}$  não apresentou nenhuma variação significativa, provavelmente, não tenha acontecido contribuições do isótopo  $^{236}\text{U}$ . Com relação ainda ao  $^{232}\text{Th}$ , seu efeito regenerador sobre a massa de  $^{233}\text{U}$  foi extremamente discreto. Aliás, a massa de  $^{233}\text{U}$  passou por decréscimos, notadamente, após  $10^5$  anos. Esse fato não é difícil de ser explicado, pois seu tempo de meia-vida é  $1,59 \times 10^5$  anos, transmutando-se em  $^{229}\text{Th}$  por decaimento  $\alpha$ . Finalmente, percebe-se um aumento da massa do isótopo  $^{238}\text{U}$ , embora não esteja contemplado na tabela 4.7, acredita-se que esse incremento tenha ocorrido em função do decaimento  $\alpha$  dos isótopos de  $^{242}\text{Pu}$ .

**Tabela 4.8 – Composição dos produtos de fissão no combustível do reator VHTR (Th-TU) calculada pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Tempo (anos)							
	Descarga	1,00E+01	1,00E+02	1,00E+03	1,00E+04	1,00E+05	1,00E+06	1,00E+07
	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)
$^{147}\text{Pm}$	4,86E+02	3,46E+01	1,63E-09	-	-	-	-	-
$^{155}\text{Eu}$	8,13E+01	2,01E+01	6,92E-05	-	-	-	-	-
$^{137}\text{Cs}$	4,28E+03	3,40E+03	4,25E+02	3,95E-07	-	-	-	-
$^{151}\text{Sm}$	1,97E+02	1,82E+02	9,12E+01	8,90E-02	-	-	-	-
$^{99}\text{Tc}$	2,36E+03	2,35E+03	2,35E+03	2,35E+03	2,28E+03	1,70E+03	9,11E+01	1,74E-11
$^{93}\text{Zr}$	1,91E+03	1,91E+03	1,91E+03	1,91E+03	1,90E+03	1,83E+03	1,21E+03	2,06E+01
$^{135}\text{Cs}$	3,68E+03	3,68E+03	3,68E+03	3,68E+03	3,67E+03	3,57E+03	2,72E+03	1,81E+02
$^{129}\text{I}$	7,62E+02	7,62E+02	7,62E+02	7,62E+02	7,62E+02	7,59E+02	7,29E+02	4,90E+02

#### 4.1.4 Composição do combustível do sistema ADS

A tabela 4.9 contém a evolução isotópica dos actinídeos presentes no combustível extraído do sistema ADS. Cada isótopo tem sua massa total indicada nos correspondentes intervalos de tempo após a retirada do combustível do reator. A tabela 4.10 contém os principais produtos de fissão do combustível do sistema ADS.

**Tabela 4.9 – Composição dos actinídeos no combustível do sistema ADS calculada pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Tempo (anos)							
	Descarga	1,00E+01	1,00E+02	1,00E+03	1,00E+04	1,00E+05	1,00E+06	1,00E+07
	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)
<sup>232</sup> Th	6,88E+05	6,88E+05	6,88E+05	6,88E+05	6,88E+05	6,88E+05	6,89E+05	6,95E+05
<sup>233</sup> U	7,66E+04	7,78E+04	7,78E+04	7,75E+04	7,45E+04	5,06E+04	1,60E+03	3,15E+01
<sup>235</sup> U	1,81E+03	1,81E+03	1,85E+03	2,21E+03	5,55E+03	1,76E+04	1,86E+04	1,84E+04
<sup>238</sup> U	1,44E+03	1,44E+03	1,44E+03	1,46E+03	1,62E+03	3,07E+03	9,72E+03	1,14E+04
<sup>237</sup> Np	1,88E+03	1,96E+03	3,03E+03	8,81E+03	1,08E+04	1,07E+04	7,98E+03	4,32E+02
<sup>238</sup> Pu	5,33E+03	5,07E+03	2,49E+03	2,03E+00	-	-	-	-
<sup>239</sup> Pu	1,41E+04	1,41E+04	1,41E+04	1,40E+04	1,21E+04	1,03E+03	5,67E-09	-
<sup>240</sup> Pu	2,79E+04	2,85E+04	2,94E+04	2,68E+04	1,03E+04	7,39E-01	-	-
<sup>241</sup> Pu	4,75E+03	2,94E+03	3,93E+01	7,20E-01	3,46E-01	2,24E-04	-	-
<sup>241</sup> Am	4,09E+03	5,82E+03	7,63E+03	1,83E+03	1,08E+01	6,73E-03	-	-
<sup>242</sup> Cm	1,54E+02	2,82E-05	-	-	-	-	-	-
<sup>244</sup> Cm	1,89E+03	1,29E+03	4,11E+01	4,51E-14	-	-	-	-

Os isótopos contidos no combustível do sistema ADS também apresentaram um comportamento bem semelhante aos demais casos já citados. É importante mencionar que esse combustível, antes da queima, havia sido reprocessado pelo método *GANEX*. Analisando os valores da tabela 4.9, nota-se que o isótopo <sup>242</sup>Cm, por ter meia-vida curta, 163 dias, decai rapidamente, não tendo registro de sua massa após 10 anos. A massa desse isótopo transmuta para <sup>238</sup>Pu, via decaimento  $\alpha$ . O outro isótopo do elemento cúrio, <sup>244</sup>Cm, decai até 10<sup>3</sup> anos, também por emissão  $\alpha$ , para <sup>240</sup>Pu. Aliás, como é visto na tabela 4.9, o <sup>240</sup>Pu decai rapidamente para <sup>236</sup>U após 10<sup>4</sup> anos. O <sup>241</sup>Am tem um considerável incremento de massa pelo decaimento do <sup>241</sup>Pu através de emissão de partículas  $\beta^-$ , porém, entre 10<sup>2</sup> e 10<sup>3</sup> anos, o <sup>241</sup>Am transmuta para o <sup>237</sup>Np via decaimento  $\alpha$ . Como mencionado outras vezes, o <sup>237</sup>Np tem uma meia-vida longa, transmutando para <sup>233</sup>Pa somente após 10<sup>5</sup> anos. Entre os isótopos de plutônio, o <sup>238</sup>Pu tem a menor meia-vida, 86 anos, decaindo por  $\alpha$ , para <sup>234</sup>U. Esse processo ocorre até aproximadamente 10<sup>3</sup> anos. Já o <sup>239</sup>Pu decai para <sup>235</sup>U imediatamente após 10<sup>4</sup> anos. Essa afirmação é coerente, pois o tempo de meia-vida do <sup>239</sup>Pu é exatamente 2,44x10<sup>4</sup> anos. Após receber as contribuições decorrentes desse processo, a massa de <sup>235</sup>U permanece

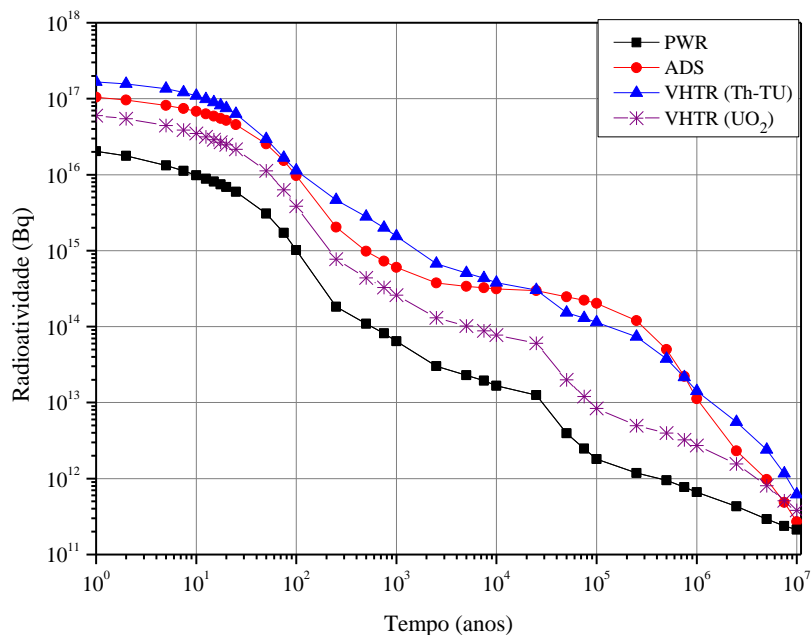
estável, não apresentando alterações significativas. O aumento da massa de  $^{238}\text{U}$ , que se torna significativo após  $10^4$  anos é atribuído a um possível decaimento do  $^{242}\text{Pu}$  (meia-vida de  $3,73 \times 10^5$  anos) através de partículas  $\alpha$ . O isótopo  $^{232}\text{Th}$  permaneceu praticamente estável durante todo o tempo de cálculo, apresentando um pequeno incremento de massa próximo a  $10^7$  anos. A provável causa disso é alguma transmutação do  $^{236}\text{U}$ , que tem uma meia-vida de  $2,39 \times 10^7$  anos. Esse comportamento pode ter influenciado a massa do  $^{233}\text{U}$ , que não aumentou pela regeneração do  $^{232}\text{Th}$ . Pelo contrário, após  $10^5$  anos, sua massa decresceu. É um processo também previsível, visto que seu tempo de meia-vida é  $1,59 \times 10^5$  anos, transmutando-se em  $^{229}\text{Th}$  por decaimento  $\alpha$ .

**Tabela 4.10 – Composição dos produtos de fissão no combustível do sistema ADS calculada pelo código ORIGEN 2.1.**

Nuclídeo	Tempo (anos)							
	Descarga	1,00E+01	1,00E+02	1,00E+03	1,00E+04	1,00E+05	1,00E+06	1,00E+07
	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)	m (g)
$^{147}\text{Pm}$	6,51E+02	4,64E+01	2,17E-09	-	-	-	-	-
$^{155}\text{Eu}$	-	-	-	-	-	-	-	-
$^{137}\text{Cs}$	9,09E+03	7,22E+03	9,02E+02	8,38E-07	-	-	-	-
$^{151}\text{Sm}$	6,28E+02	5,81E+02	2,91E+02	2,84E-01	-	-	-	-
$^{99}\text{Tc}$	5,84E+03	5,84E+03	5,84E+03	5,84E+03	5,65E+03	4,22E+03	2,26E+02	4,31E-11
$^{93}\text{Zr}$	6,40E+03	6,40E+03	6,40E+03	6,40E+03	6,37E+03	6,12E+03	4,07E+03	6,90E+01
$^{135}\text{Cs}$	1,15E+04	1,15E+04	1,15E+04	1,15E+04	1,15E+04	1,12E+04	8,51E+03	5,65E+02
$^{129}\text{I}$	2,42E+03	2,42E+03	2,42E+03	2,42E+03	2,42E+03	2,41E+03	2,32E+03	1,56E+03

## 4.2 Radioatividade

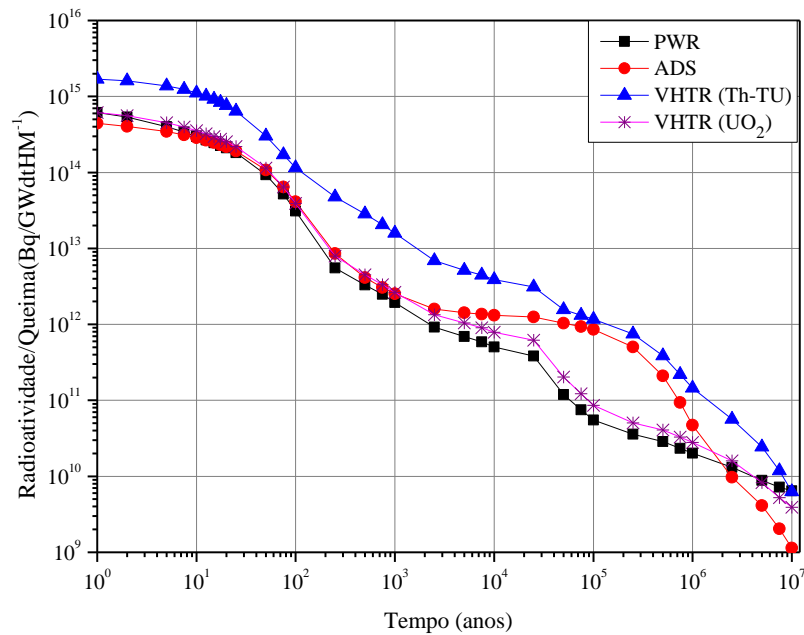
Na figura 4.3 é apresentada a radioatividade emitida pelos quatro combustíveis até  $10^7$  anos. Percebe-se que o combustível do reator PWR emite a menor radioatividade. O combustível do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ) emite radiação com valores intermediários, mas uma observação mais detalhada nos permite dizer que o perfil de radiação emitida pelo combustível desse reator tem uma forma semelhante ao perfil do reator PWR. Uma vez que esses reatores são abastecidos com combustíveis semelhantes, diferindo no percentual de enriquecimento, é uma constatação que deveria ser esperada. Em geral, a radioatividade emitida pelos sistemas ADS e VHTR (Th-TU), apresentam valores quase similares. No entanto, excetuando-se o período de tempo compreendido entre  $3,0 \times 10^4$  e  $7,5 \times 10^5$  anos, o combustível do sistema ADS sempre emite menos radioatividade que o material do reator VHTR (Th-TU).



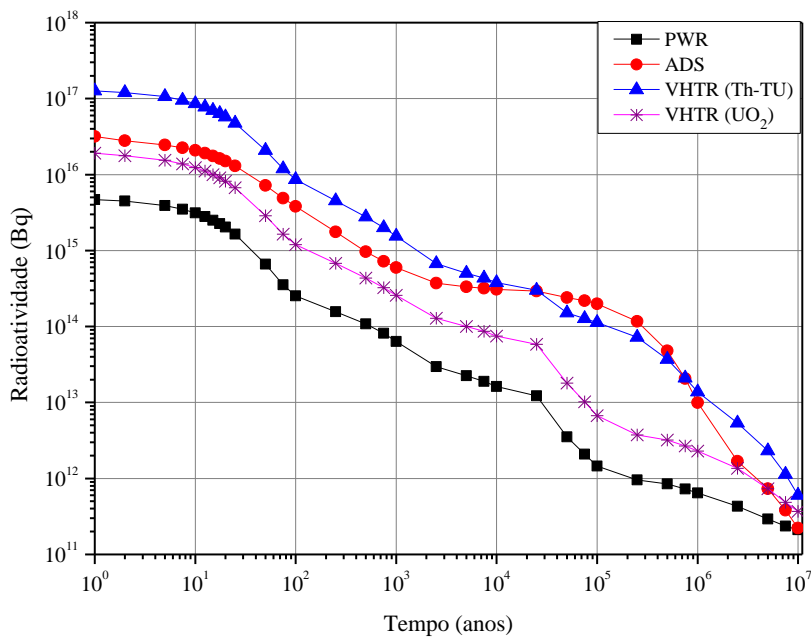
**Figura 4.3 – Radioatividade total do combustível para cada sistema.**

Na figura 4.4 a radioatividade total de cada combustível é normalizada pela respectiva queima. Quando essa normalização é feita, o combustível do sistema ADS apresenta uma considerável alteração no perfil de sua curva e passa a ter um comportamento muito próximo daquele apresentado pelo combustível do reator PWR, que inicialmente se mostrava menos radioativo. Essa observação é muito relevante, pois, como foram consideradas massas iguais para os quatro sistemas investigados, o sistema ADS apresentou

maior produção energética por conteúdo de combustível e emitiu radiação em intensidade muito próxima àquela do combustível do reator PWR. Entre os instantes  $1,0 \times 10^3$  e  $2,0 \times 10^6$  anos, o combustível do sistema ADS apresenta um incremento na radiação, mas, após isso, se torna menos radioativo que os demais.

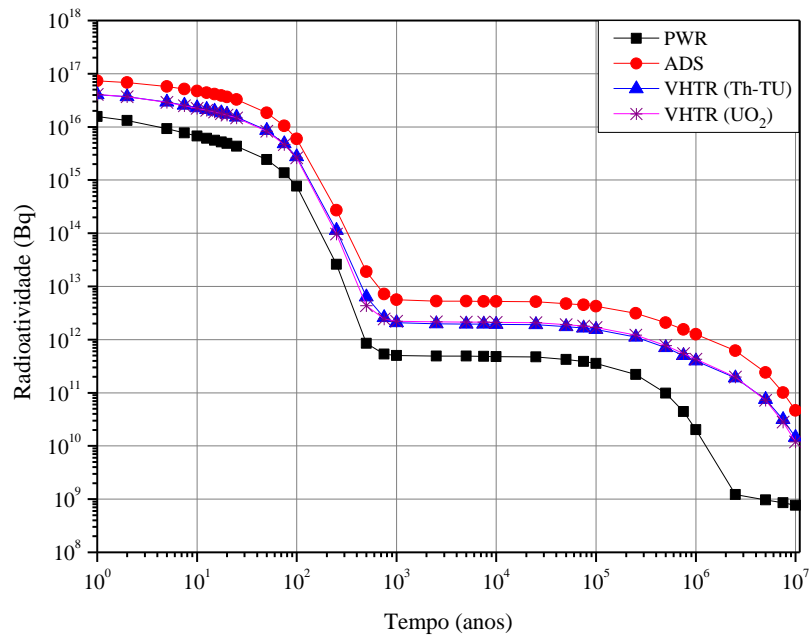


**Figura 4.4 – Radioatividade total do combustível para cada sistema, normalizada pela respectiva queima.**



**Figura 4.5 – Radioatividade por actínides do combustível para cada sistema.**

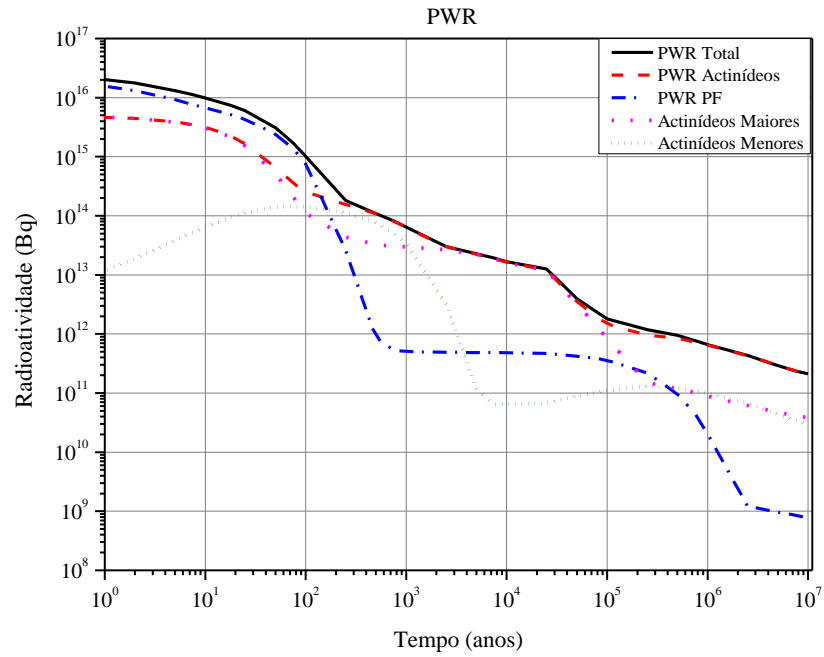




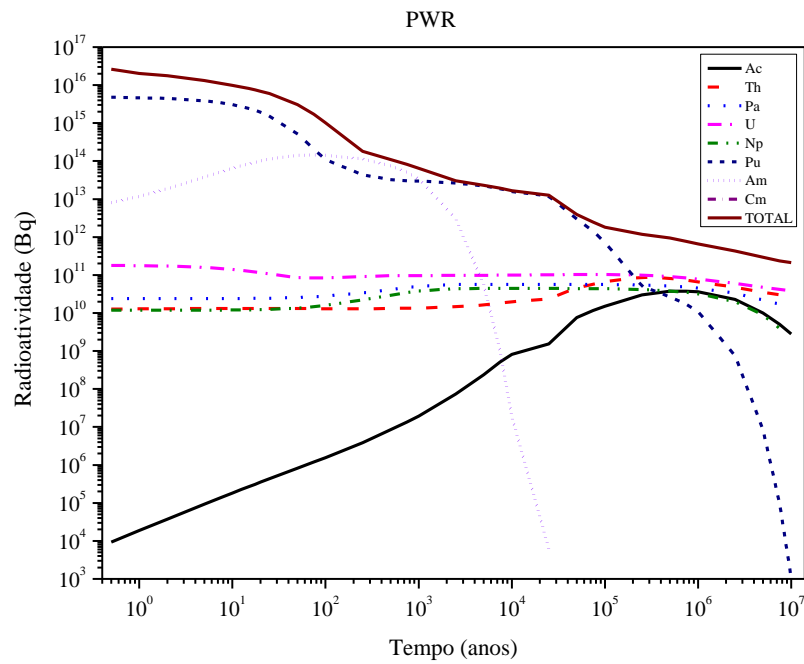
**Figura 4.6 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível para cada sistema.**

As figuras 4.3 e 4.5 mostram que os actínídeos dominam os processos de emissão de radiação, especialmente após  $10^2$  anos, determinando a forma geral de cada curva. Quando analisamos apenas a influência dos produtos de fissão vemos que a radiação emitida pelo material do sistema ADS se torna, ligeiramente, superior à radiação emitida pelo material do reator VHTR (Th-TU). Isso é percebido pelo afastamento das duas curvas mostradas na figura 4.6. Com relação aos reatores PWR e VHTR (UO<sub>2</sub>), o comportamento médio é mantido. Além disso, os produtos de fissão dos dois reatores tipo VHTR apresentam uma forte similaridade nos valores da radiação emitida pelos produtos de fissão.

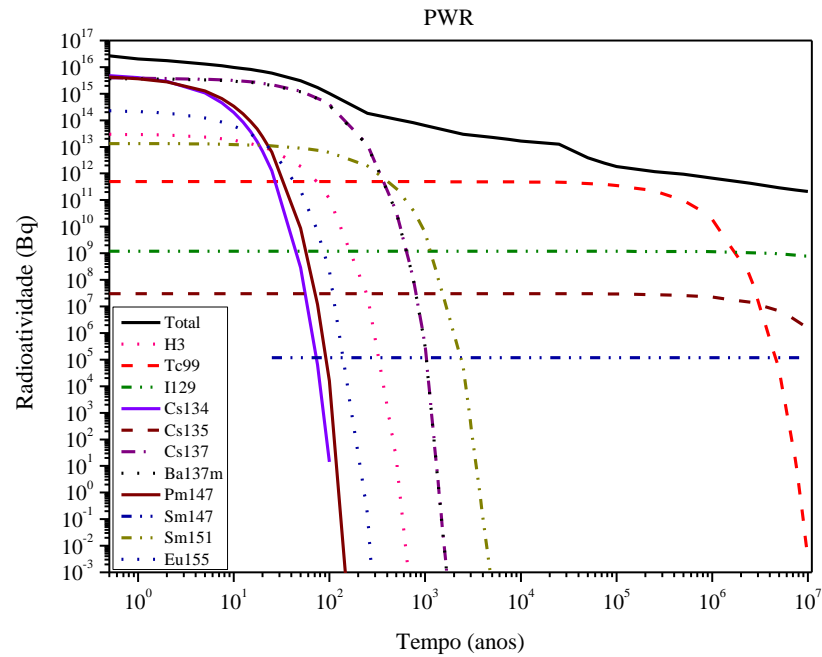
Na figura 4.7 é mostrado que para o reator PWR os produtos de fissão dominam a emissão de radioatividade até  $2,0 \times 10^2$  anos. Após esse período, os actínídeos são preponderantes até  $10^7$  anos. Os actínídeos maiores dominam a emissão de radiação até  $5,0 \times 10^5$  anos. A partir desse tempo, as emissões de actínídeos maiores e menores convergem. Na figura 4.8 é mostrado que os isótopos do plutônio dominam as emissões radioativas. Destacam-se os isótopos  $^{241}\text{Pu}$  e  $^{238}\text{Pu}$ . De acordo com essa figura os isótopos do amerício, especialmente  $^{241}\text{Am}$ , também colaboram significativamente com a emissão de radiação.



**Figura 4.7 – Radioatividade total do combustível do reator PWR.**

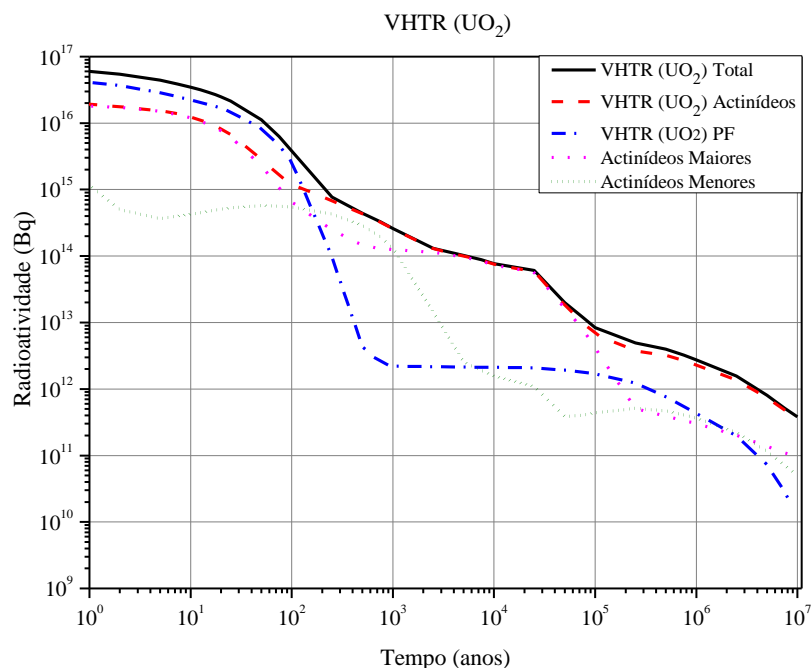


**Figura 4.8 – Radioatividade por actinídeos do combustível do reator PWR.**



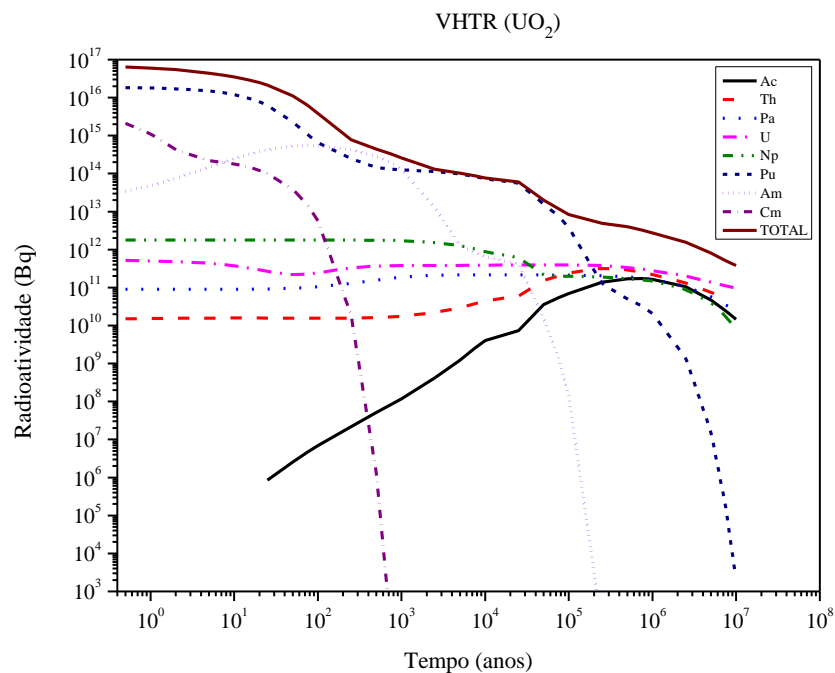
**Figura 4.9 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível do reator PWR.**

Observando a figura 4.9 é possível notar que os isótopos do césio ( $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ ), juntamente com o isótopo  $^{147}\text{Pm}$ , são fortemente radioativos, especialmente até  $10^2$  anos. Após  $10^3$  anos as emissões radioativas são dominadas pelos isótopos de longa-vida, destacando-se  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  e  $^{147}\text{Sm}$ .

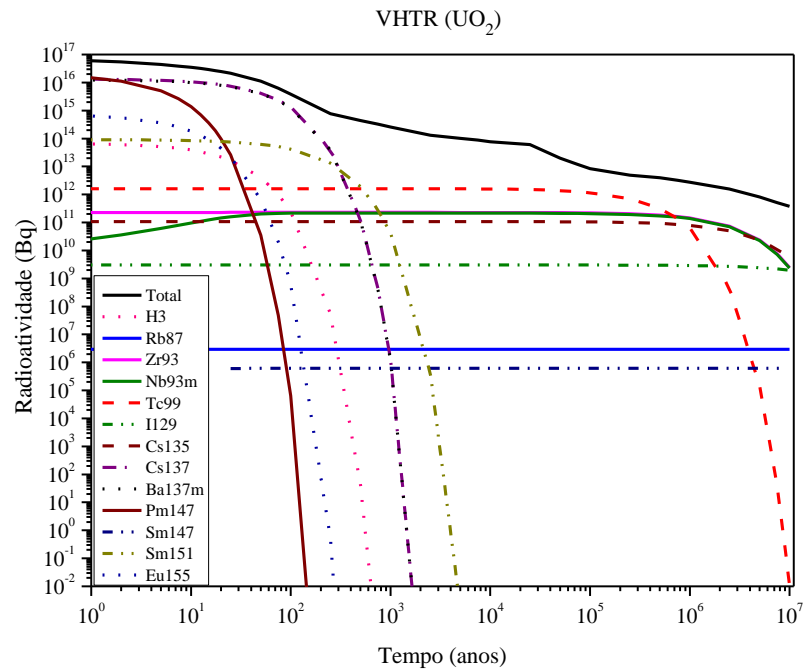


**Figura 4.10 – Radioatividade total do combustível do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ).**

À semelhança do que ocorreu no caso do reator PWR, na figura 4.10 é mostrado que, quando investigamos as emissões radioativas do combustível do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ), temos inicialmente um predomínio dos produtos de fissão, até um pouco mais pronunciado, devido ao afastamento das curvas. Porém, após  $10^2$  anos, a hegemonia dos actínídeos se evidencia. Neste contexto, os isótopos do plutônio, especialmente,  $^{241}\text{Pu}$  e  $^{238}\text{Pu}$ , emitem uma intensa radiação. Todavia, dois actínídeos menores não devem ter negligenciada sua colaboração para a radiação. O cúrio, através dos isótopos  $^{242}\text{Cm}$  e  $^{244}\text{Cm}$ , juntamente com o amerício,  $^{241}\text{Am}$ , embora não dominantes, participam significativamente com a radiação emitida até 20 anos. Há de destacar-se que, no caso do  $^{241}\text{Am}$ , a contribuição é extremamente intensa até  $2,0 \times 10^2$  anos. Além das assertivas anteriores, a figura 4.11 nos indica que, após  $10^6$  anos, os actínídeos menores assumem um papel preponderante sobre a radiação, merecem destaque os isótopos  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{229}\text{Th}$  e  $^{225}\text{Ac}$ . A colaboração mais significativa dos actínídeos maiores neste período é relativa ao urânio, devido à colaboração dos isótopos  $^{233}\text{U}$  e  $^{236}\text{U}$ .



**Figura 4.11 – Radioatividade por actínídeos do combustível do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ).**



**Figura 4.12 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>).**

Percebe-se na figura 4.12 que entre os produtos de fissão, até aproximadamente 20 anos, um grupo de isótopos de vida médio-curta tem o predomínio na emissão de radiação no combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>). Merecem destaque <sup>137</sup>Cs, <sup>147</sup>Pm, <sup>155</sup>Eu e <sup>3</sup>H. Após 10<sup>3</sup> anos é evidente o domínio dos produtos de fissão de vida-longa; destacam-se os isótopos <sup>99</sup>Tc, <sup>93m</sup>Nb, <sup>93</sup>Zr, <sup>135</sup>Cs e <sup>129</sup>I. Na figura 4.13 é mostrado que para o reator VHTR (Th-TU) a radiação dos actínídeos é sempre superior àquela oriunda dos produtos de fissão. Excetuando-se o período entre 10<sup>2</sup> e 10<sup>3</sup> anos, os actínídeos maiores têm uma contribuição maior na radiação que os actínídeos menores, desde o instante da descarga até 5,0 x 10<sup>5</sup> anos. A partir desse momento, as contribuições dos dois grupos são bem similares. Na figura 4.14 é indicado que os isótopos de plutônio também têm uma prevalência na emissão de radiação do combustível irradiado em um reator VHTR (Th-TU). Novamente, os isótopos <sup>241</sup>Pu e <sup>238</sup>Pu, merecem destaque. Mas, para o reator VHTR (Th-TU), há uma forte influência de dois isótopos de actínídeos menores, <sup>244</sup>Cm e <sup>241</sup>Am que participam com uma contribuição significativa na radioatividade do material, desde a retirada do reator até o instante 10<sup>3</sup> anos.

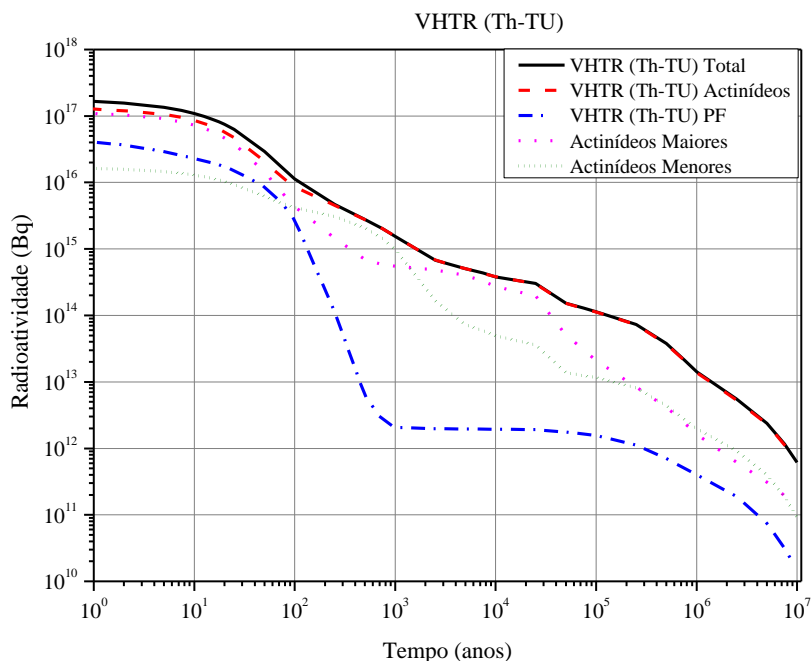


Figura 4.13 – Radioatividade total do combustível do reator VHTR (Th-TU).

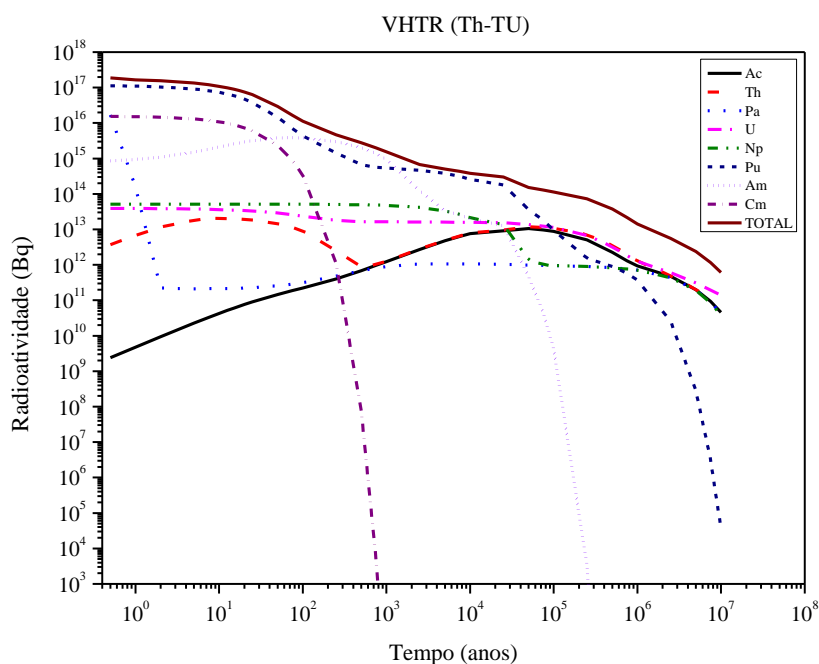
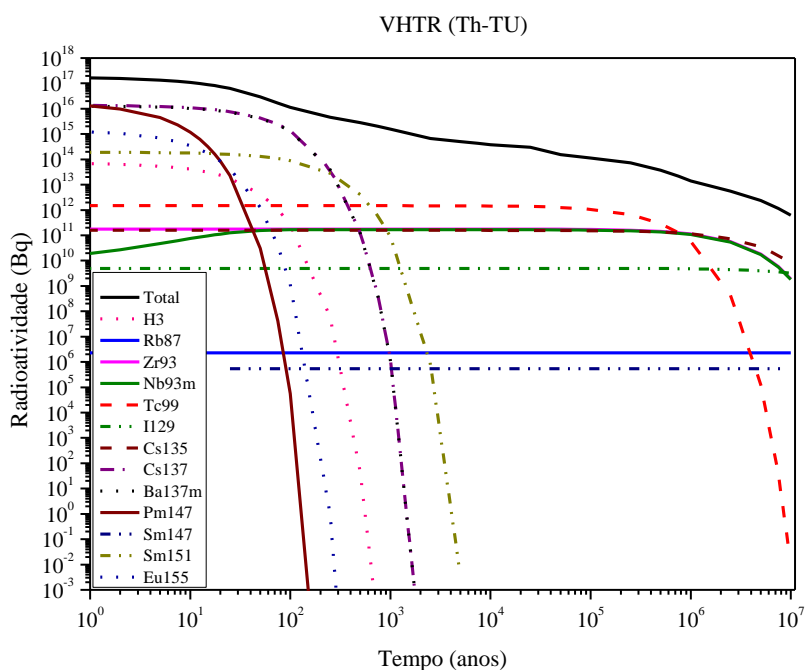


Figura 4.14 – Radioatividade por actínídeos do combustível do reator VHTR (Th-TU).

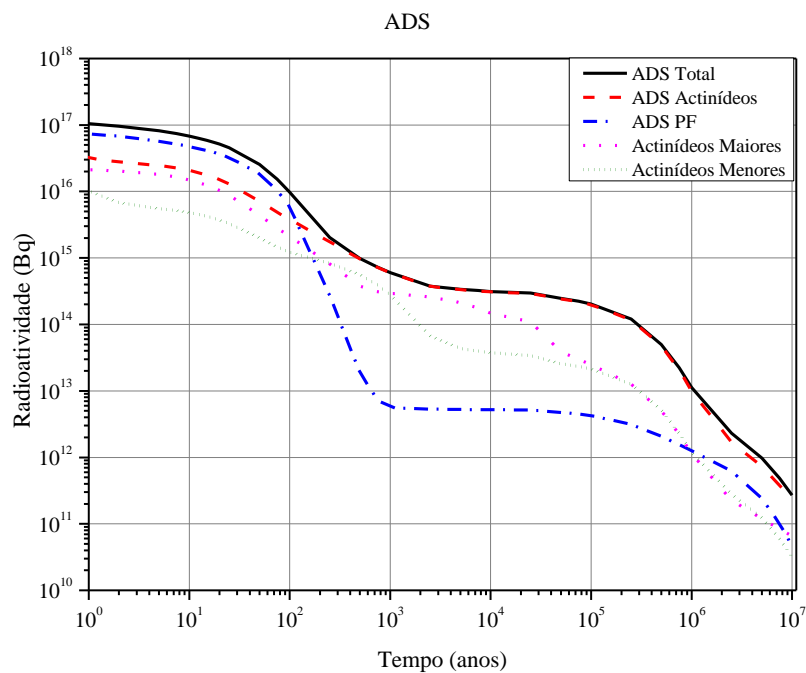
Na figura 4.15 percebe-se que o perfil da radiação emitida pelos produtos de fissão para o reator VHTR (Th-TU) é muito similar ao perfil do reator VHTR (UO<sub>2</sub>). No caso do reator VHTR (Th-TU) o predomínio dos produtos de fissão de vida médio-curta ocorre até aproximadamente  $6,0 \times 10^2$  anos. Destacam-se nesse período os isótopos do <sup>137</sup>Cs, <sup>147</sup>Pm, com colaborações significativas do <sup>155</sup>Eu, <sup>151</sup>Sm e <sup>3</sup>H. Após  $10^3$  anos, os produtos de fissão de

longa-vida são hegemônicos, dominando as emissões. São importantes para esse intervalo as contribuições do  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  e  $^{129}\text{I}$ .

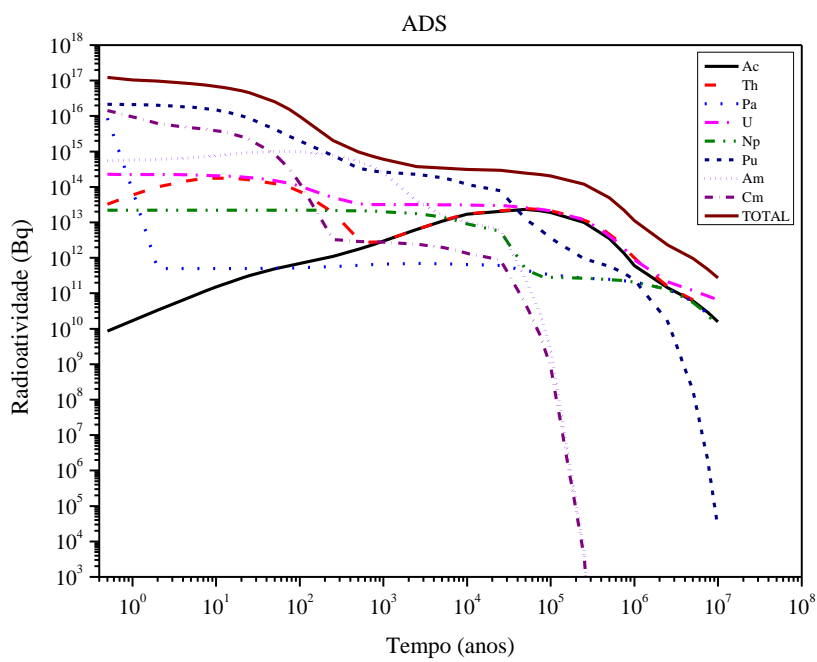


**Figura 4.15 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível do reator VHTR (Th-TU).**

Conforme mostrado na figura 4.16, os produtos de fissão têm um peso majoritário sobre a radioatividade até aproximadamente  $10^2$  anos no combustível irradiado no sistema ADS. Após, 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 figura 4.17 percebe-se que os isótopos do plutônio, cúrio e amerício, são mais decisivos para o cálculo da radioatividade até  $10^4$  anos. Merecem destaque, segundo a ordem, os isótopos  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$  e  $^{241}\text{Am}$ . Para intervalos mais longos, os isótopos do tório, urânio e actínio se tornam preponderantes. Devem ser citados os isótopos  $^{225}\text{Ac}$ ,  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{U}$  e  $^{237}\text{U}$ .

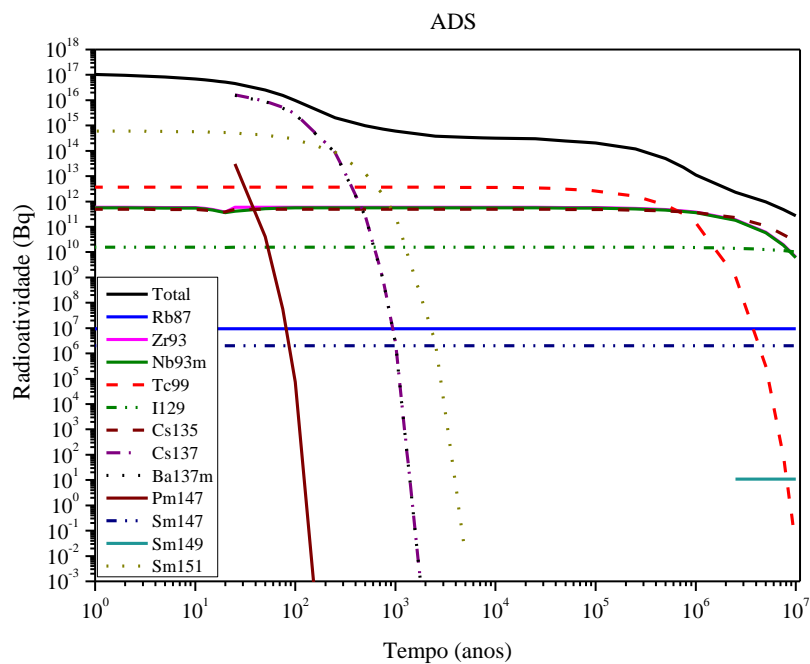


**Figura 4.16 – Radioatividade total do combustível do sistema ADS.**



**Figura 4.17 – Radioatividade por actinídeos do combustível do sistema ADS.**



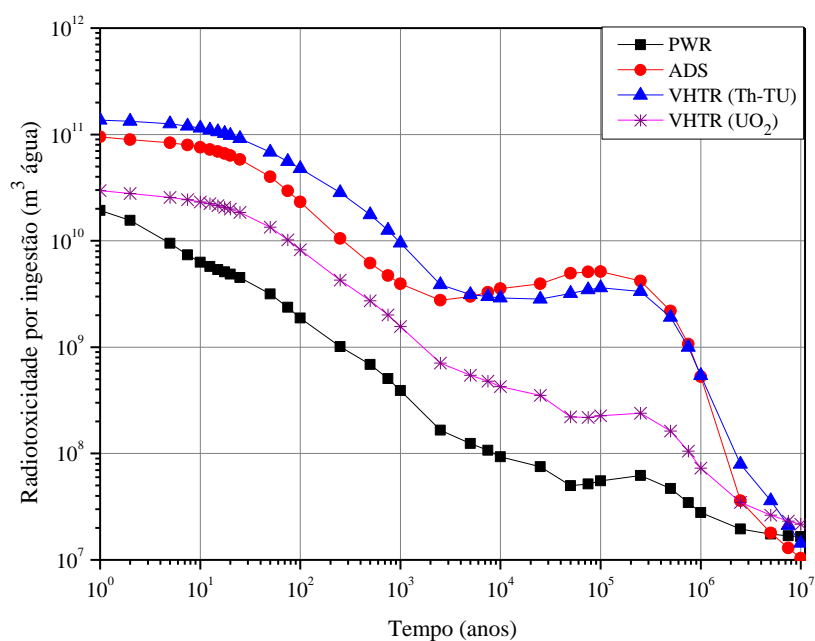


**Figura 4.18 – Radioatividade por produtos de fissão do combustível do sistema ADS.**

Da figura 4.18 se pode concluir que, até  $10^2$  anos, o isótopo  $^{151}\text{Sm}$ , com colaborações do  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{93}\text{Zr}$  e  $^{135}\text{Cs}$ , dominam as emissões de radiação. Entre  $10^2$  e  $10^3$  anos as contribuições de dois isótopos em particular se tornam pronunciadas, são os casos do  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{147}\text{Pm}$ . Após  $10^3$  anos, os produtos de fissão de longa-vida se tornam preponderantes, destacando-se o  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{135}\text{Cs}$  e  $^{129}\text{I}$ .

### 4.3 Radiotoxicidade por ingestão

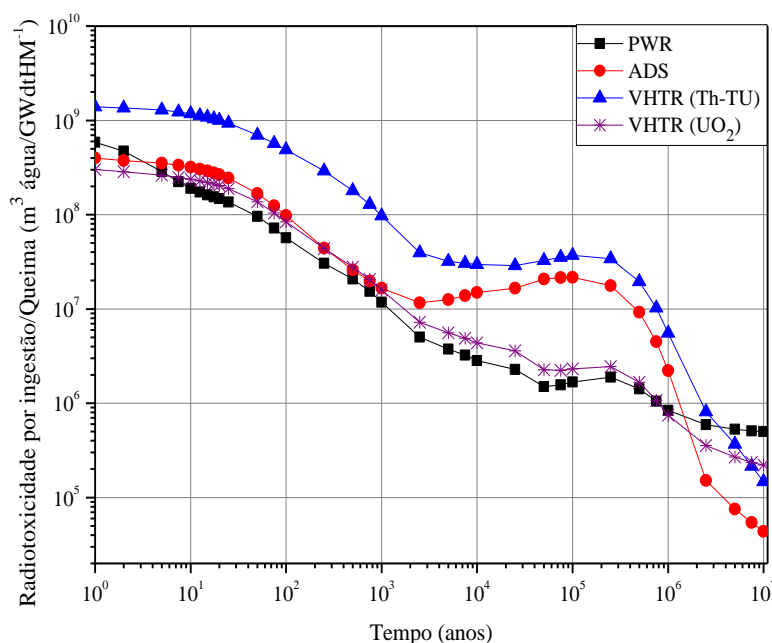
Na figura 4.19 é apresentada a radiotoxicidade por ingestão relativa aos combustíveis dos quatro sistemas até  $10^7$  anos. Percebe-se, por essa figura, que o combustível do reator PWR apresenta a menor radiotoxicidade por ingestão até aproximadamente  $5,0 \times 10^6$  anos. O combustível do reator VHTR ( $UO_2$ ) apresenta uma radiotoxicidade intermediária, porém, sua curva tem uma forma que também se assemelha muito à curva do reator PWR. Há de notar-se que, após  $2,0 \times 10^6$  anos, a radiotoxicidade por ingestão desse reator tem uma tendência ao crescimento. Os combustíveis oriundos dos reatores VHTR (Th-TU) e ADS, apresentam radiotoxicidade por ingestão de valores muito próximos. No entanto, o material retirado do reator VHTR (Th-TU), em geral, apresenta-se com um potencial danoso maior. Após  $4,0 \times 10^6$  anos, o combustível irradiado do sistema ADS mostra a menor radiotoxicidade por ingestão.



**Figura 4.19 – Radiotoxicidade total por ingestão para o combustível para cada sistema.**

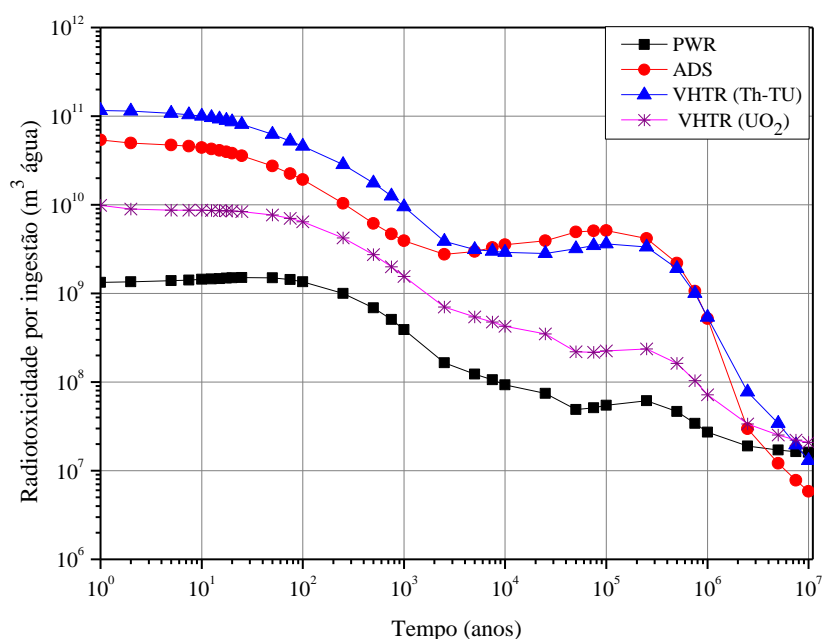
Na figura 4.20 é mostrada a radiotoxicidade total por ingestão para os combustíveis irradiados nos sistemas nucleares analisados, normalizada pela respectiva queima. Percebe-se que, após a normalização, o combustível do sistema ADS tem uma radiotoxicidade por ingestão com valores muito similares àqueles apresentados pelos combustíveis dos reatores PWR e VHTR ( $UO_2$ ). Uma vez que, a queima no sistema ADS é maior do que nos outros

reatores, a utilização desse equipamento na irradiação de combustíveis nucleares passa a ser vantajosa quando comparada aos demais sistemas. De acordo com essa figura, entre  $1,0 \times 10^3$  e  $1,5 \times 10^6$  anos, o combustível do sistema ADS apresenta um incremento na radiotoxicidade por ingestão, mas, após esse período, se torna o menos radiotóxico.

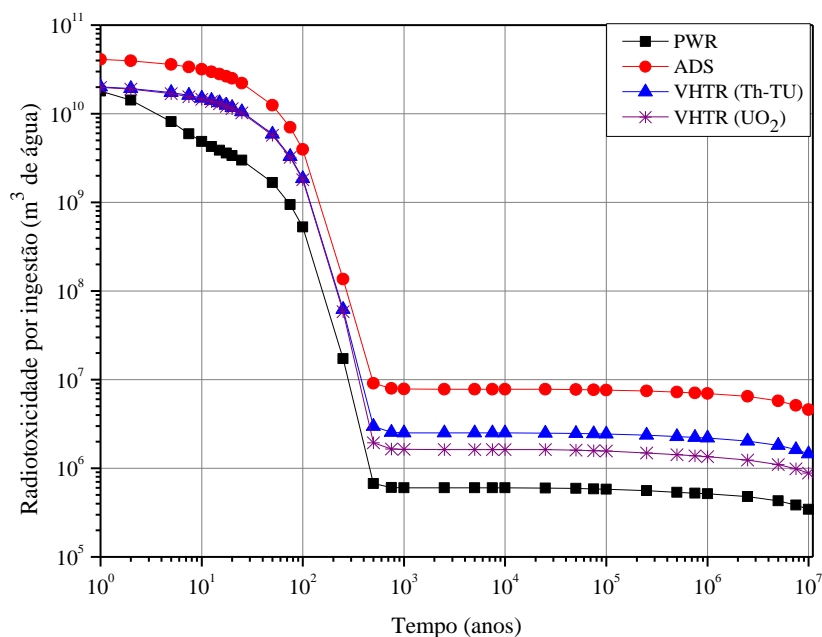


**Figura 4.20 – Radiotoxicidade total por ingestão para o combustível para cada sistema, normalizada pela respectiva queima.**

Observando as figuras 4.21 e 4.22 percebe-se que os actinídeos são hegemônicos sobre a radiotoxicidade por ingestão, principalmente após  $10^2$  anos. No entanto, para períodos anteriores as contribuições dos dois grupos, actinídeos e produtos de fissão, apresentam valores bem próximos. A exceção é o reator PWR; nesse caso, os produtos de fissão dominam a radiotoxicidade por ingestão na faixa inicial do tempo. Na figura 4.22 é indicado que os produtos de fissão do sistema ADS, proporcionalmente, contribuem mais para a radiotoxicidade por ingestão que os demais casos. Os reatores VHTR's apresentam contribuições similares por parte dos produtos de fissão, mas, após o tempo de  $10^3$  anos, os produtos de fissão do reator VHTR (Th-TU) mostram uma radiotoxicidade por ingestão maior que aquela relativa ao reator VHTR (UO<sub>2</sub>).



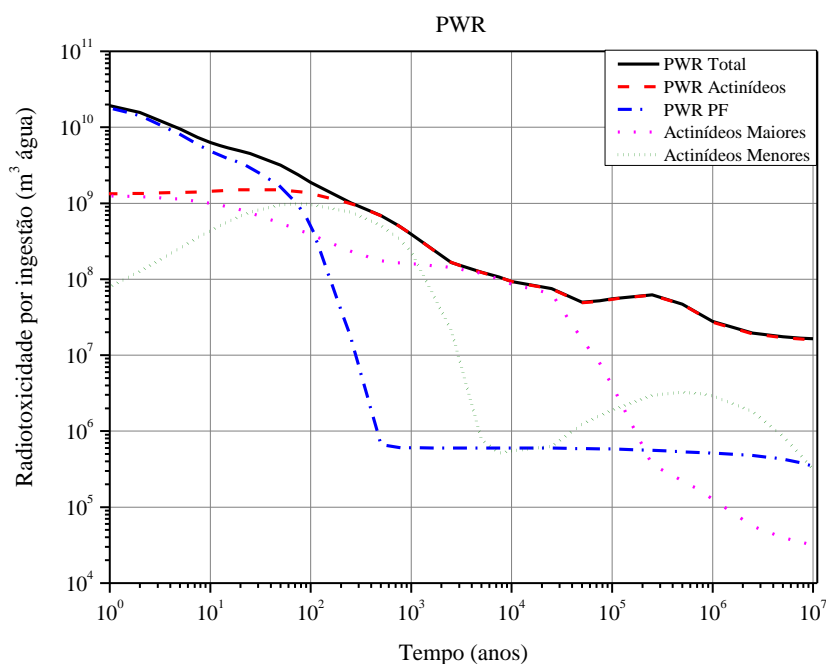
**Figura 4.21 – Radiotoxicidade por ingestão por actínidos do combustível para cada sistema.**



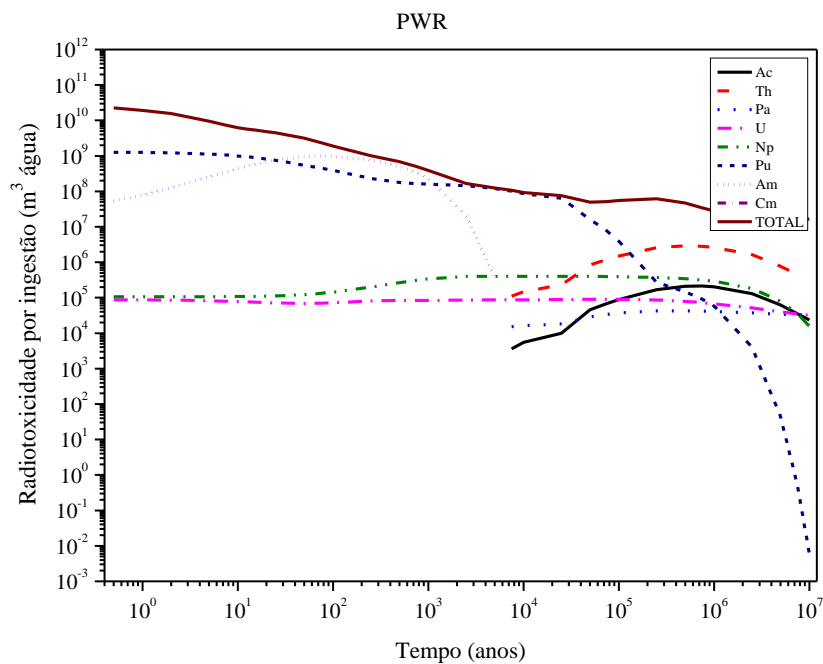
**Figura 4.22 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos fissão do combustível para cada sistema.**

Na figura 4.23 é mostrado que a radiotoxicidade por ingestão do combustível do reator PWR é dominada pelos produtos de fissão até aproximadamente  $10^2$  anos. Depois, os actínidos são sempre preponderantes sobre os valores desse parâmetro. Particularmente, os actínidos maiores detêm as maiores parcelas de contribuição para a radiotoxicidade por

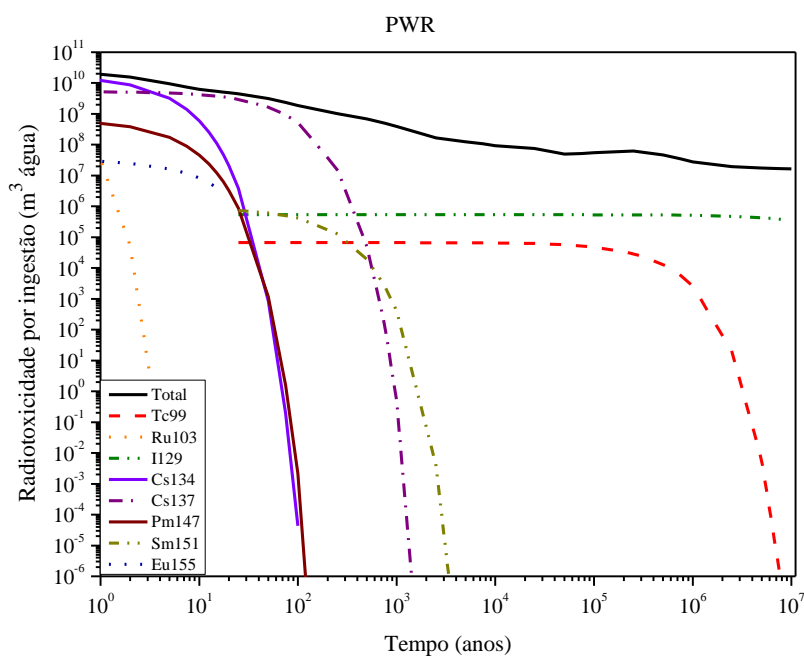
ingestão. A exceção ocorre somente nos períodos entre 60 e  $10^3$  anos e, também, logo após  $10^5$  anos. Na figura 4.24 é indicado que os isótopos do plutônio e amerício são os contribuintes majoritários para a radiotoxicidade por ingestão até  $10^3$  anos, destacam-se os isótopos  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Am}$ . Entre  $10^3$  até  $10^5$  anos, a contribuição do isótopo  $^{239}\text{Pu}$  se torna extremamente significativa. Após  $10^5$  anos, os actínídeos menores como o neptúnio, actínio e o tório se tornam mais representativos. Isótopos como  $^{225}\text{Ac}$ ,  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$  e  $^{237}\text{Np}$  são os mais relevantes.



**Figura 4.23 – Radiotoxicidade total por ingestão do combustível do reator PWR.**

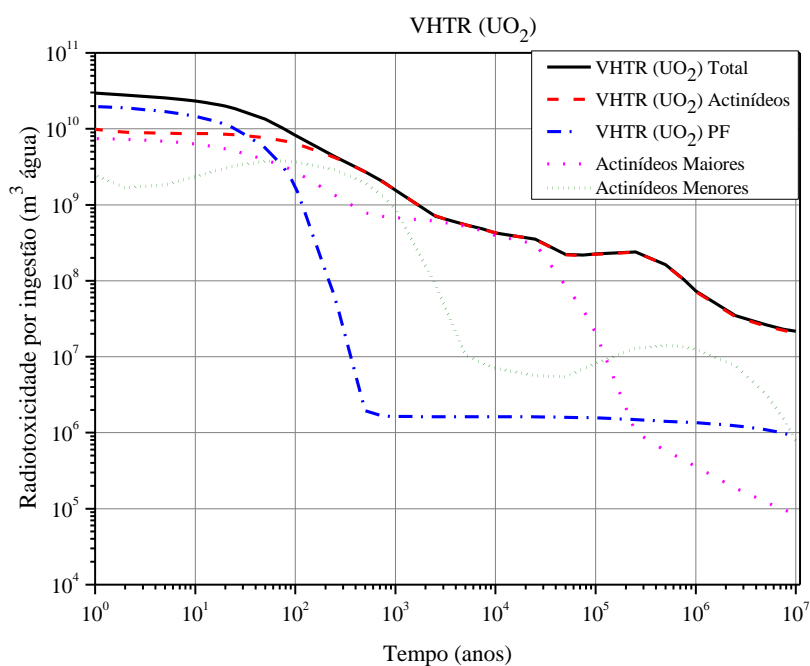


**Figura 4.24 – Radiotoxicidade por ingestão por actínídeos do combustível do reator PWR.**



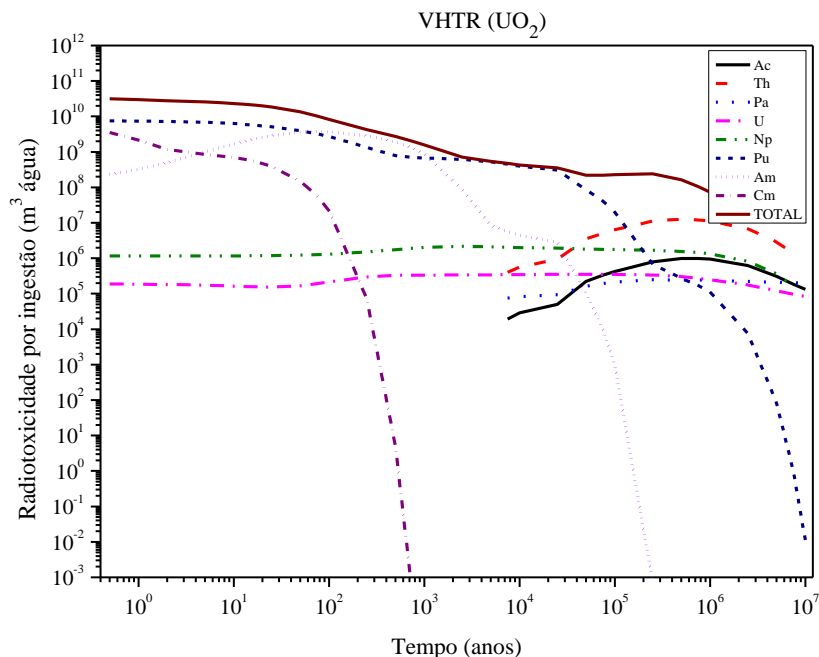
**Figura 4.25 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos de fissão do combustível do reator PWR.**

Da figura 4.25 percebe-se que os produtos de fissão de vida-curta dominam a radiotoxicidade por ingestão até  $10^2$  anos. Os isótopos  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  e  $^{155}\text{Eu}$  são aqueles que têm as maiores representatividades. Após  $10^3$  anos, os produtos de fissão de vida-longa são preponderantes, notadamente, as contribuições dos isótopos  $^{129}\text{I}$  e  $^{99}\text{Tc}$  sobre os valores da radiotoxicidade por ingestão.



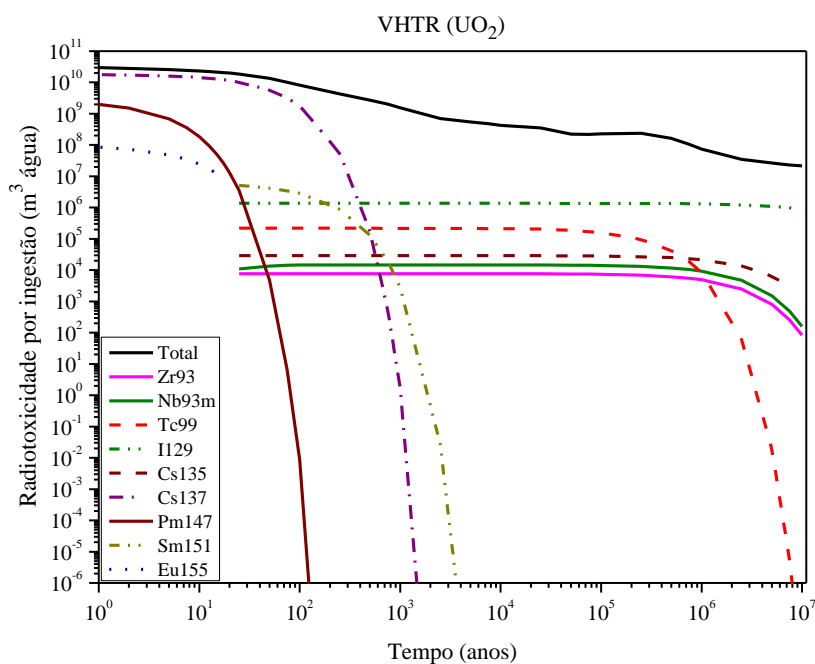
**Figura 4.26 – Radiotoxicidade total por ingestão do combustível do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ).**

Em conformidade com a figura 4.26, se vê que os produtos de fissão do combustível do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ) têm predomínio sobre a radiotoxicidade por ingestão até 50 anos após a retirada do reator. Para períodos mais longos, fica clara a hegemonia exercida pelos actínídeos sobre esse parâmetro. Através da figura 4.27, conclui-se que os actínídeos maiores, sobretudo pela contribuição dos isótopos de plutônio, dominam esse processo até aproximadamente  $2,0 \times 10^5$  anos; todavia, os isótopos de dois actínídeos menores, amerício e cúrio, apresentam contribuições para a radiotoxicidade por ingestão que não devem ser desconsideradas. Para esse intervalo de tempo destacam-se os isótopos  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ , com contribuições extremamente intensas sobre a radiotoxicidade por ingestão; outros isótopos como  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{240}\text{Pu}$ , também têm grande representatividade. Como mencionado anteriormente, a participação dos actínídeos menores  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$  e  $^{244}\text{Cm}$  não podem ser negligenciadas.



**Figura 4.27 – Radiotoxicidade por ingestão por actínídeos do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ).**

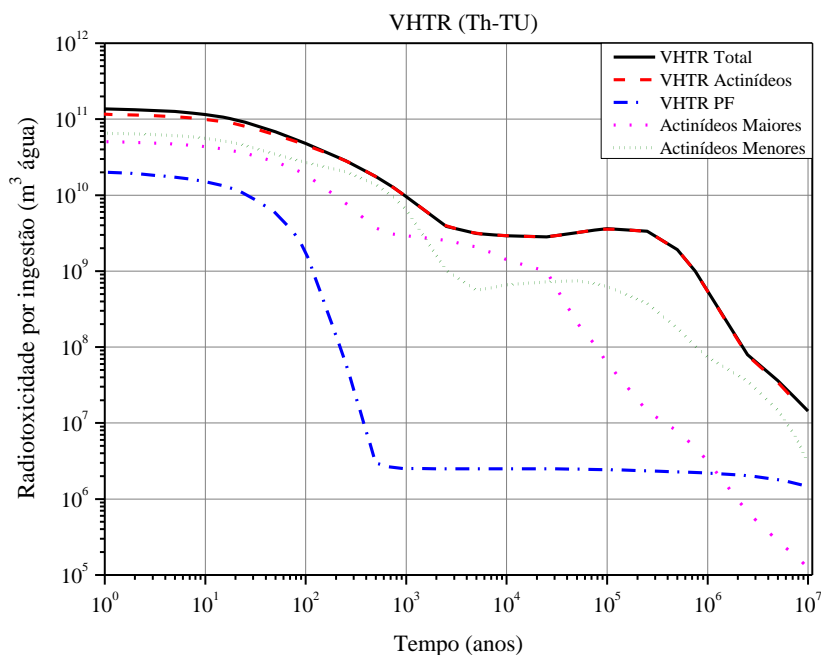
É indicado através da figura 4.28 que os produtos de fissão de vida médio-curta participam intensamente da radiotoxicidade por ingestão até  $10^2$  anos. As principais contribuições advêm dos isótopos  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  e  $^{155}\text{Eu}$ . No caso do  $^{137}\text{Cs}$ , essa contribuição perdura até  $10^3$  anos. Após esse intervalo de tempo, se estabelece o predomínio dos produtos de fissão de vida longa, destacando-se os isótopos  $^{129}\text{I}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  e  $^{93}\text{Zr}$ .



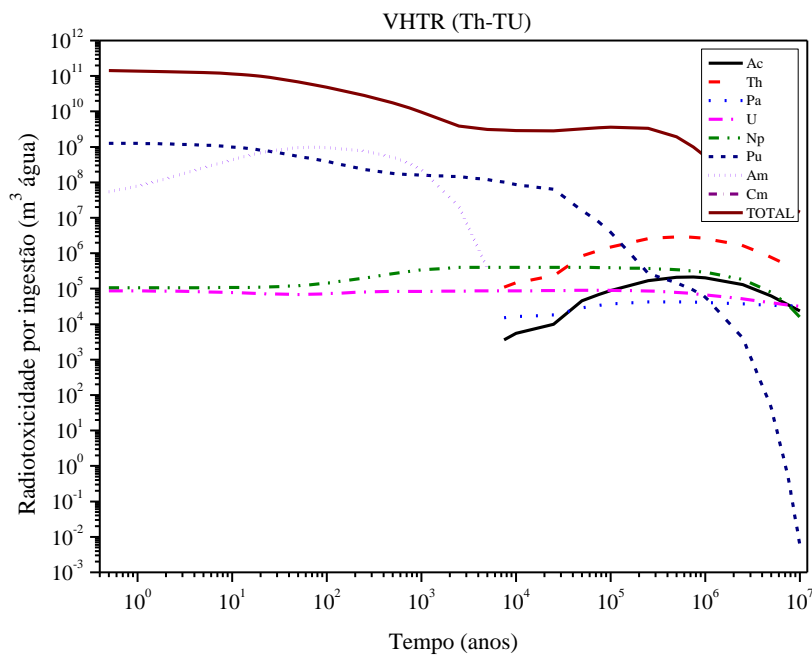
**Figura 4.28 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos de fissão do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ).**



De acordo com a figura 4.29 os actínídeos sempre prevalecem sobre os produtos de fissão quando se considera a radiotoxicidade por ingestão no combustível irradiado no reator VHTR (Th-TU). Os actínídeos menores têm uma contribuição total mais significativa do que os actínídeos maiores, desde o instante de extração do material do reator até  $10^7$  anos. A exceção a essa observação ocorre apenas no período entre  $10^3$  e  $6,0 \times 10^4$  anos. Da figura 4.30, conclui-se que os isótopos dos elementos cúrio e amerício são os mais relevantes até  $10^5$  anos. Destacam-se os isótopos  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{241}\text{Am}$  e  $^{243}\text{Am}$ . Embora não sejam os mais significativos, as contribuições dos isótopos de plutônio,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$  não devem ser negligenciadas. Após o instante  $10^5$  anos, são dominantes as contribuições dos isótopos dos elementos tório, neptúnio e actínio. Os isótopos com maiores contribuições são  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{237}\text{Np}$  e  $^{225}\text{Ac}$ .

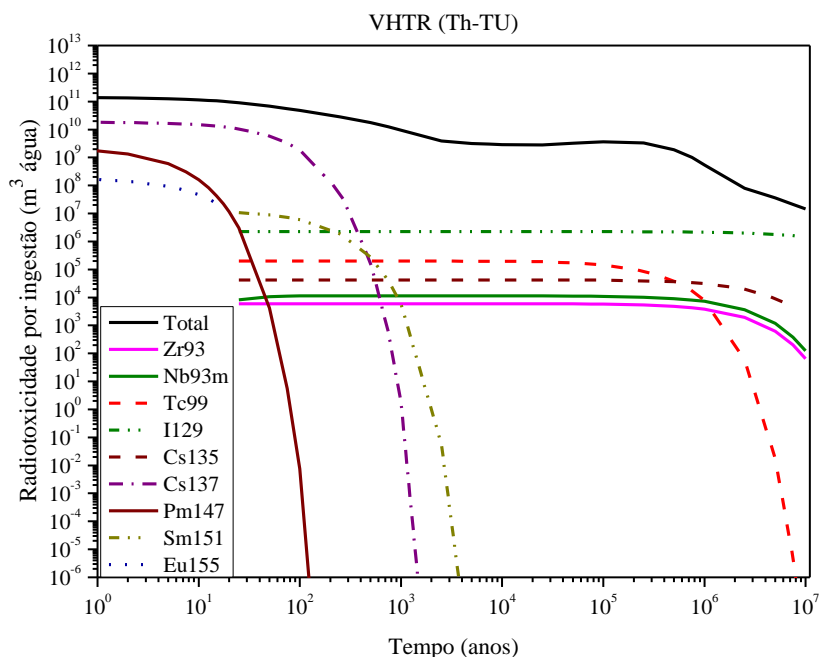


**Figura 4.29 – Radiotoxicidade total por ingestão do combustível do reator VHTR (Th-TU).**



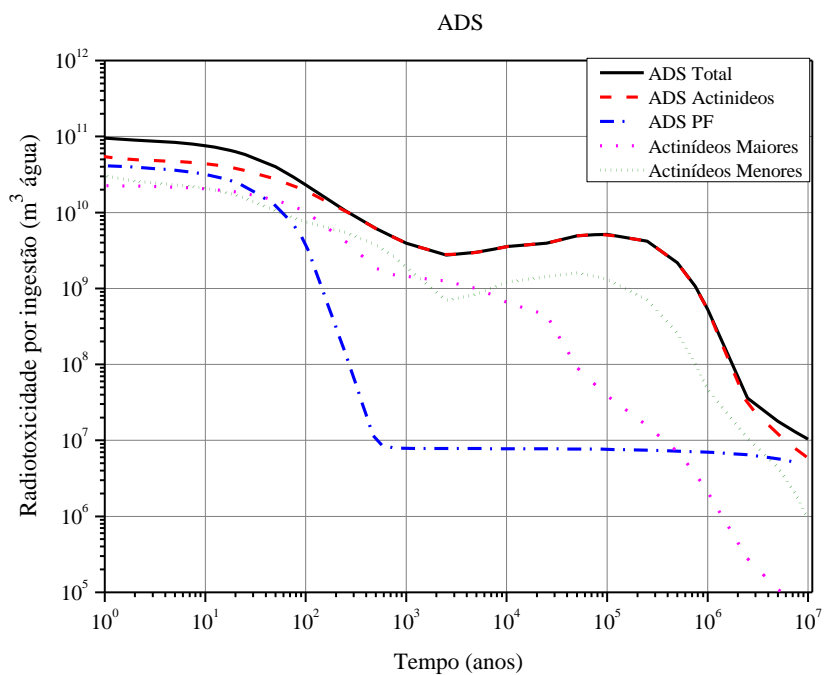
**Figura 4.30 – Radiotoxicidade por ingestão por actínídeos do reator VHTR (Th-TU).**

Através da figura 4.31 percebe-se que os produtos de fissão de vida médio-curta colaboram intensamente com a radiotoxicidade por ingestão até  $10^2$  anos no combustível irradiado no reator VHTR (Th-TU). As contribuições mais relevantes são oriundas dos isótopos  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  e  $^{155}\text{Eu}$ . No caso do  $^{137}\text{Cs}$ , essa contribuição se estende até  $10^3$  anos. Depois desse período de tempo, se estabelece a hegemonia dos produtos de fissão de vida longa, destacando-se os isótopos  $^{129}\text{I}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  e  $^{93}\text{Zr}$ .

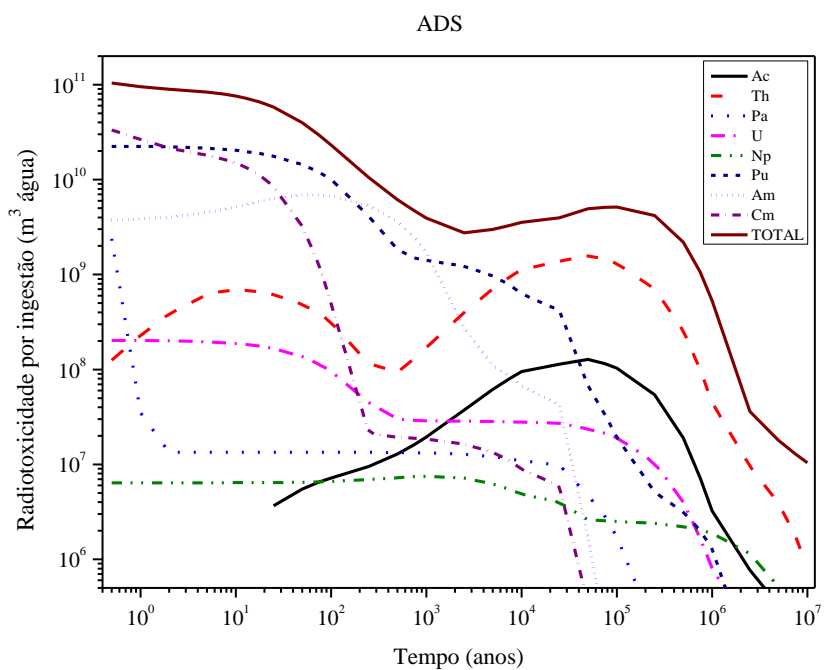


**Figura 4.31 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos de fissão do reator VHTR (Th-TU).**

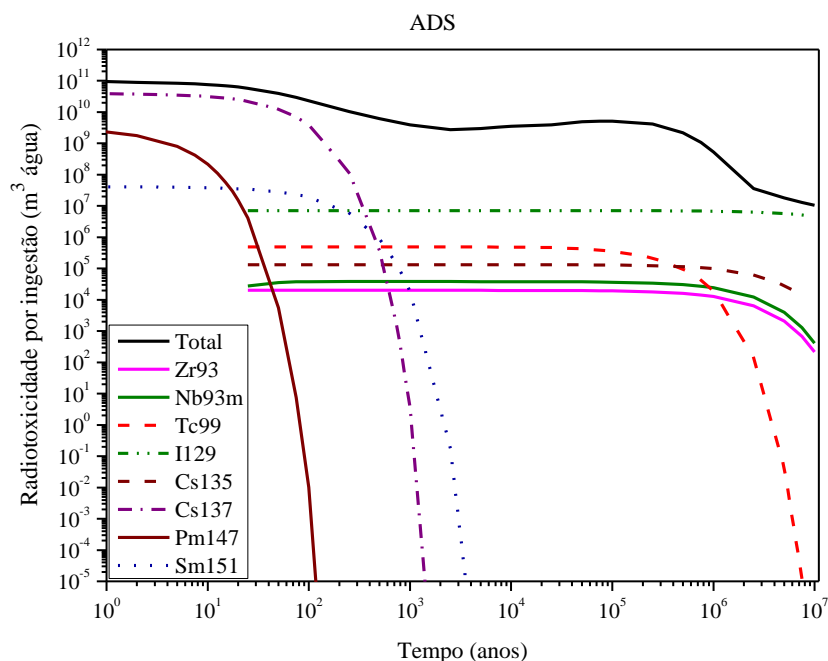
Na figura 4.32 é mostrado que a radiotoxicidade por ingestão do combustível retirado do sistema ADS é dominada pelos actínídeos em detrimento dos produtos de fissão. Pelos cálculos desta pesquisa, conclui-se que desde a retirada do material do reator, até  $10^2$  anos, as contribuições de actínídeos maiores e menores apresentam valores aproximados. No entanto, após  $10^4$  anos, há uma prevalência dos actínídeos menores. Em concordância com a figura 4.33, nota-se que os valores relativos aos isótopos de plutônio e cúrio são os mais participativos até  $10^2$  anos. Sobressaem-se os valores dos isótopos  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  e  $^{244}\text{Cm}$ . Entre os instantes  $2,0 \times 10^2$  e  $2,0 \times 10^3$  anos, a participação dos isótopos do elemento amerício têm uma contribuição destacada sobre os valores desse parâmetro; principalmente os isótopos  $^{241}\text{Am}$  e  $^{243}\text{Am}$ . Após  $10^4$  anos, os isótopos dos elementos tório e actínio se tornam os mais representativos. Os isótopos  $^{225}\text{Ac}$ ,  $^{229}\text{Th}$  e  $^{230}\text{Th}$  são os mais importantes.



**Figura 4.32 – Radiotoxicidade total por ingestão do combustível do sistema ADS.**



**Figura 4.33 – Radiotoxicidade por ingestão por actinídeos do sistema ADS.**

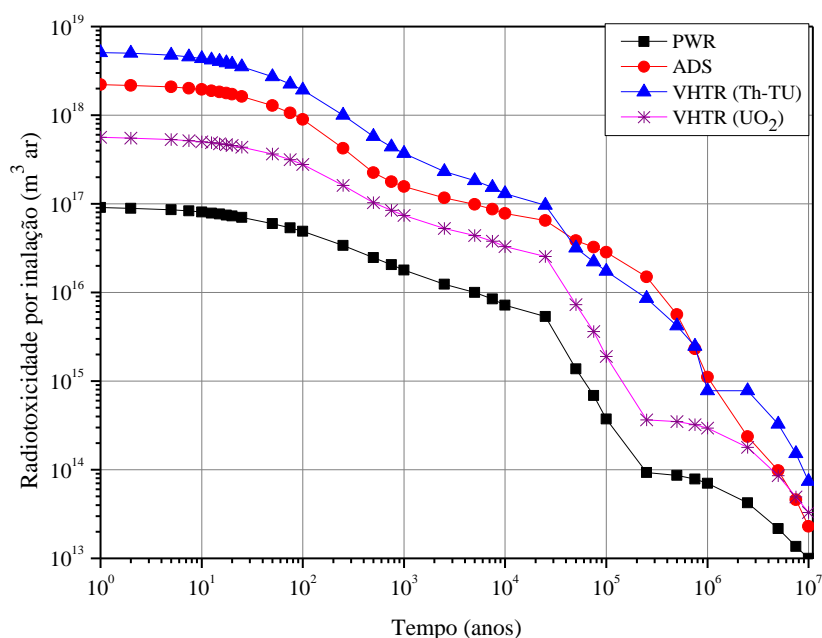


**Figura 4.34 – Radiotoxicidade por ingestão por produtos de fissão do sistema ADS.**

É indicado através da figura 4.34 que os produtos de fissão de vida médio-curta exercem um predomínio intenso sobre a radiotoxicidade por ingestão até 10<sup>2</sup> anos no combustível irradiado no sistema ADS. As principais contribuições são originárias dos isótopos <sup>137</sup>Cs, <sup>147</sup>Pm e <sup>151</sup>Sm. Relativamente aos isótopos <sup>137</sup>Cs e <sup>151</sup>Sm, suas contribuições se estendem até, aproximadamente, 1,5 x 10<sup>3</sup> e 3,5 x 10<sup>3</sup> anos, respectivamente. Após esse intervalo de tempo, se estabelece a hegemonia dos produtos de fissão de vida-longa, destacando-se os isótopos <sup>129</sup>I, <sup>99</sup>Tc, <sup>135</sup>Cs, <sup>93m</sup>Nb e <sup>93</sup>Zr.

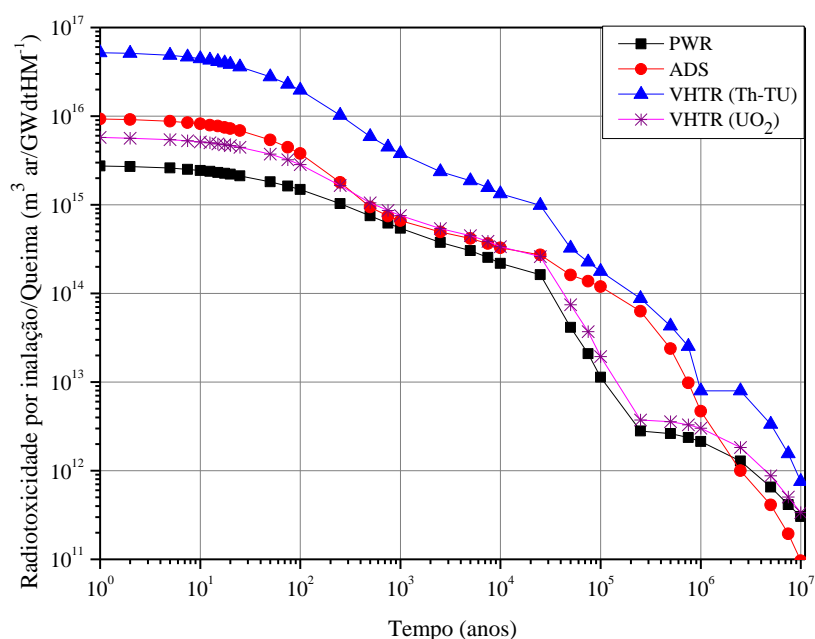
#### 4.4 Radiotoxicidade por inalação

Na figura 4.35 é mostrado que a radiotoxicidade por inalação do combustível irradiado no reator PWR é menor que a radiotoxicidade dos combustíveis dos outros reatores. Mais uma vez, nota-se que o perfil do combustível irradiado no reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ) apresenta um perfil que se assemelha bastante ao perfil mostrado pelo reator PWR, porém, os valores estão deslocados por várias unidades. O combustível extraído do sistema ADS também tem uma radiotoxicidade por inalação menor do que o combustível oriundo do reator VHTR (Th-TU). Ainda, de acordo com a figura 4.35 a exceção a essa afirmação só é verificada no período de tempo entre  $3,0 \times 10^4$  até  $9,0 \times 10^5$  anos.



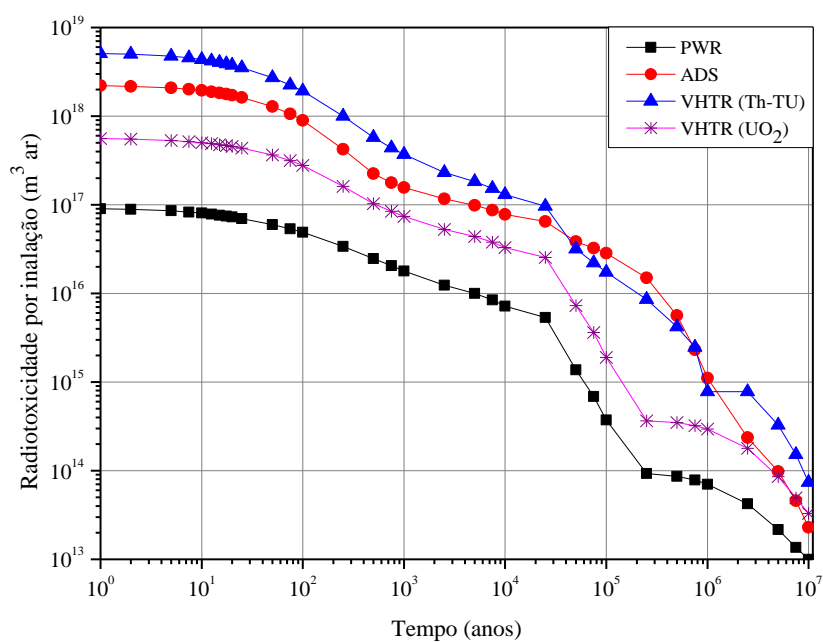
**Figura 4.35 – Radiotoxicidade total por inalação para o combustível para cada sistema.**

Na figura 4.36 é apresentada a radiotoxicidade total por inalação para os combustíveis irradiados nos sistemas nucleares estudados, normalizada pela respectiva queima. Nesse caso, o efeito da normalização pela queima no combustível do sistema ADS foi menos pronunciado do que nos demais parâmetros investigados. Entretanto, a maior proximidade com a radiotoxicidade por inalação dos combustíveis irradiados nos reatores PWR e VHTR ( $\text{UO}_2$ ) é bastante perceptível. Por essa figura, entre  $2,0 \times 10^4$  e  $1,0 \times 10^6$  anos, o combustível do sistema ADS apresenta um aumento na radiotoxicidade por inalação, mas, depois desse período, se torna o menos radiotóxico.

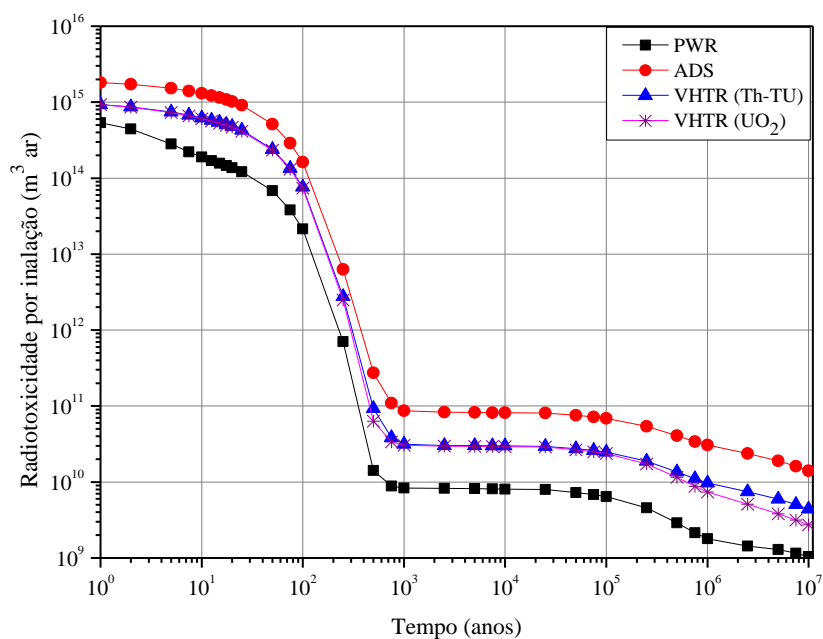


**Figura 4.36 – Radiotoxicidade total por inalação para o combustível para cada sistema, normalizada pela respectiva queima.**

Das figuras 4.37 e 4.38 conclui-se que as contribuições dos actínídeos são superiores às contribuições dos produtos de fissão para a radiotoxicidade por inalação. Essa assertiva é confirmada, principalmente, pela semelhança entre as curvas contidas nas figuras 4.35 e 4.37, respectivamente. Além do asseverado anteriormente, na figura 4.38, percebe-se que os produtos de fissão do combustível extraído do reator PWR apresentam a menor contribuição para o cômputo total do parâmetro. Ademais, há de observar-se a grande semelhança que as contribuições dos produtos de fissão dos reatores VHTR's apresentam. Por último, nota-se que os produtos de fissão do combustível oriundo do sistema ADS apresentam a radiotoxicidade por inalação de maior intensidade.



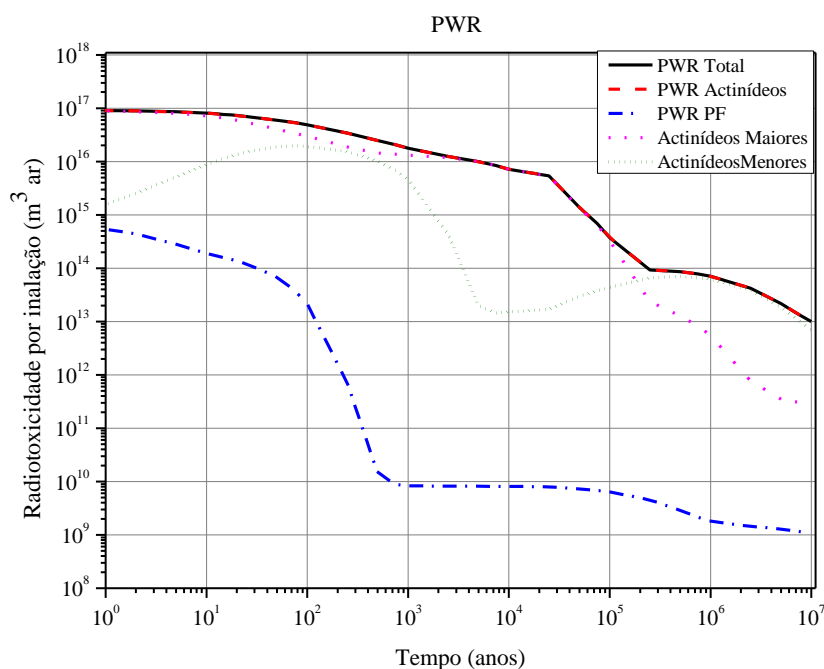
**Figura 4.37 – Radiotoxicidade por inalação por actínidos do combustível para cada sistema.**



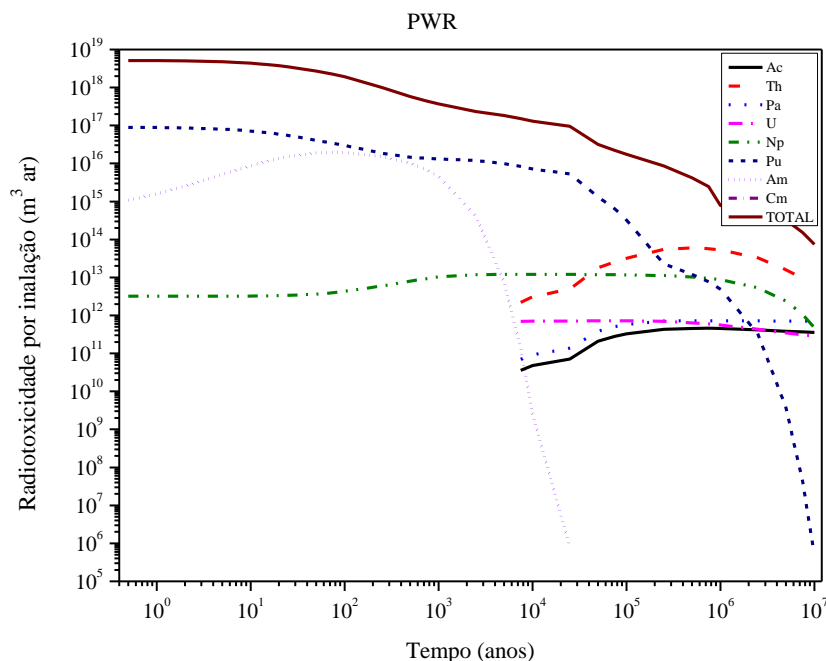
**Figura 4.38 – Radiotoxicidade por inalação por produtos fissão do combustível para cada sistema.**



De acordo com a figura 4.39 os actínídeos dominam a radiotoxicidade por inalação no combustível retirado do reator PWR. Os actínídeos maiores prevalecem até  $2,0 \times 10^3$  anos. A partir desse instante, os actínídeos menores se tornam mais significativos. Na figura 4.40 é indicado que os isótopos do elemento plutônio têm uma contribuição majoritária nos valores da radiotoxicidade por inalação, destacam-se os isótopos  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ . Porém, até aproximadamente  $10^3$  anos, o isótopo do elemento amerício  $^{241}\text{Am}$ , apresenta uma contribuição para esse parâmetro que não deve ser desconsiderada. Após  $2,0 \times 10^5$  anos, a participação de actínídeos menores, como o neptúnio e também o tório, se tornam mais relevantes. Nesse sentido, os isótopos  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$  e  $^{237}\text{Np}$  são os mais importantes. Devem ser mencionadas as contribuições dos isótopos de urânio,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  e  $^{238}\text{U}$ , além do isótopo  $^{242}\text{Pu}$ , no referido intervalo de tempo.

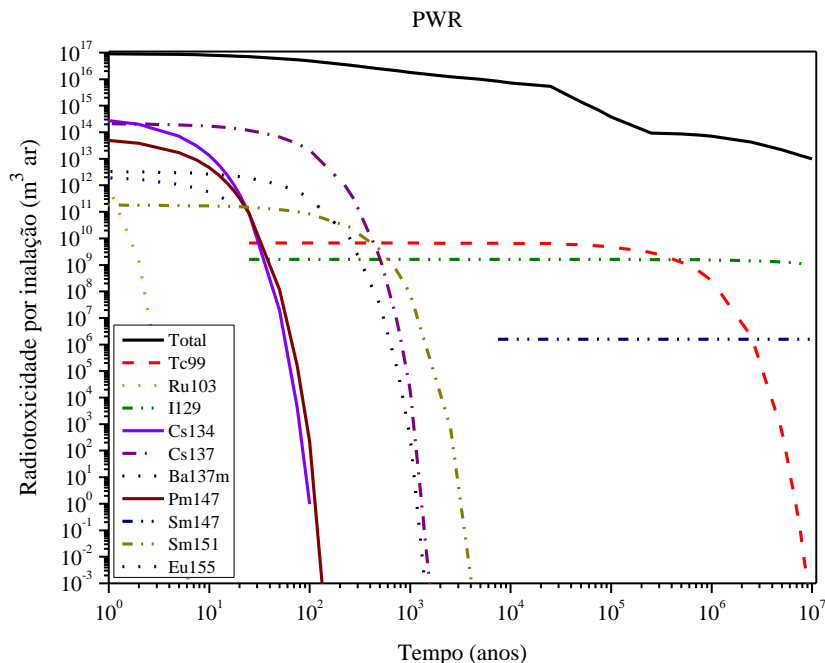


**Figura 4.39 – Radiotoxicidade total por inalação do combustível do reator PWR.**



**Figura 4.40 – Radiotoxicidade por inalação por actínidos do combustível do reator PWR.**

Através da figura 4.41 depreende-se que os produtos de fissão de vida-curta e média contribuem intensamente, com vários isótopos, para o valor da radiotoxicidade por inalação no combustível extraído do reator PWR. Até o instante correspondente a  $10^2$  anos, as contribuições mais relevantes são oriundas dos isótopos  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{155}\text{Eu}$  e  $^{151}\text{Sm}$ . Observando essa figura, percebe-se que no caso dos isótopos  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  e  $^{151}\text{Sm}$  essa contribuição se estende até o período compreendido entre  $10^3$  e  $10^4$  anos. Após esse intervalo de tempo, se estabelece a prevalência dos produtos de fissão de vida-longa, destacando-se os isótopos  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$  e uma modesta colaboração do  $^{147}\text{Sm}$ .



**Figura 4.41 – Radiotoxicidade por inalação por produtos de fissão do combustível do reator PWR.**

Em conformidade com a figura 4.42, percebe-se que os actínídeos sempre prevalecem sobre os produtos de fissão quando se analisa a radiotoxicidade por inalação no combustível irradiado no reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ). Em geral, os actínídeos maiores têm uma contribuição total mais significativa do que os actínídeos menores, desde o instante de extração do material do reator até  $2,0 \times 10^5$  anos. Após esse tempo, há o predomínio dos actínídeos menores. Da figura 4.43 conclui-se que os isótopos do elemento plutônio têm a maior participação nos valores da radiotoxicidade por inalação. São preponderantes as contribuições dos isótopos  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  e  $^{240}\text{Pu}$ . Isótopos dos elementos cúrio, amerício e neptúnio apresentam considerável contribuição para esse parâmetro até  $10^3$  anos. Destacam-se  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{237}\text{Np}$  e  $^{244}\text{Cm}$ . Particularmente, os isótopos  $^{243}\text{Am}$  e  $^{237}\text{Np}$ , têm suas contribuições estendidas até aproximadamente  $10^5$  anos. Após esse tempo, são dominantes as contribuições dos isótopos dos elementos tório, neptúnio e protactínio. Os isótopos com maiores contribuições são  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{237}\text{Np}$  e  $^{231}\text{Pa}$ . Há ainda, a participação de alguns isótopos de urânio em uma proporção um pouco menor, citam-se  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  e  $^{238}\text{U}$ .

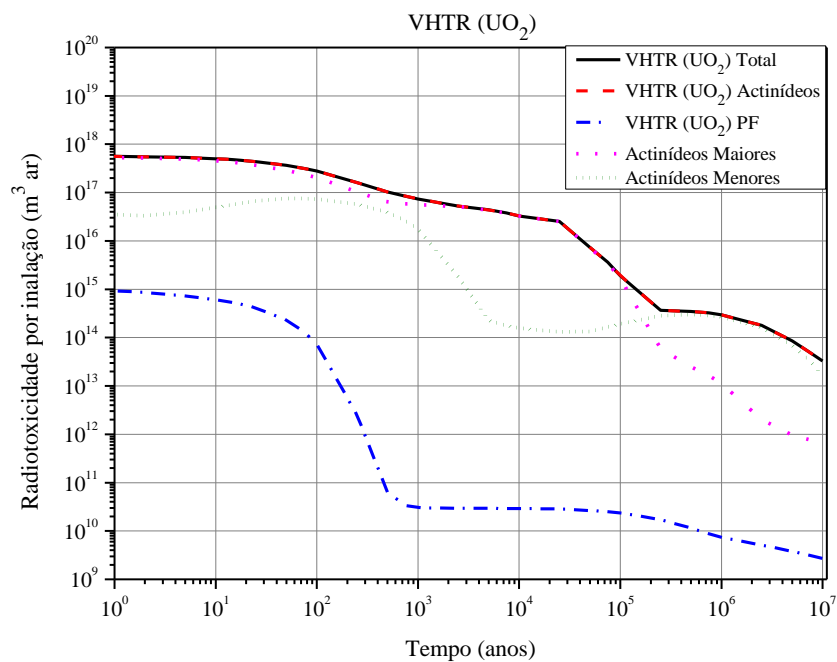


Figura 4.42 – Radiotoxicidade total por inalação do combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>).

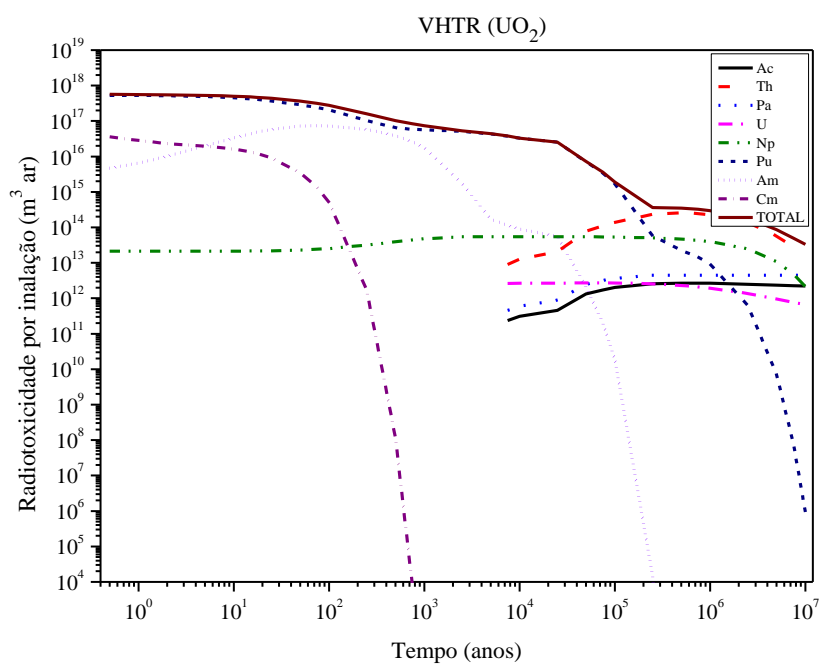
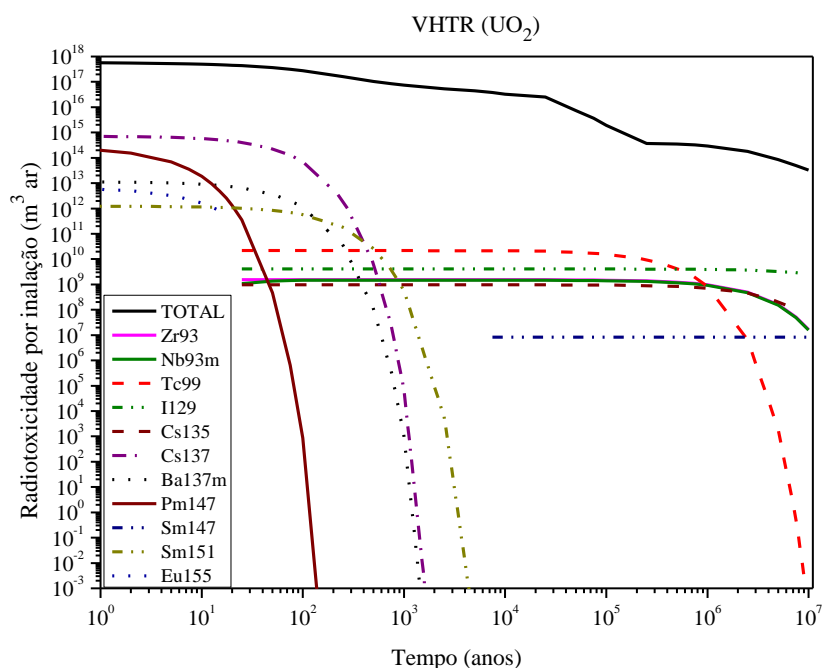
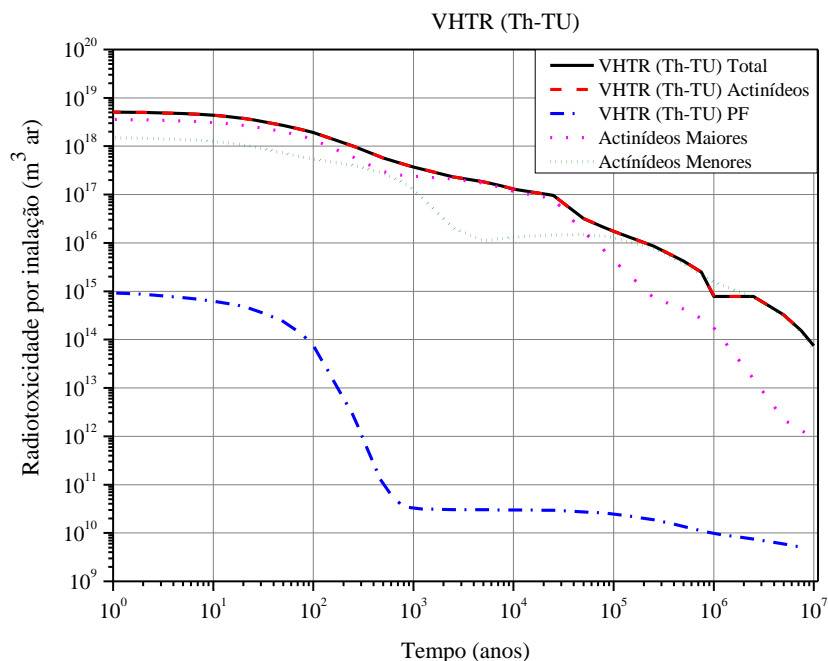


Figura 4.43 – Radiotoxicidade por inalação por actinídeos do reator VHTR (UO<sub>2</sub>).



**Figura 4.44 – Radiotoxicidade por inalação por produtos de fissão do reator VHTR (UO<sub>2</sub>).**

Através da figura 4.44 depreende-se que os produtos de fissão de vida médio-curta têm a prevalência sobre a radiotoxicidade por inalação até o período compreendido entre  $10^3$  e  $10^4$  anos no combustível irradiado no reator VHTR (UO<sub>2</sub>). Esse domínio é exercido por isótopos como  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ,  $^{151}\text{Sm}$  e  $^{155}\text{Eu}$ . Após esse período, se estabelece o predomínio dos produtos de fissão de vida-longa, destacando-se os isótopos  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$  e  $^{135}\text{Cs}$ .



**Figura 4.45 – Radiotoxicidade total por inalação do combustível do reator VHTR (Th-TU).**

Na figura 4.45 é mostrado que os actínídeos também dominam a radiotoxicidade por inalação no combustível irradiado no reator VHTR (Th-TU). Em geral, há uma maior contribuição dos actínídeos maiores, mas, após  $10^5$  anos, os actínídeos menores têm uma participação mais destacada. De acordo com a figura 4.46, conclui-se que os isótopos do elemento plutônio dominam a radiotoxicidade por inalação até  $2,0 \times 10^5$  anos. Os isótopos mais relevantes são  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ . Após esse período, os isótopos dos elementos tório e neptúnio são os mais representativos. Destacam-se os isótopos  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$  e  $^{237}\text{Np}$ . Há também uma contribuição dos isótopos  $^{233}\text{U}$  e  $^{234}\text{U}$  nos valores desse parâmetro após  $2,0 \times 10^5$  anos. Em concordância com a figura 4.47, depreende-se que os produtos de fissão de vida média-curta mantêm a hegemonia sobre a radiotoxicidade por inalação, desde a extração do combustível irradiado no reator VHTR (Th-TU), até o período compreendido entre  $10^3$  e  $10^4$  anos. Essa prevalência ocorre em função das contribuições apresentadas pelos isótopos  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ,  $^{155}\text{Eu}$  e  $^{151}\text{Sm}$ . Depois desse intervalo de tempo, ocorre o predomínio dos produtos de fissão de vida-longa, destacando-se os isótopos  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{93}\text{Zr}$  e  $^{93\text{m}}\text{Nb}$ .

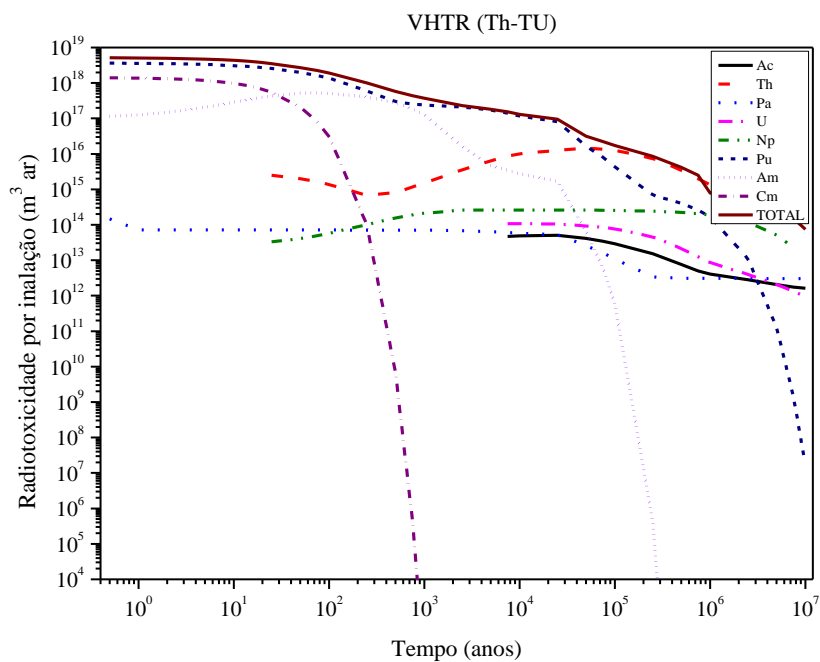


Figura 4.46 - Radiotoxicidade por inalação por actinídeos do reator VHTR (Th-TU).

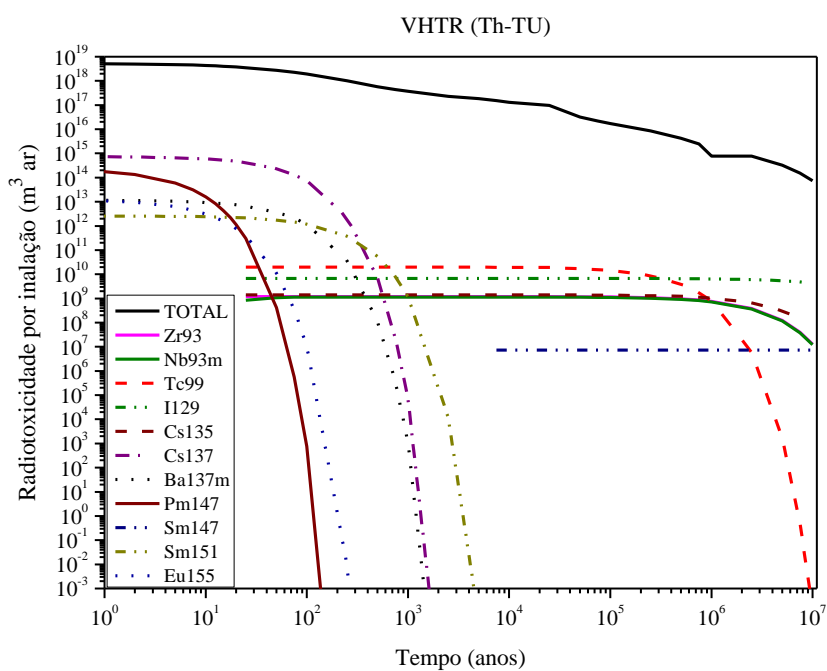
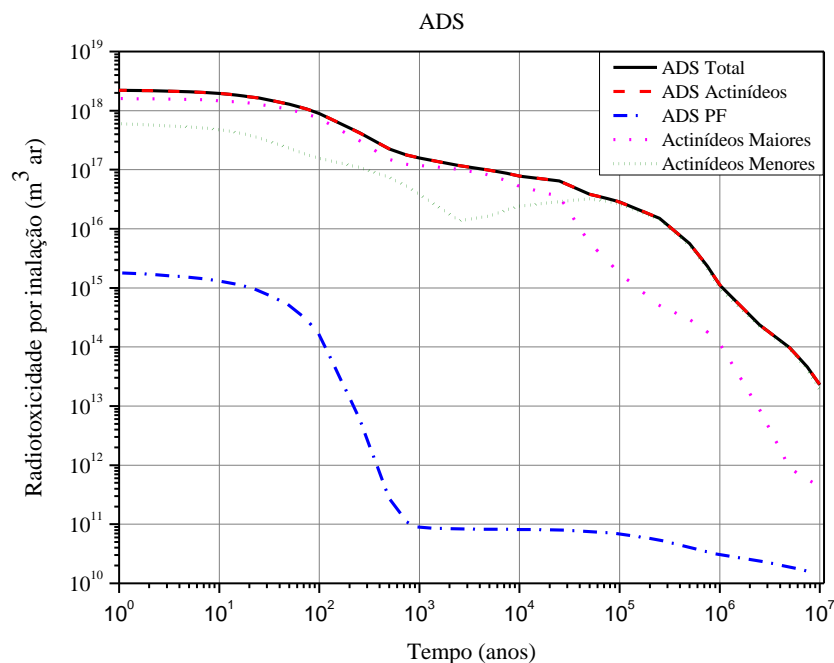


Figura 4.47 - Radiotoxicidade por inalação por produtos de fissão do reator VHTR (Th-TU).

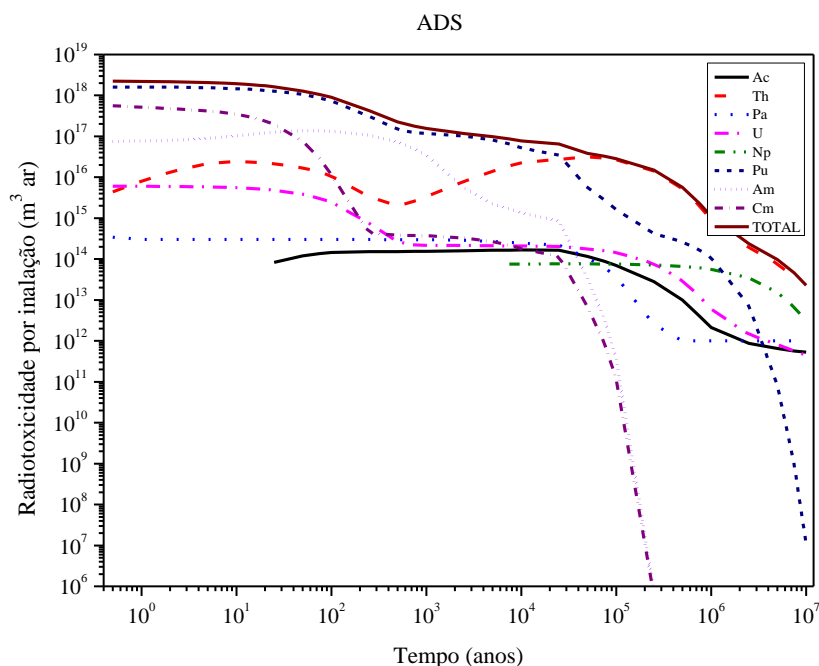


**Figura 4.48 – Radiotoxicidade total por inalação do combustível do sistema ADS.**

Observando a figura 4.48 percebe-se a forte influência dos actinídeos sobre a radiotoxicidade por inalação no combustível irradiado no sistema ADS. Através dos cálculos dessa pesquisa, conclui-se que os actinídeos maiores têm uma participação mais significativa nos valores da radiotoxicidade por inalação desse combustível do que os actinídeos menores. Por esses cálculos, observa-se que a prevalência dos actinídeos maiores ocorre até o instante  $10^5$  anos. Após esse tempo, prevalecem os actinídeos menores.

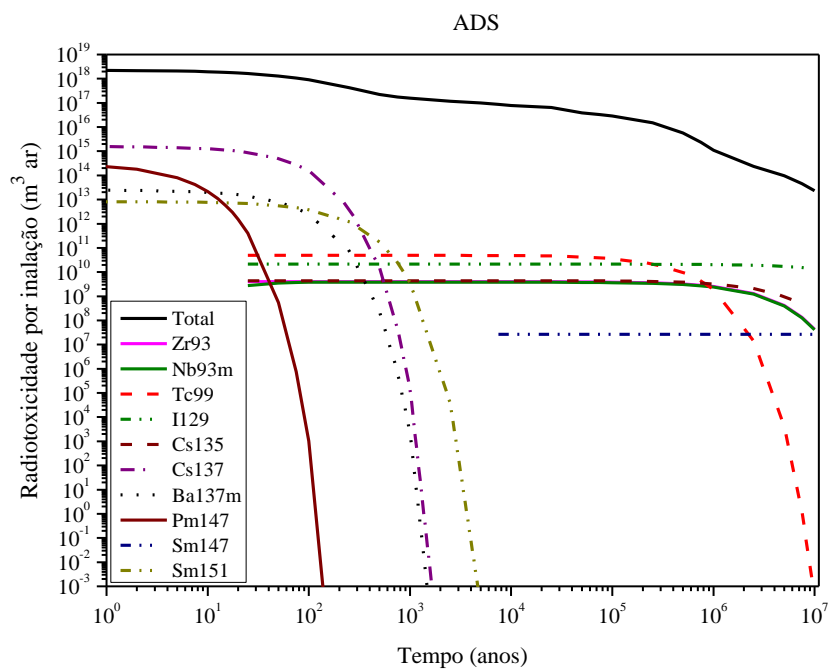
Na figura 4.49 é indicada a contribuição de vários elementos nos valores da radiotoxicidade por inalação do combustível irradiado no sistema ADS. Nos anos iniciais, os isótopos de plutônio predominam. São prevaletes os isótopos  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ . No entanto, as contribuições de alguns actinídeos menores, cúrio e amerício, devem ser consideradas. Destacam-se os isótopos  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{241}\text{Am}$  e  $^{243}\text{Am}$ . Após  $10^5$  anos, o elemento tório participa de forma preponderante sobre os valores da radiotoxicidade por inalação. Sobressaem-se os isótopos  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$  e  $^{232}\text{Th}$ . Contudo, há contribuições dos elementos urânio e neptúnio que também devem ser contabilizadas. Merecem citação  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$  e  $^{237}\text{Np}$ .





**Figura 4.49 – Radiotoxicidade por inalação por actinídeos do sistema ADS.**

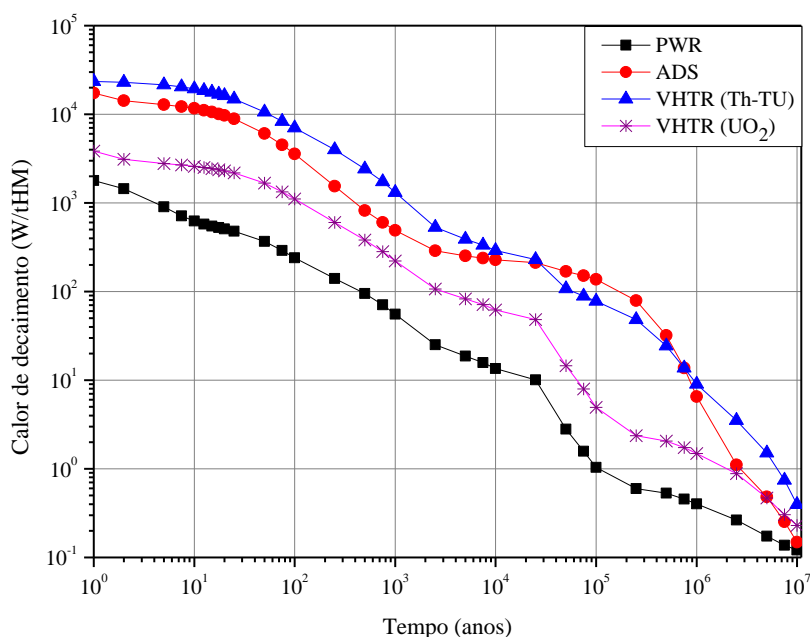
A figura 4.50 também corrobora com uma observação já feita anteriormente nesta pesquisa, que é o fato de que os produtos de fissão de vida médio-curta mantêm a hegemonia sobre a radiotoxicidade por inalação nos combustíveis irradiados. Isso também ocorre no caso do sistema ADS. Como se percebe, a partir da retirada do material irradiado do reator até o intervalo de tempo entre  $10^3$  e  $10^4$  anos, há o predomínio desses produtos de fissão de vida médio-curta. Essa prevalência é decorrência da ação de isótopos como  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  e  $^{151}\text{Sm}$ . Para intervalos posteriores, ocorre o domínio das contribuições dos produtos de fissão de vida-longa, destacam-se os isótopos  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{93}\text{Zr}$  e  $^{93\text{m}}\text{Nb}$ .



**Figura 4.50 – Radiotoxicidade por inalação por produtos de fissão do sistema ADS.**

#### 4.5 Calor de decaimento

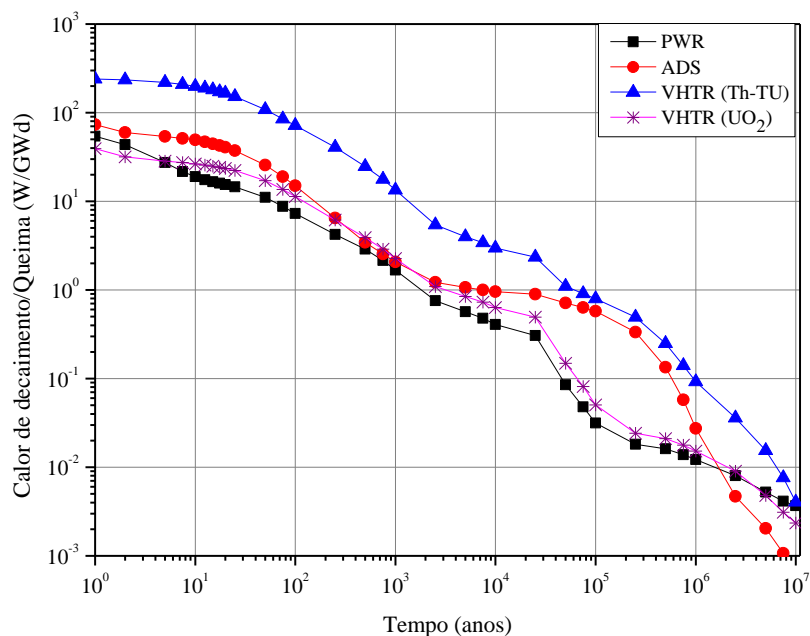
Na figura 4.51 é mostrado que o calor de decaimento para o combustível oriundo do reator PWR é menor quando comparado ao calor liberado pelos combustíveis irradiados nos outros sistemas. O calor liberado do combustível do reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ), apresenta um valor intermediário entre os casos estudados nesta pesquisa. A relação de valores entre os calores de decaimento dos sistemas ADS e VHTR (Th-TU), repete o padrão observado para os outros parâmetros previamente estudados. Os valores do calor de decaimento para o combustível do sistema ADS são ligeiramente menores que os valores para o combustível proveniente do reator VHTR (Th-TU). A exceção a essa observação se localiza no intervalo de tempo entre  $3,0 \times 10^4$  e  $10^6$  anos.



**Figura 4.51 – Calor de decaimento total do combustível para cada sistema.**

Na figura 4.52 o calor de decaimento total do combustível de cada sistema nuclear investigado é normalizado pela respectiva queima. De acordo com essa normalização, a curva que descreve o comportamento do combustível do sistema ADS apresenta uma significativa redução nos seus valores, aproximando das curvas dos reatores PWR e VHTR ( $\text{UO}_2$ ). Essa é uma importante observação, pois, para o sistema ADS, temos a maior queima para uma quantidade de combustível igual aos demais reatores estudados. Para o período compreendido entre os instantes  $1,1 \times 10^3$  e  $1,1 \times 10^6$  anos, é observado um aumento no valor do calor de

decaimento normalizado desse sistema; mas, após esse instante, o combustível do sistema ADS se torna aquele a liberar a menor quantidade de calor.



**Figura 4.52 – Calor de decaimento total do combustível para cada sistema, normalizado pela respectiva queima.**

Das figuras 4.53 e 4.54 conclui-se que os actínidos prevalecem nas emissões do calor de decaimento para todos os combustíveis. Uma pequena exceção a essa assertiva, ocorre para o combustível irradiado no reator PWR. Para esse material, em períodos menores que 70 anos, há uma prevalência do calor oriundo dos produtos de fissão. Após 10<sup>2</sup> anos, todos os combustíveis apresentam uma colaboração mais intensa dos actínidos sobre o calor de decaimento, quando comparada com a participação dos produtos de fissão.

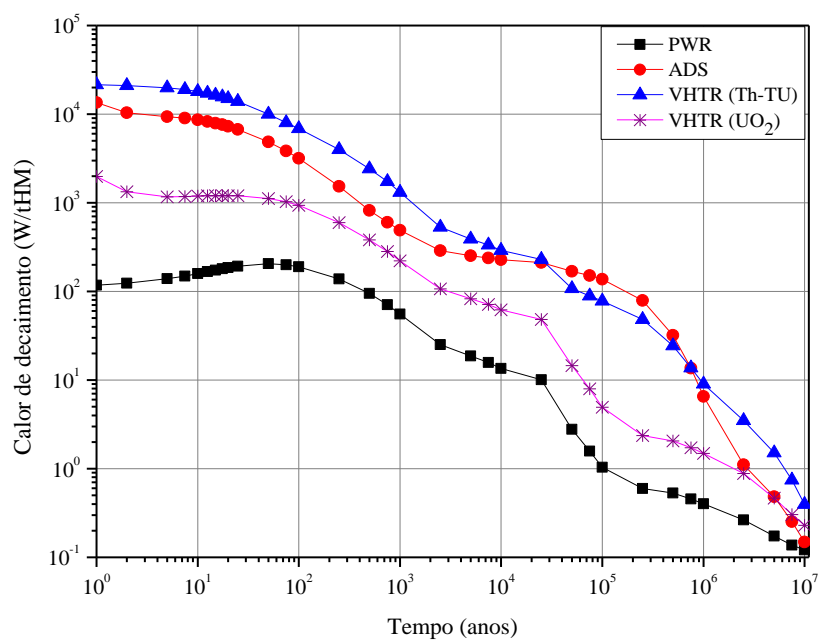


Figura 4.53 – Calor de decaimento por actínídeos do combustível para cada sistema.

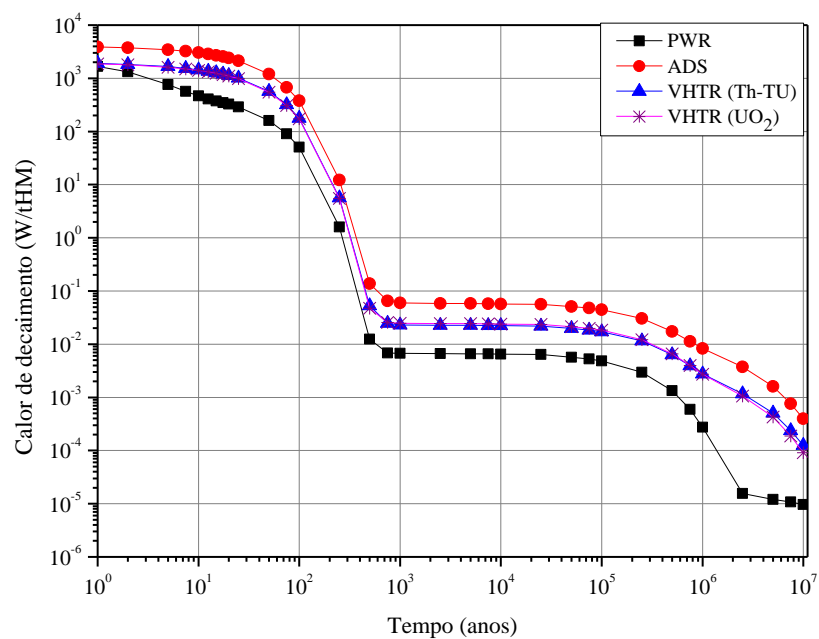
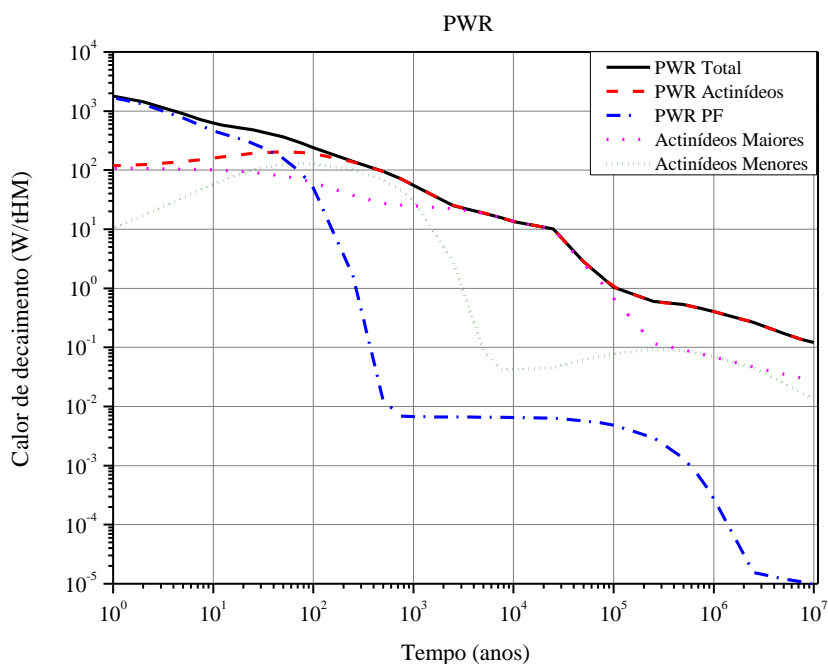


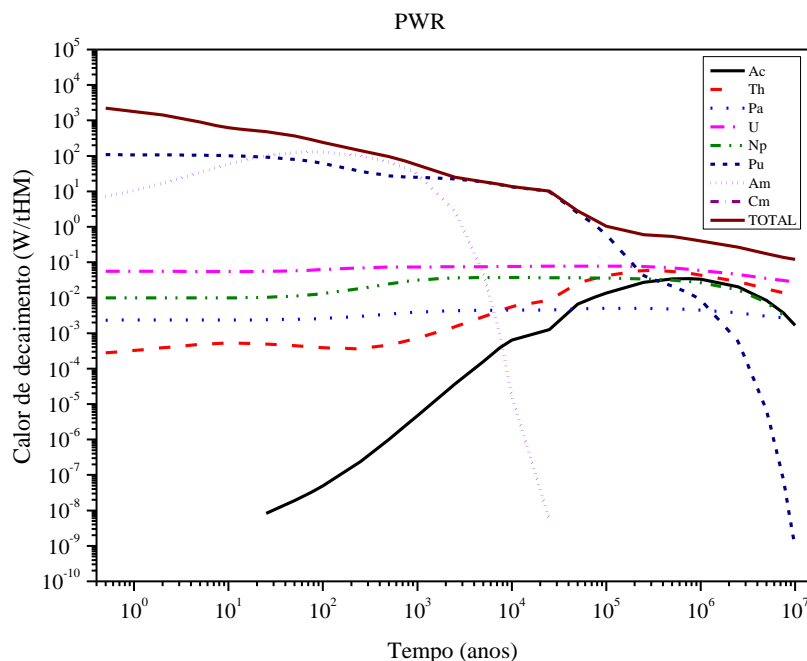
Figura 4.54 – Calor de decaimento por produtos fissão do combustível para cada sistema.

De acordo com a figura 4.55 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 aproximadamente  $10^2$  anos. Após esse intervalo de tempo, os actínídeos se tornam preponderantes na liberação de calor. Quando se avalia a participação de cada um dos grupos de actínídeos, os cálculos dessa pesquisa indicam que há um predomínio dos actínídeos maiores sobre os actínídeos menores.



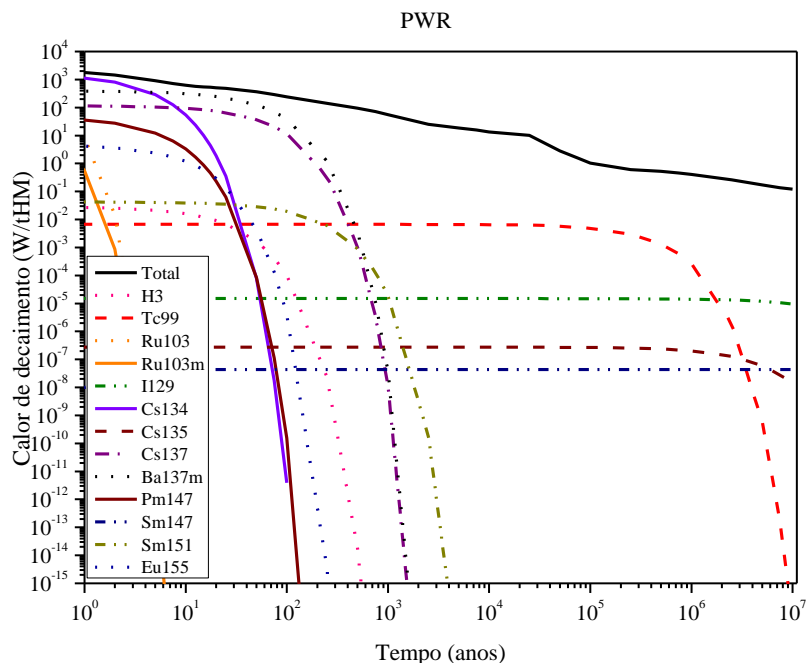
**Figura 4.55 – Calor de decaimento total do combustível do reator PWR.**

Na figura 4.56 é indicado 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  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{240}\text{Pu}$ . Há de destacar-se ainda, a contribuição do isótopo  $^{241}\text{Am}$ . 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  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{237}\text{Np}$  e  $^{225}\text{Ac}$ .



**Figura 4.56 – Calor de decaimento por actínídeos do combustível do reator PWR.**

Pela figura 4.57 observa-se que a contribuição dos produtos de fissão para o calor de decaimento do combustível irradiado no reator PWR decorre da ação de inúmeros isótopos. Até  $10^3$  anos, há uma prevalência dos isótopos de vida médio-curta, destacando-se  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{103\text{m}}\text{Ru}$  e  $^{151}\text{Sm}$ . Depois de  $5,0 \times 10^3$  anos, a participação dos produtos de fissão de vida-longa se evidencia; as principais contribuições são em decorrência dos isótopos  $^{99}\text{Tc}$  e  $^{129}\text{I}$ . Há participações menores de outros isótopos, como  $^{135}\text{Cs}$  e  $^{147}\text{Sm}$ .



**Figura 4.57 – Calor de decaimento por produtos de fissão do combustível do reator PWR.**

Em concordância com a figura 4.58, nota-se que os produtos de fissão têm um breve domínio sobre o calor de decaimento do combustível irradiado no reator VHTR ( $\text{UO}_2$ ). Essa hegemonia perdura até 10 anos. Após esse tempo, há uma ampla prevalência dos actínídeos sobre os valores desse parâmetro. Conforme os cálculos desta pesquisa, os actínídeos maiores, em geral, exercem um predomínio sobre os actínídeos menores. As exceções a essa assertiva ocorrem entre os tempos  $2,0 \times 10^2$  e  $2,0 \times 10^3$  anos e, depois, entre  $2,0 \times 10^5$  e  $3,0 \times 10^6$  anos. Para esses períodos, há uma ligeira prevalência dos actínídeos menores sobre os actínídeos maiores.

Conforme se vê na figura 4.59, o elemento plutônio apresenta a maior contribuição para o calor de decaimento nesse combustível, desde a extração do reator, até o tempo  $3,0 \times 10^5$  anos. Os isótopos que participam mais intensamente nesse processo são  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ . Nesse intervalo de tempo, alguns actínídeos menores também apresentam consideráveis participações no valor do calor de decaimento, citam-se  $^{241}\text{Am}$  e  $^{244}\text{Cm}$ . Após  $3,0 \times 10^5$  anos, observa-se a influência de vários elementos sobre o calor de decaimento, porém, numa proporção menos intensa. Nesse período se sobressaem o urânio, o tório, o actínio e o neptúnio. Os isótopos mais relevantes são  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{227}\text{Ac}$  e  $^{237}\text{Np}$ .



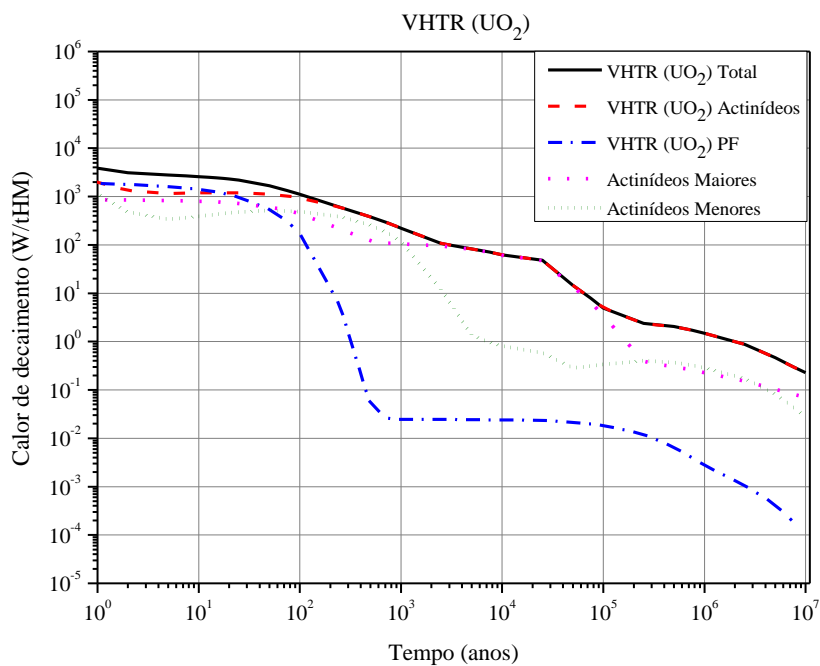


Figura 4.58 – Calor de decaimento total do combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>).

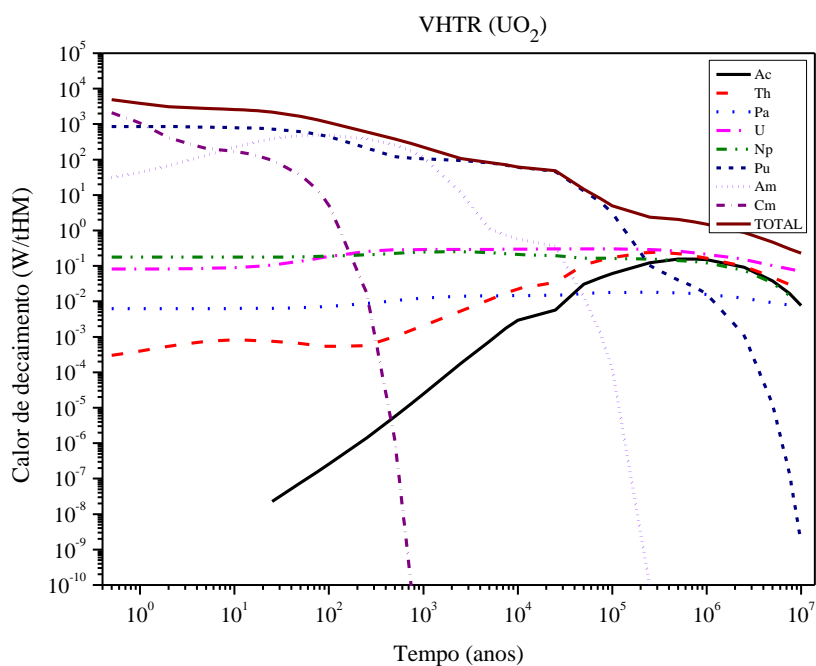
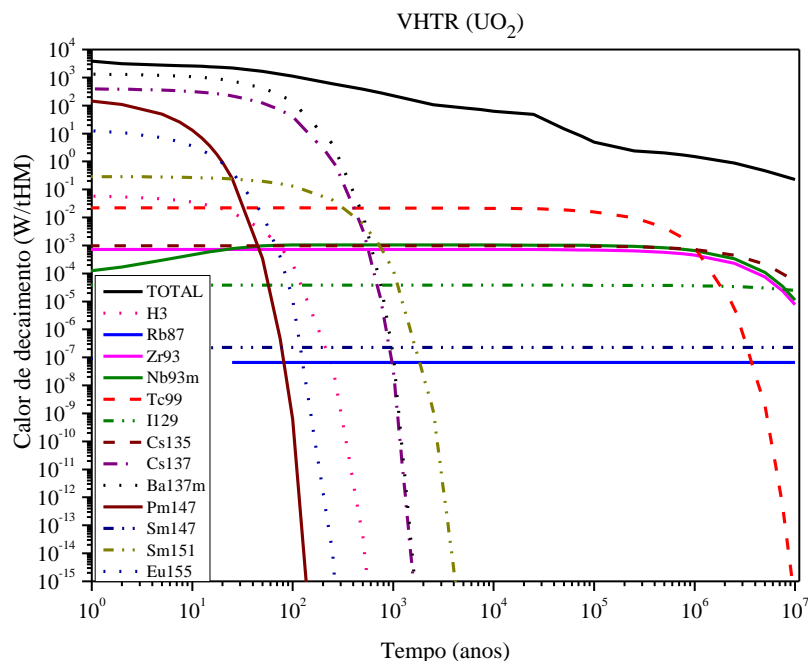
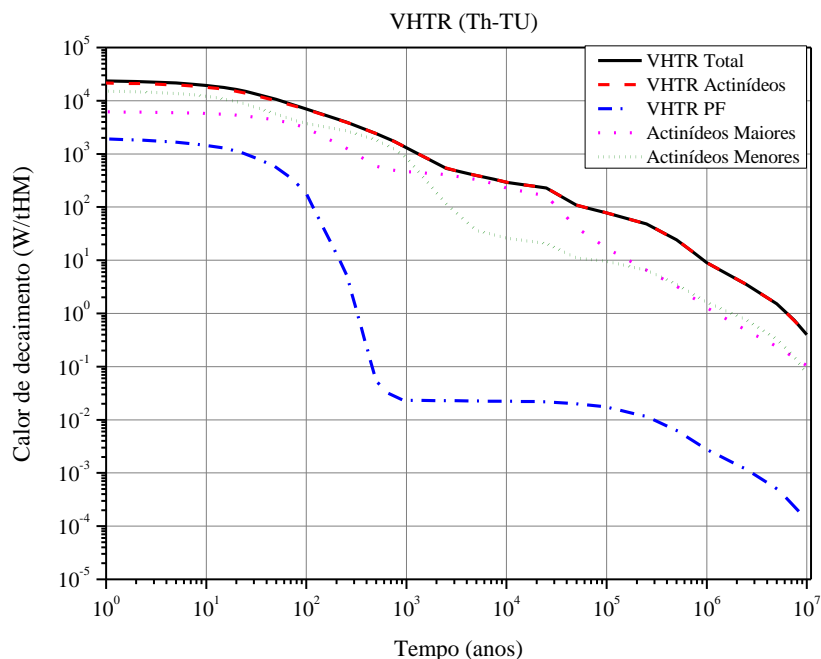


Figura 4.59 – Calor de decaimento por actinídeos do combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>).



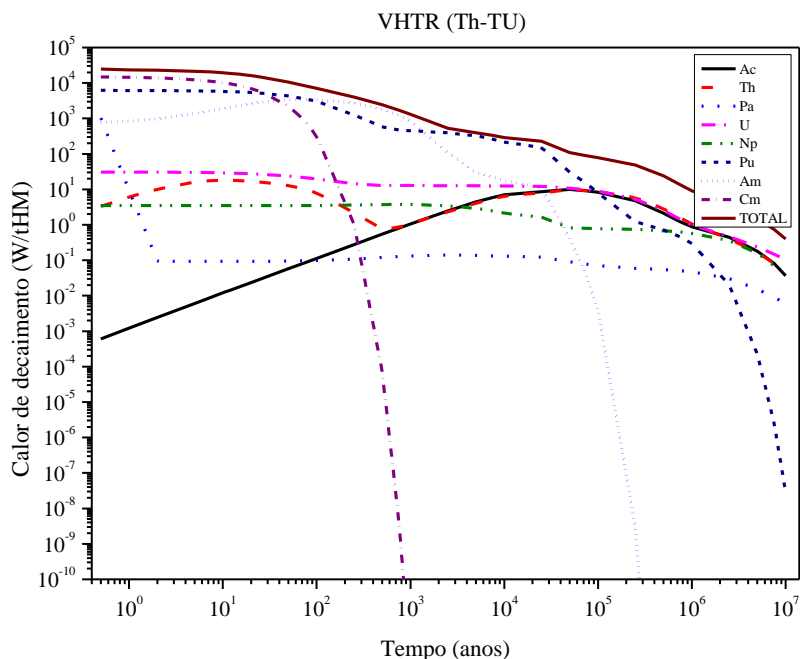
**Figura 4.60 – Calor de decaimento por produtos de fissão do combustível do reator VHTR (UO<sub>2</sub>).**

Da figura 4.60 depreende-se a influência dos produtos de fissão sobre o calor de decaimento do combustível irradiado no reator VHTR (UO<sub>2</sub>). Vários elementos colaboram com esse processo, destacando-se novamente, a ação dos isótopos de vida médio-curta. Para o período de tempo que se estende da extração do combustível do reator até  $4,0 \times 10^3$  anos, são mais relevantes as contribuições do  $^{137m}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{151}\text{Sm}$  e  $^3\text{H}$ . Após esse tempo, a participação dos produtos de fissão de vida-longa se evidencia. As principais contribuições são em decorrência dos isótopos  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{93m}\text{Nb}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{93}\text{Zr}$  e  $^{129}\text{I}$ .



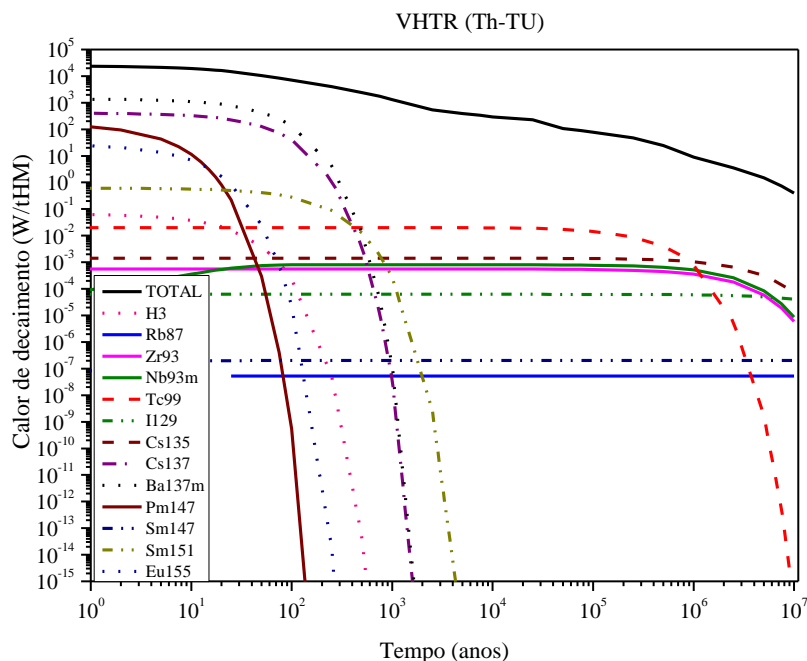
**Figura 4.61 – Calor de decaimento total do combustível do reator VHTR (Th-TU).**

Na figura 4.61 percebe-se que os actinídeos predominam na emissão de calor do combustível extraído do reator VHTR (Th-TU). Através dos cálculos desta pesquisa, constatou-se que há uma prevalência dos actinídeos menores sobre os actinídeos maiores. A exceção a esse fato ocorre no intervalo de tempo entre  $10^3$  e  $10^5$  anos, quando os actinídeos maiores se sobressaem. A figura 4.62 corrobora com a forte influência exercida pelos actinídeos menores sobre o calor de decaimento do combustível retirado do reator VHTR (Th-TU). Até  $10^3$  anos, os elementos cúrio e amerício 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  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{240}\text{Pu}$ . Após  $10^5$  anos vários elementos participam da emissão de calor de uma forma mais significativa, em geral, a maioria deles são actinídeos menores. Devem ser citados os isótopos  $^{225}\text{Ac}$ ,  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{U}$  e  $^{237}\text{Np}$ .



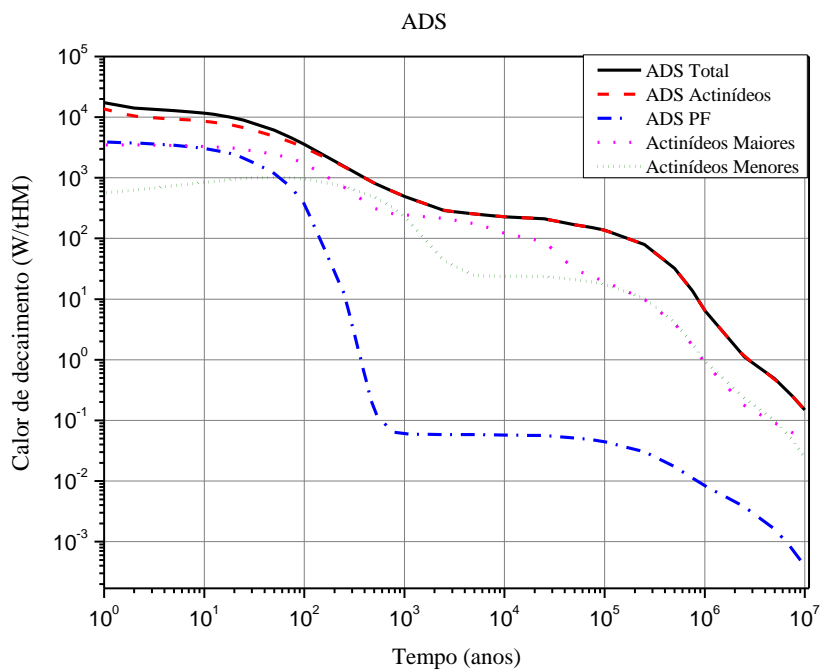
**Figura 4.62 – Calor de decaimento por actínídeos do combustível do reator VHTR (Th-TU).**

Observando a figura 4.63 nota-se como os produtos de fissão contribuem com o calor de decaimento do combustível irradiado no reator VHTR (Th-TU). Vários elementos participam do processo, destacando-se uma vez mais, a ação dos isótopos de vida médio-curta. Para o intervalo de tempo que se estende da retirada do combustível do reator até  $4,0 \times 10^3$  anos, são mais importantes as contribuições do  $^{137m}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{155}\text{Eu}$ ,  $^{151}\text{Sm}$  e  $^3\text{H}$ . Após esse tempo, a participação dos produtos de fissão de vida-longa se evidencia. As principais contribuições são em decorrência dos isótopos  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{93m}\text{Nb}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{93}\text{Zr}$  e  $^{129}\text{I}$ .

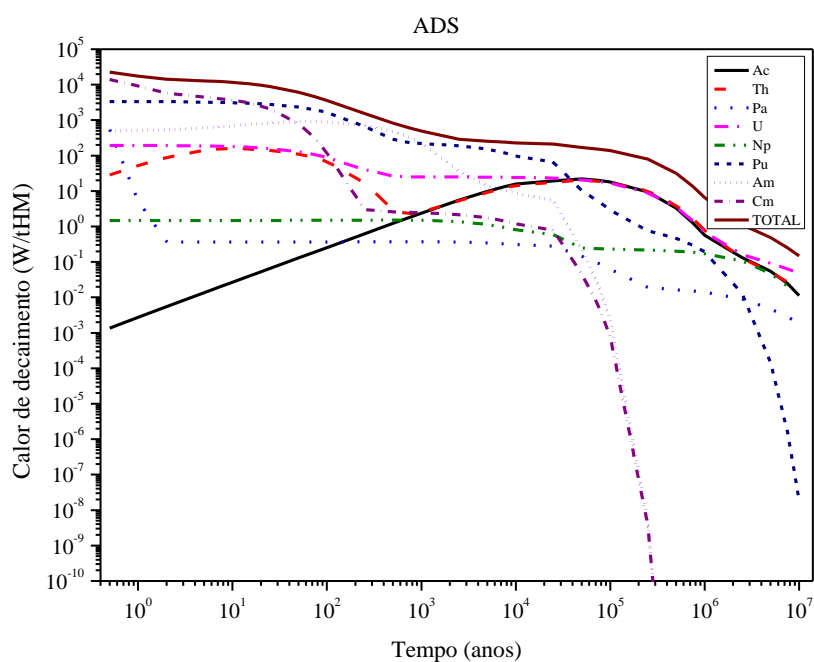


**Figura 4.63 – Calor de decaimento por produtos de fissão do reator VHTR (Th-TU).**

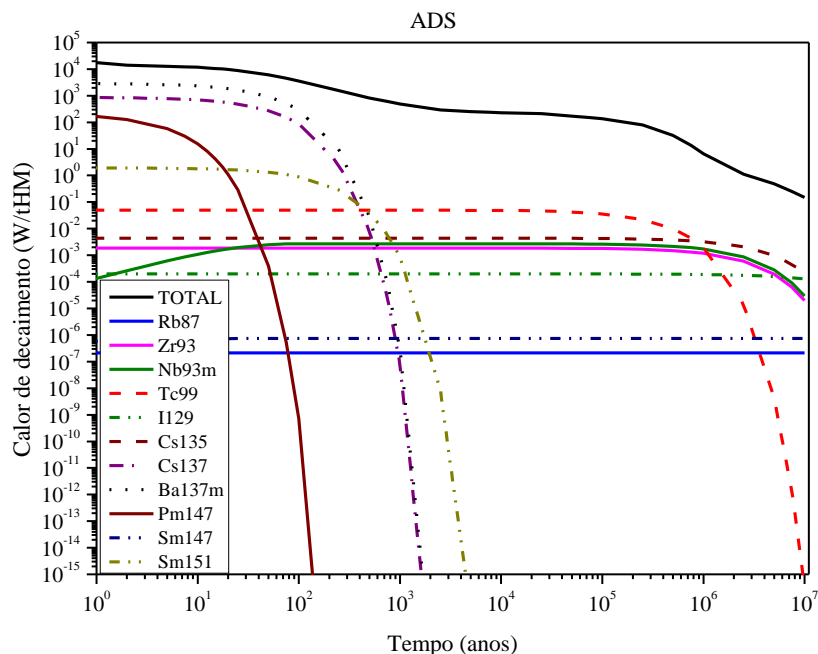
Analisando a figura 4.64 percebe-se que os actínídeos dominam a emissão de calor do combustível oriundo do sistema ADS. No caso desse sistema, os actínídeos maiores são os mais representativos. Como ocorrido para o reator VHTR (Th-TU), apenas entre  $10^3$  e  $10^5$  anos, é que os actínídeos menores se tornam prevacentes. Na figura 4.65 é mostrado que vários elementos contribuem de forma significativa para os valores do calor de decaimento do combustível irradiado no sistema ADS, porém, os isótopos do plutônio exercem a maior influência sobre esse parâmetro. Até  $10^5$  anos destacam-se o plutônio, o amerício e o cúrio. Devem ser citados os isótopos  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$  e  $^{244}\text{Cm}$ . Após esse período, destacam-se os elementos tório, actínio e alguns isótopos do urânio. São relevantes,  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{225}\text{Ac}$ ,  $^{232}\text{U}$ ,  $^{233}\text{U}$  e  $^{237}\text{U}$ .



**Figura 4.64 – Calor de decaimento total do combustível do sistema ADS.**



**Figura 4.65 – Calor de decaimento por actinídeos do combustível do sistema ADS.**



**Figura 4.66 – Calor de decaimento por produtos de fissão do combustível do sistema ADS.**

Pela figura 4.66 observa-se que a contribuição dos produtos de fissão para o calor de decaimento do combustível irradiado no sistema ADS decorre da ação de inúmeros isótopos. Até  $5,0 \times 10^3$  anos, há uma prevalência dos isótopos de vida médio-curta, destacando-se  $^{137m}\text{Ba}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{147}\text{Pm}$  e  $^{151}\text{Sm}$ . Após  $5,0 \times 10^3$  anos, a participação dos produtos de fissão de vida-longa se evidencia; as principais contribuições são em decorrência dos isótopos  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{93m}\text{Nb}$ ,  $^{93}\text{Zr}$  e  $^{129}\text{I}$ . Há participações menores de outros isótopos, como  $^{147}\text{Sm}$  e  $^{87}\text{Rb}$ .

## 5 ESTUDO DA CRITICALIDADE DOS COMBUSTÍVEIS DOS SISTEMAS

O estudo da criticalidade está entre os principais fatores de segurança quando se trata do manuseio, transporte e armazenagem de combustíveis nucleares. No Brasil, a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), através da norma CNEN-NE 5.02, seções 6.2 e 6.3, determina os requisitos específicos para a armazenagem de elementos combustíveis não-irradiados e irradiados, respectivamente (CNEN, 2003). Por essa norma, os combustíveis nucleares devem ser sempre armazenados em estado de subcriticalidade ( $k_{\text{eff}} < 1,0$ ) quer seja em condição de operação normal ou na condição excepcional de um acidente. Na tabela 5.1 são especificados os valores do  $k_{\text{eff}}$  determinados pela norma para cada situação. Obviamente, dentro do escopo desta pesquisa, interessa o limite estipulado para combustíveis irradiados em condição de operação normal,  $k_{\text{eff}} = 0,95$ .

**Tabela 5.1 – Valores de  $k_{\text{eff}}$  para armazenagem de combustíveis nucleares.**

Condição do combustível	Condição de operação	$k_{\text{eff}}$ (CNEN-NE-5.02)
não-irradiado	normal	0.95
	acidente	0.98
irradiado	normal	0.95
	acidente	0.95

Fonte: CNEN, 2003.

Neste trabalho em particular, o interesse do estudo esteve centrado em comparar o comportamento dos combustíveis queimados em sistemas inovadores com um combustível de um reator PWR padrão. Então usou-se um repositório de tamanho fixo para todos os sistemas, de forma que se pode comparar o valor do  $k_{\text{eff}}$  obtido ao se armazenar o combustível de cada um dos sistemas investigados com o valor do padrão adotado.

### 5.1 Descrição dos modelos

A criticalidade dos combustíveis de cada sistema estudado foi calculada através do código SCALE 6.0, via módulo KENO V.a, usando as seções de choque contidas na biblioteca ENDF/B-VII, para 293 gerações com 1000 nêutrons por geração e observada a pertinência em relação à respectiva norma. O módulo KENO V.a foi utilizado por possuir em seu pacote o recurso *SEARCH*, que permite a otimização de geometrias ao se realizar avaliações de criticalidade. Na modelagem dos elementos combustíveis foram adotadas as composições isotópicas mostradas nas tabelas 3.1 a 3.4 na descarga. Procurou-se padronizar a



geometria dos elementos combustíveis tomando como base as dimensões pertencentes ao arranjo do reator PWR que foi adotado como referência. Na tabela 5.2 são descritas as informações geométricas mais relevantes para os elementos combustíveis de cada sistema e o percentual de material físsil remanescente nos mesmos. Na figura 5.1 são mostradas as representações geométricas dos elementos combustíveis de cada sistema conforme a simulação realizada no código SCALE 6.0. Nos cálculos admitiu-se que esses arranjos estavam mergulhados em uma piscina de água leve com boro na proporção de 456 ppm, cujos lados medem 7,55 m e profundidade de 11,677 m. Na modelagem foi considerado que sobre o topo dos elementos combustíveis havia uma coluna de água de 7,71 m de altura e que abaixo dos mesmos havia uma coluna de 31 cm de altura até o fundo da piscina de armazenagem. A figura 5.2 mostra um corte longitudinal de um elemento combustível do sistema PWR dentro da piscina de armazenagem de combustível irradiado. Nos casos dos sistemas VHTR's e ADS considerou-se que os elementos combustíveis estavam envoltos por um contêiner metálico quadrado de aço carbono de 22,0 cm de lado, altura de 3,677 m e 0,25 cm de espessura. O emprego desses contêineres ocorreu em virtude da necessidade de se separar os materiais refrigerantes de cada sistema do contato direto com a água do repositório temporário e também para se evitar reações com o carbono presente na estrutura do elemento combustível dos sistemas VHTR's. Assim, os elementos combustíveis foram colocados centrados dentro desses contêineres metálicos e o espaço restante foi preenchido pelos respectivos fluidos refrigerantes, ou seja, hélio para os sistemas VHTR's e chumbo para o ADS.

**Tabela 5.2 – Configurações geométricas adotadas para análise de criticalidade.**

Sistema	Material físsil (%)	Dados geométricos					
		Dimensão do arranjo (cm)	Barras totais (combustível)	Raio (cm)	Revestimento (cm)	Altura (cm)	Pitch (cm)
PWR	1,41 <sup>(a)</sup>	21,59 x 21,59	289	0,41	0,47 (zircaloy-4)	365,7	1,265
VHTR (UO <sub>2</sub> )	8,74 <sup>(b)</sup>	21,59 x 21,59	210	0,35	0,36 (grafite)	365,7	1,265
VHTR (Th-TU)	11,17 <sup>(b)</sup>	21,59 x 21,59	210	0,35	0,36 (grafite)	365,7	1,265
ADS	9,73 <sup>(c)</sup>	21,59 x 21,59	256	0,28	0,30 (zircaloy-4)	365,7	1,265

<sup>(a)</sup> calculado por ORIGEN 2.1; <sup>(b)</sup> calculado por SCALE 6.0; <sup>(c)</sup> calculado por MONTEBURNS.

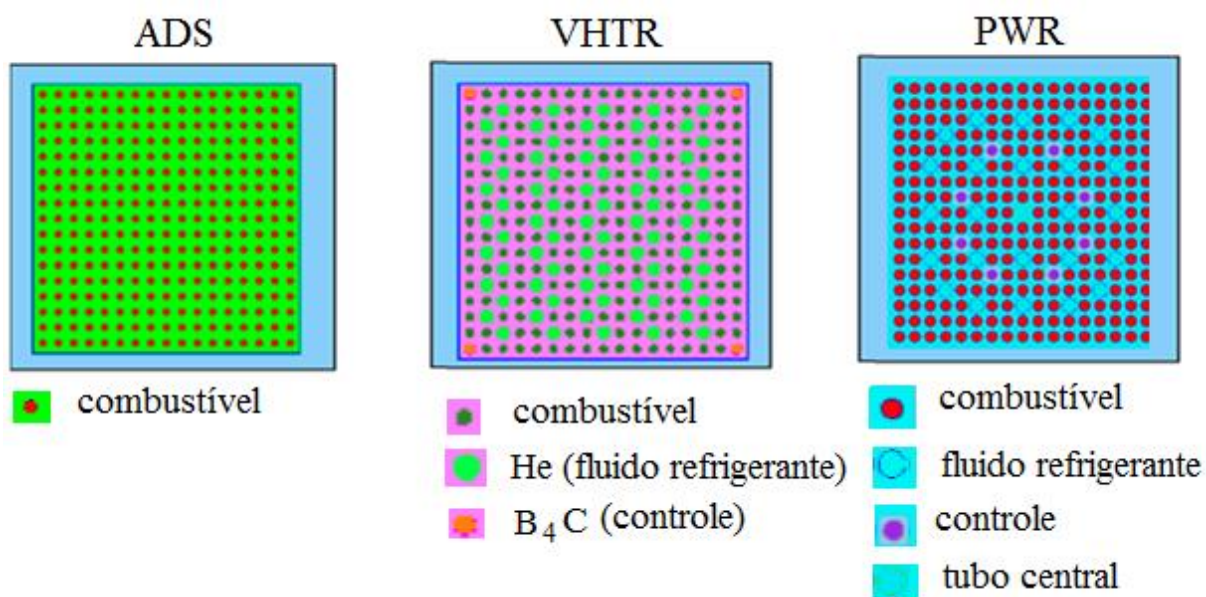


Figura 5.1 – Elementos combustíveis adotados para análise de criticidade simulados no código SCALE 6.0.

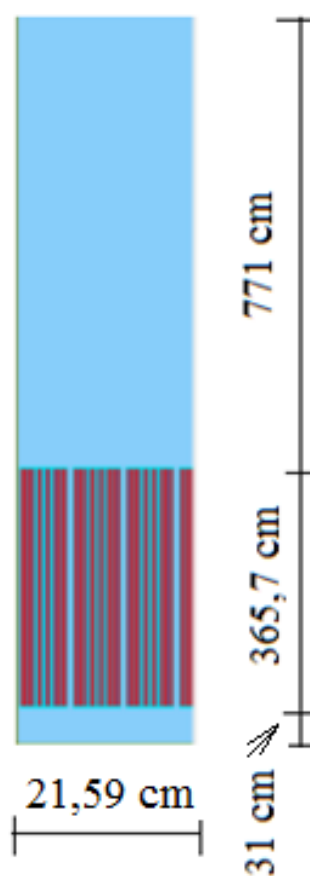


Figura 5.2 – Corte longitudinal de elemento combustível do sistema PWR dentro da piscina de armazenagem simulado no código SCALE 6.0.

## 5.2 Cálculo da criticalidade para lotação da piscina de armazenagem

Na tabela 5.3 são mostrados os valores obtidos para a criticalidade de 1225 elementos combustíveis colocados na piscina de armazenagem para os quatro sistemas estudados. Esse número de elementos combustíveis corresponde a uma razão de ocupação de 97,8% da capacidade de uma piscina de armazenagem de combustível irradiado semelhante àquela utilizada na planta nuclear de Angra-I, onde cabe um total de 1252 elementos combustíveis (KREMPEL et al., 2009). Excetuando-se os elementos combustíveis do sistema ADS, todos os demais casos atenderam os limites propostos pela respectiva norma de armazenagem de combustíveis.

**Tabela 5.3 – Criticalidade para lotação da piscina de armazenagem temporária calculada pelo código SCALE 6.0.**

Sistema	Elementos (totais)	Massa total (10 <sup>5</sup> kg)	Volume total (10 m <sup>3</sup> )	Densidade estimada (10 <sup>3</sup> kg/m <sup>3</sup> )	k <sub>eff</sub> ± σ <sub>(keff)</sub>
PWR	1225	6,433	6,135	10,485	0,834 ± 0,002
VHTR (UO <sub>2</sub> )	1225	3,962	3,962	10,933	0,921 ± 0,002
VHTR (Th-TU)	1225	3,969	3,969	10,957	0,911 ± 0,003
ADS	1225	3,345	3,345	10,532	1,115 ± 0,002

Uma forma de verificar a pertinência dos cálculos de criticalidade de um código em relação aos limites impostos por uma norma local é através do limite subcrítico superior (*Upper Subcritical Limit – USL*) ou k<sub>safe</sub> (PEGRAM JR, 1998) (SALOMÉ et al., 2015). Este método aplica um cálculo estatístico da tendência do valor de k e de suas respectivas incertezas como um ajuste linear de uma coleção de valores de um *benchmark* obtidos pelos cálculos do código. Para determinar o valor do k<sub>safe</sub> emprega-se a seguinte expressão:

$$k_{\text{safe}} = {}^{\text{norma}}k_{\text{eff}} - \beta - 2 \cdot \sigma_{\text{médio}} \quad (23)$$

Onde,

${}^{\text{norma}}k_{\text{eff}}$  = valor exigido pela norma;

$\beta$  = valor do desvio em relação ao valor esperado do código;

$\sigma_{\text{médio}}$  = desvio padrão do valor de k<sub>eff</sub> calculado pelo código.

O valor de  $\beta$  é calculado pela seguinte equação:

$$\beta = |1 - \text{médio}k_{\text{eff}}| \quad (24)$$

Onde,

$\text{médio}k_{\text{eff}}$  = média dos valores calculados pelo código SCALE 6.0/KENO V.a.

Assim, de acordo com os valores da tabela 5.3, temos:

$$\text{médio}k_{\text{eff}} = 1,115 \pm 0,002$$

$$\beta = 0,115$$

$$k_{\text{safe}} = 0,831$$

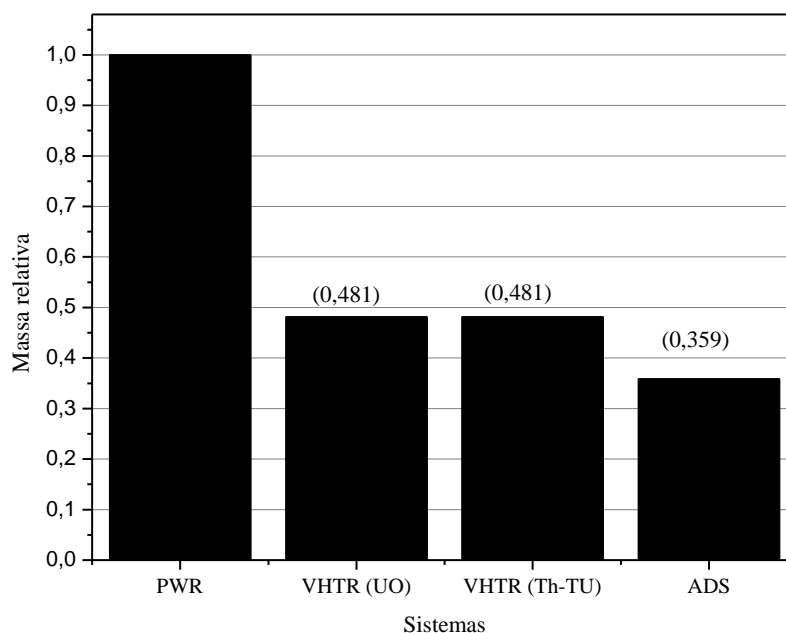
O resultado obtido indica que para manter o estado de subcriticalidade exigido pela norma brasileira para os elementos combustíveis irradiados oriundos do sistema ADS, deveria haver um valor do  $k_{\text{safe}}$  sempre abaixo de 0,831, quando utilizado o código SCALE 6.0/KENO V.a e a biblioteca de dados ENDF/B-VII.

### 5.3 Cálculo da criticalidade para ocupação relativa da piscina de armazenagem

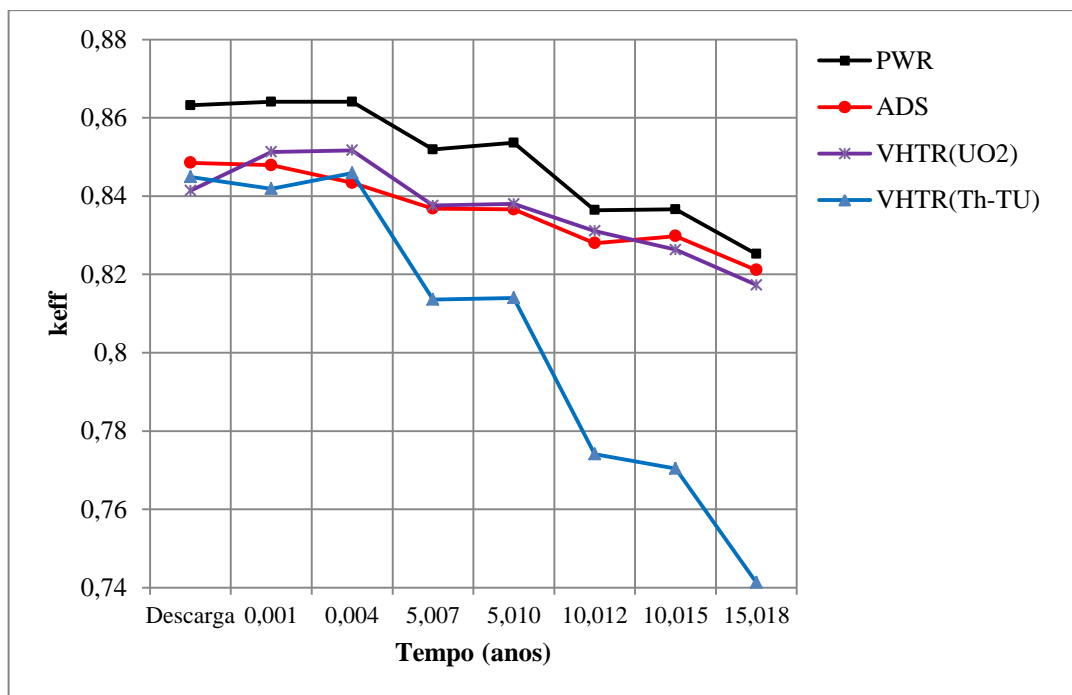
Na tabela 5.4 é apresentada a criticalidade para uma ocupação relativa da piscina de armazenagem, ou seja, calculou-se o número de elementos combustíveis de cada sistema que produziria uma criticalidade semelhante àquela do sistema PWR para a ocupação de 97,8% da piscina de armazenagem de referência. Esses cálculos foram executados através da ferramenta *SEARCH* do módulo KENO V.a do código SCALE 6.0. Na figura 5.3 é mostrada a relação entre a massa de cada sistema e a massa do sistema PWR que foi adotado como padrão. Essas relações entre as massas estocadas eram previstas, principalmente devido às diferenças entre os percentuais de material físsil e também de queima a que cada sistema foi submetido.

**Tabela 5.4 – Criticalidade para ocupação relativa da piscina de armazenagem calculada pelo código SCALE 6.0.**

Sistema	Elementos (totais)	Massa total ( $10^5$ kg)	Volume total ( $10$ m <sup>3</sup> )	Densidade estimada ( $10^3$ kg/m <sup>3</sup> )	$k_{\text{eff}} \pm \sigma_{(k_{\text{eff}})}$
PWR	1225	6,433	6,135	10,485	$0,834 \pm 0,002$
VHTR (UO <sub>2</sub> )	960	3,095	2,825	10,956	$0,831 \pm 0,003$
VHTR (Th-TU)	960	3,095	2,825	10,956	$0,829 \pm 0,003$
ADS	844	2,307	2,197	10,501	$0,830 \pm 0,002$



**Figura 5.3 – Massas relativas dos sistemas dentro da piscina de armazenagem comparadas ao sistema PWR.**



**Figura 5.4 – Criticalidade dos combustíveis na piscina de armazenamento no tempo calculada pelo código SCALE 6.0.**

A figura mostra o comportamento temporal da criticalidade dos carregamentos de cada um dos combustíveis dentro da piscina de armazenamento. Esse estudo foi realizado de acordo com o número de elementos combustíveis indicados na tabela 5.4 e sua duração foi da descarga de cada um dos sistemas nucleares investigados até aproximadamente 15 anos. O carregamento do sistema PWR apresenta a maior criticalidade absoluta. Isso é compreensível, visto que a massa total de combustível desse sistema dentro da piscina que foi utilizada como uma referência, é superior às demais massas nas proporções mostradas na figura 5.3. Percebe-se na figura 5.4 que o carregamento do sistema VHTR (Th-TU) é aquele onde ocorre a maior redução de criticalidade ao longo de 15 anos. Os carregamentos dos sistemas VHTR (UO<sub>2</sub>) e ADS apresentam um comportamento bem similar do ponto de vista da criticalidade ao longo dos 15 anos considerados pelo estudo. Aliás, quando se analisa os percentuais de material físsil e a quantidade de combustível dentro da piscina, respectivamente, nota-se que esses dois sistemas podem ser considerados relativamente mais críticos, visto que o sistema VHTR (UO<sub>2</sub>) possui o segundo menor percentual de material físsil (vide a tabela 5.2), enquanto o sistema ADS possui a menor massa total de combustível irradiado dentro da piscina (conforme a tabela 5.4).

## 6 ANÁLISE TÉRMICA DOS COMBUSTÍVEIS DOS SISTEMAS

Outro fator relevante quando se pensa na estocagem e armazenamento de combustíveis nucleares é o aquecimento do sistema de armazenamento temporário ou final, devido ao calor de decaimento. A emissão de calor por combustíveis nucleares irradiados é um fenômeno decorrente de vários processos, entre os quais se destacam: decaimentos de produtos de fissão instáveis que se transmutam através de emissão de partículas  $\alpha$  e  $\beta$ , ou que se desexcitam liberando energia através de raios  $\gamma$ ; isótopos de actínídeos instáveis que são formados por reações de captura neutrônica nos átomos de urânio e plutônio que constituem o combustível; eventos de fissão decorrentes de nêutrons atrasados; reações devido às emissões espontâneas de nêutrons e reações no material estrutural em geral do reator que podem se tornar radioativos por algum processo específico (NUSBAUMER, 2006). Assim, a compreensão de como ocorre a evolução térmica de combustíveis nucleares irradiados é de suma importância tanto para a manutenção da integridade da instalação de armazenamento, seja temporária ou permanente, como também para o meio ambiente e sistemas biológicos.

Desta forma, procurou-se nesta pesquisa comparar o tempo de ebulição da água em uma piscina de armazenagem de combustível irradiado que recebeu os combustíveis dos sistemas nucleares aqui estudados, considerando a possibilidade de uma eventual perda do sistema de refrigeração externa, bem como analisar o comportamento temporal da temperatura na superfície de *canisters* típicos para combustível de reatores PWR, carregados com as composições investigadas e depositados em repositórios geológicos. Deve ser salientado que nessa modelagem, devido à sua simplificação, não foram adotados os contêineres de contenção para os combustíveis oriundos dos sistemas VHTR's e ADS, estando esses combustíveis em contato direto com a água da piscina. Na execução do estudo foi utilizado o código ANSYS Student. Nos cálculos do comportamento térmico dos combustíveis na piscina de armazenagem aplicou-se o módulo CFX e, no estudo do repositório geológico, o módulo Transiente Térmico. Como fontes térmicas foram empregados os perfis de calor de decaimento contidos na figura 4.51, obtidos através dos cálculos do código ORIGEN 2.1.

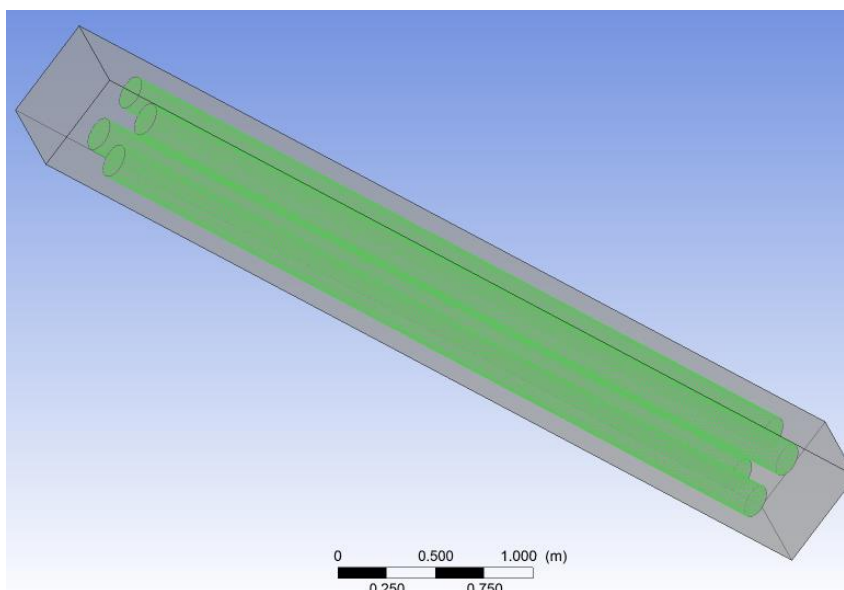
## 6.1 Descrição dos modelos

Na concepção geométrica dos modelos que representaram a análise térmica dos combustíveis oriundos dos sistemas nucleares estudados por esta pesquisa e também da piscina de armazenagem de combustível foi empregada a ferramenta *Design Modeler* do código ANSYS Student módulo CFX (ANSYS, 2009). Essa ferramenta contém poderosos recursos de detalhamento geométrico e permitiu, através do dispositivo *ANSYS Cut Material*, que fossem feitas simplificações na modelagem dos combustíveis irradiados e também da água da piscina de armazenagem no seu entorno. Especificamente, o dispositivo permitiu que fosse modelado o volume de água da piscina e que em seu interior fosse feito o recorte do volume onde seriam inseridos os volumes dos respectivos combustíveis a serem analisados. Esta metodologia é válida, pois, para o código ANSYS apenas os fluxos de calor através das superfícies dos volumes dos combustíveis irradiados são necessários, sendo possível ignorar detalhes em suas composições. Abordagens semelhantes podem ser encontradas em outros trabalhos sem prejuízos para os resultados obtidos (PEREIRA et al., 2016) (PARK et al., 2013).

### 6.1.1 Modelagens da piscina de armazenagem através do módulo CFX do código ANSYS Student

A piscina simulada consiste de um paralelepípedo regular de base quadrada cujos lados medem 0,56 m e com profundidade de 5,0 m. A quantidade de combustível irradiado imerso em água corresponde a um quarto do volume total da piscina. Representando o material oriundo dos sistemas estudados foram simulados quatro cilindros no interior dessa piscina. O raio de cada cilindro é 8,8 cm e a altura 4,0 m, estando separados por uma distância de 18,8 cm de centro a centro. Há um espaço de 30 cm entre o fundo dos cilindros e o fundo da piscina simulada. As dimensões desses cilindros permitem que uma tonelada métrica de combustível de cada sistema nuclear seja depositada na piscina. A densidade média considerada dos combustíveis foi  $10,2 \text{ g/cm}^3$ . Na figura 6.1 é representada a piscina de armazenagem de combustível irradiado simulada através do código ANSYS Student.





**Figura 6.1 – Piscina de armazenagem de combustível irradiado simulada pelo código ANSYS Student.**

Para efeito de cálculo duas modelagens de piscinas foram simuladas. No primeiro modelo, chamado de topo aberto, a parte superior da piscina foi deixada aberta, permitindo a troca de calor com o ambiente externo, mas com a proibição de fluxos de massas. No segundo modelo, chamado de paredes seladas, todas as superfícies foram consideradas adiabáticas. Nas piscinas foram adotadas as frações de 0,95 de água e 0,05 para o ar. Obviamente, para o segundo caso, a única troca de calor permitida ocorreu entre a água da piscina e a fração de ar confinada no seu interior.

Estruturas de malhas (*meshes*) foram geradas pelos algoritmos produzidos pelo código ANSYS Student módulo CFX. De acordo com esses algoritmos as áreas próximas às bordas ou regiões de contorno são meticulosamente divididas, enquanto as áreas onde o fluxo de calor varia ligeiramente são subdivididas com menor rigor. Para melhorar o tempo de simulação computacional empregou-se a ferramenta *ANSYS Symmetry* nos planos XZ e YZ.

Na análise térmica foram usados os valores do calor de decaimento para os tempos  $t = 0$  e  $t = 10$  anos pós-descarga dos sistemas nucleares, supondo que houve a perda do sistema de refrigeração externa da piscina exatamente nesses dois instantes. O tempo  $t = 0$  foi escolhido por ser o momento de maior intensidade do calor de decaimento e, por isso, representar o caso mais crítico. O tempo  $t = 10$  anos foi adotado arbitrariamente. Na tabela 6.1 são listadas as

propriedades físicas da água e do ar consideradas na pesquisa. Na tabela 6.2 são detalhadas as condições de contorno adotadas na modelagem.

**Tabela 6.1 – Propriedades físicas dos materiais da piscina de armazenagem.**

Propriedades	Material	
	Água	Ar
Massa molar ( $10^{-3}$ kg/mol)	18,02	28,96
Densidade ( $\text{kg/m}^3$ )	992,2907	1,185
Temperatura ( $^{\circ}\text{C}$ )	40	25
Pressão (atm)	1,0	1,0
Calor específico (J/kg.K)	4178,656	1004,4
Viscosidade dinâmica ( $10^{-5}$ kg/m.s)	65,3	1,831
Condutividade térmica ( $10^{-2}$ W/m.K)	62,866	2,61
Fração inicial	0,95	0,05

Fonte: Park et al., 2013.

**Tabela 6.2 – Fluxos de calor e condições de contorno.**

Condições de contorno	Valores
	(a1) $4,030 \times 10^4$ (a2) $2,760 \times 10^2$
Fluxo de calor ( $\text{W/m}^2$ )	(b1) $1,442 \times 10^4$ (b2) $1,057 \times 10^3$
	(c1) $1,987 \times 10^5$ (c2) $5,087 \times 10^3$
	(d1) $6,813 \times 10^4$ (d2) $5,176 \times 10^3$
Modelo de turbulência	Laminar
Transferência de calor	Número de Nusselt 1
Tensão superficial água-ar ( $10^{-2}$ N/m)	7,4
Transferência de calor através das paredes externas	Adiabática

a, b, c e d indicam os combustíveis dos sistemas PWR, VHTR ( $\text{UO}_2$ ), VHTR (Th-TU) e ADS respectivamente. 1 e 2 indicam os valores dos fluxos de calor nos tempos  $t = 0$  e  $t = 10$  anos.

Fonte: Park et al., 2013.

### **6.1.2 Modelagem do repositório geológico através do módulo *Transiente Térmico* do código ANSYS Student**

Na modelagem do repositório geológico foi escolhido como referência o modelo adotado pelos britânicos que, por sua vez, é baseado no conceito KBS-3 desenvolvido na Suécia pela Swedish Nuclear Fuel and Waste Company (SKB, 1991). De acordo com essa metodologia, o combustível irradiado é carregado em um *canister* cujas paredes internas são de ferro fundido e a superfície externa é de cobre. Os *canisters* são então depositados em poços verticais escavados ao longo de túneis paralelos na profundidade média de 500 m em uma rocha de granito. Os espaços dentro dos poços que não são ocupados pelos *canisters* são preenchidos por bentonita, enquanto os túneis são selados com uma mistura composta de bentonita e rocha triturada. A profundidade e o diâmetro dos poços de deposição dos *canisters* contendo os combustíveis irradiados são 7,55 m e 1,75 m, respectivamente. O diâmetro dos túneis escavados na rocha de granito é 5,50 m e o afastamento entre túneis é 40 m (NIREX, 2005).

A figura 6.2 mostra uma representação de alguns elementos do conceito britânico de repositório geológico. A geometria simulada pelo código ANSYS Student consistiu de um único *canister* introduzido em uma porção do repositório geológico descrito previamente. Os procedimentos de cálculo foram realizados para os combustíveis de cada um dos sistemas nucleares investigados. Na figura 6.3 são indicadas algumas características geométricas do modelo de *canister* empregado. Basicamente, a altura é 4,50 m e o diâmetro é 0,90 m. A capacidade de cada um desses recipientes lhes permite receber o conteúdo de até quatro elementos combustíveis de um reator PWR típico. Detalhes da constituição dos *canisters*, rochas e bentonita podem ser encontrados nas respectivas referências (NIREX, 2005) (SKB, 1991). A figura 6.4 é um croqui de um repositório geológico em corte mostrando a representação de um *canister* em seu interior.

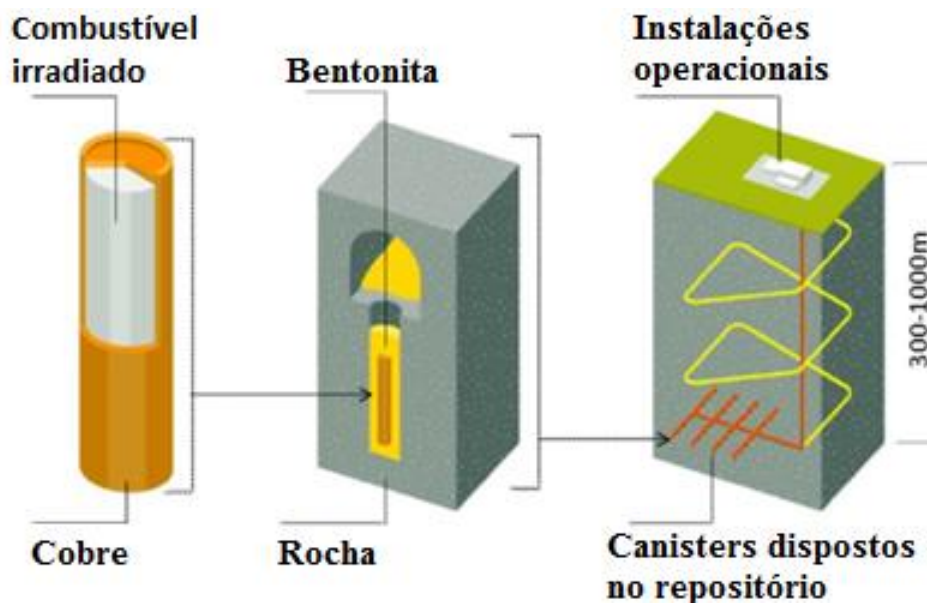


Figura 6.2 – Elementos do conceito britânico de repositório geológico.  
Fonte: Nirex, 2005.

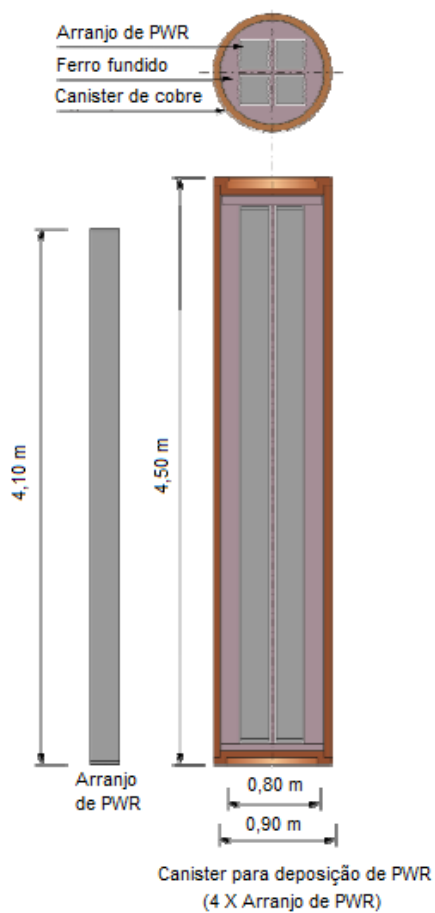
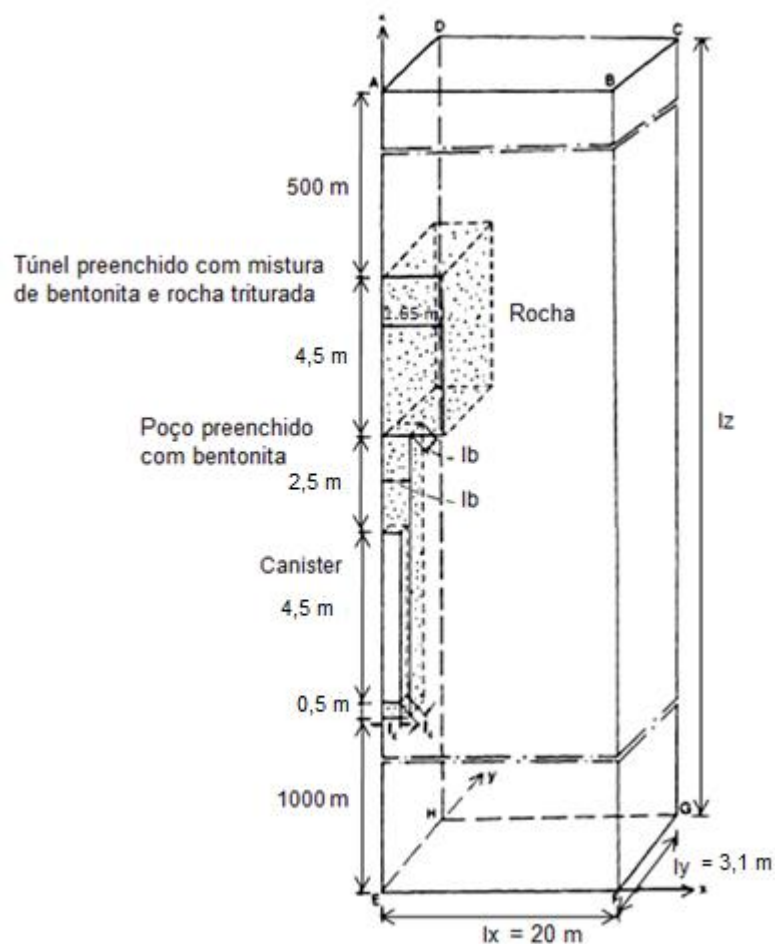


Figura 6.3 – Canister típico para deposição de combustível de reatores PWR.  
Fonte: Nirex, 2005.

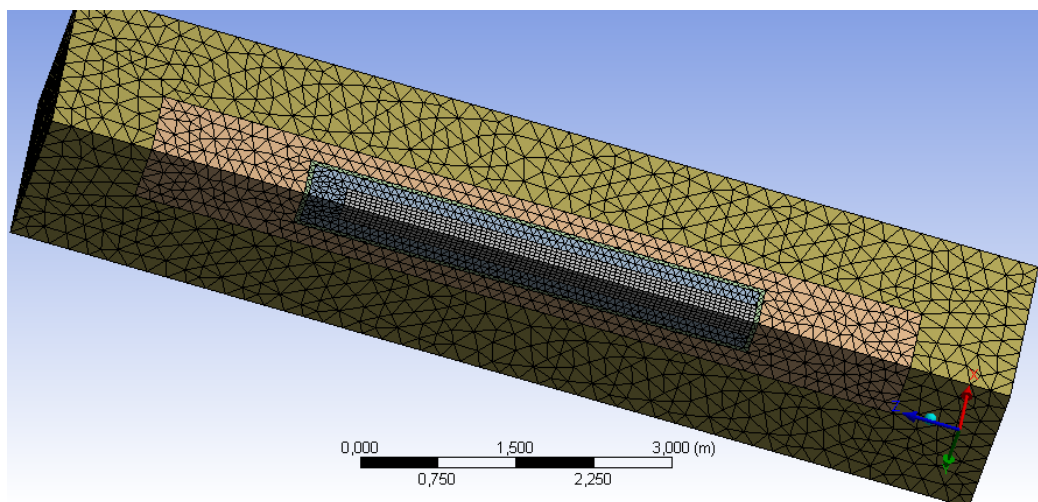


**Figura 6.4 – Croqui de um repositório geológico.**  
 Fonte: SKB, 1991.

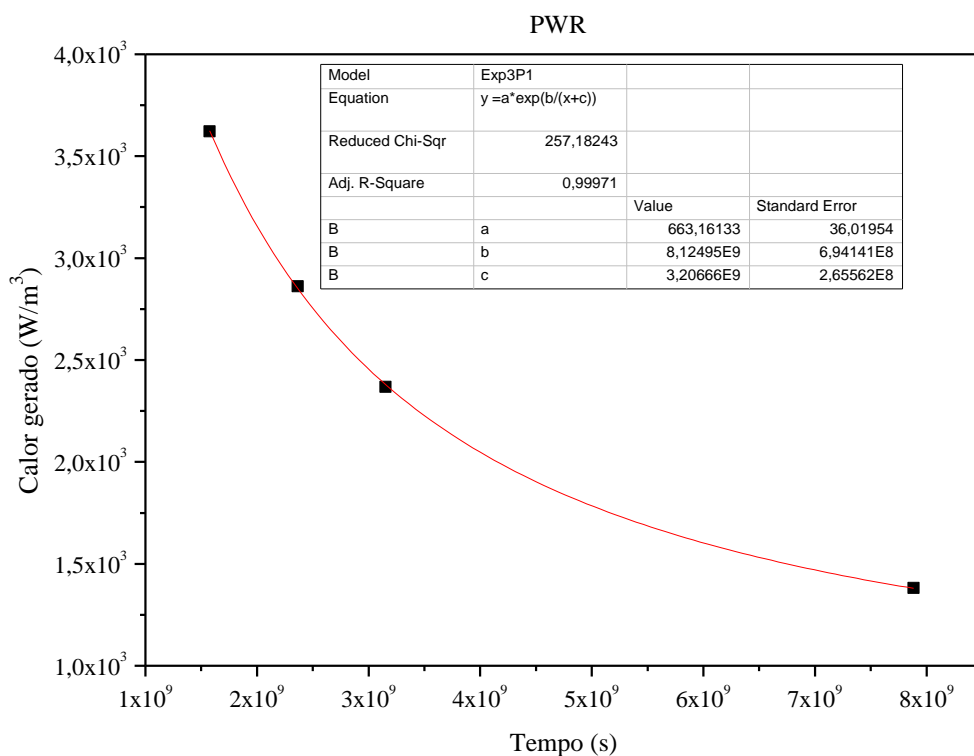
Na simulação do repositório geológico a ferramenta ANSYS *Symmetry* também foi aplicada nos planos XZ e YZ de forma a se ter redução do tempo de cálculo computacional. Considerou-se que o *canister* simulado estava carregado em seus quatro canais com os combustíveis dos sistemas nucleares. Como dito anteriormente, esse material foi considerado como fonte de calor. A configuração do código ANSYS foi realizada através da opção *Internal Heat Generation* que fez uso dos resultados calculados previamente pelo código ORIGEN 2.1 e que constituíram os perfis térmicos mostrados na figura 4.51.

Estudos anteriores (ACAR, 2013) têm demonstrado que as temperaturas das superfícies dos *canisters* em repositórios geológicos têm atingido o estado de saturação térmica para intervalos de tempo menores que 10 anos. Nesta pesquisa foram considerados os intervalos de tempo correspondentes a 50 e 250 anos pós-descarga para que se obtivessem as curvas de ajuste dos dados em função do tempo. O período de 50 anos foi escolhido por ser o tempo adotado por alguns países antes de dar uma destinação final aos combustíveis nucleares

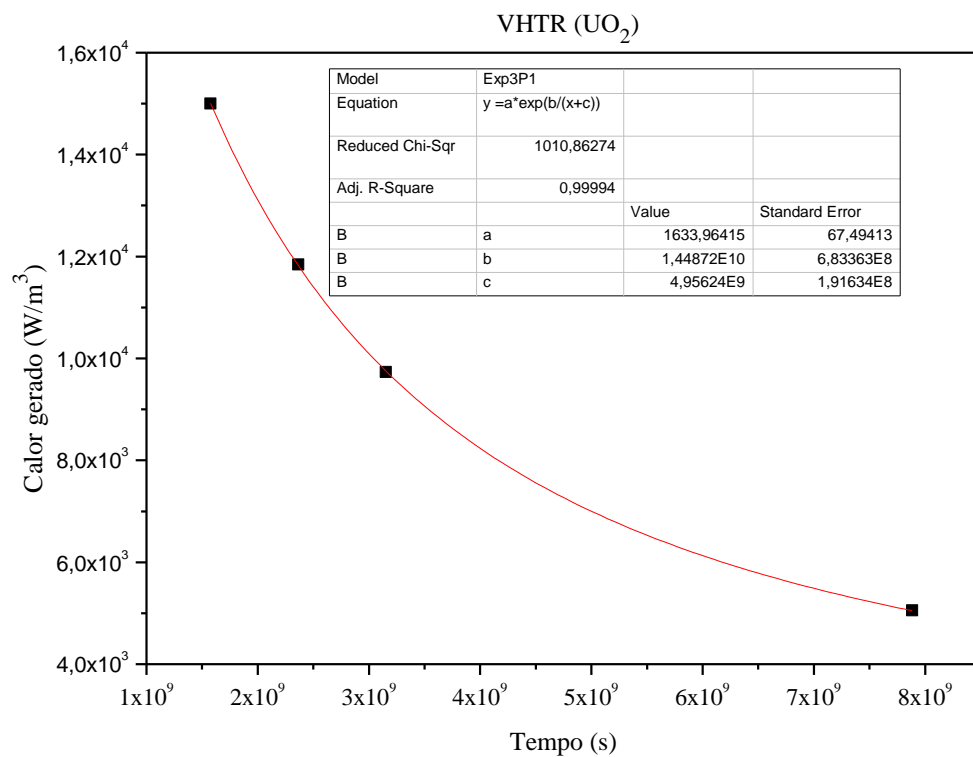
irradiados (ACAR, 2013). Como realizado por estudos prévios (PEREIRA et al., 2016), optou-se por uma função exponencial de primeira ordem ao realizar o ajuste dos dados. A figura 6.5 mostra a estrutura de malhas (*meshes*) usada pelo código ANSYS Student na execução dos cálculos relativos ao repositório geológico. As figuras 6.6(a) a 6.6(d) mostram as curvas de ajuste de dados de calor de decaimento para cada um dos sistemas estudados.



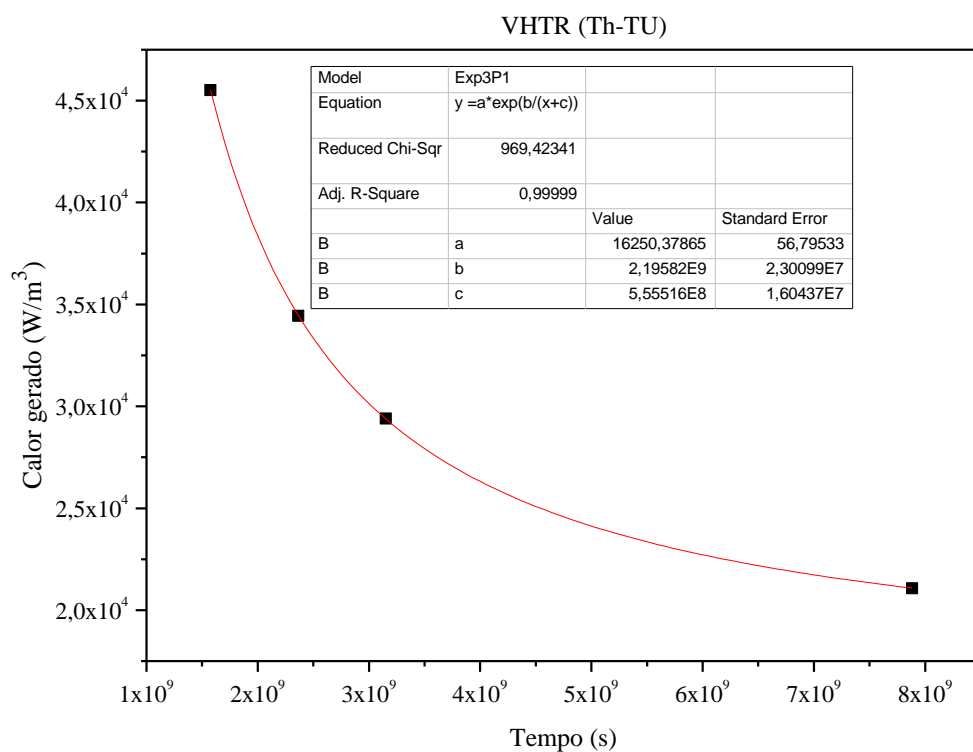
**Figura 6.5 – Malhas (*meshes*) utilizadas na modelagem de uma porção do repositório geológico pelo código ANSYS Student.**



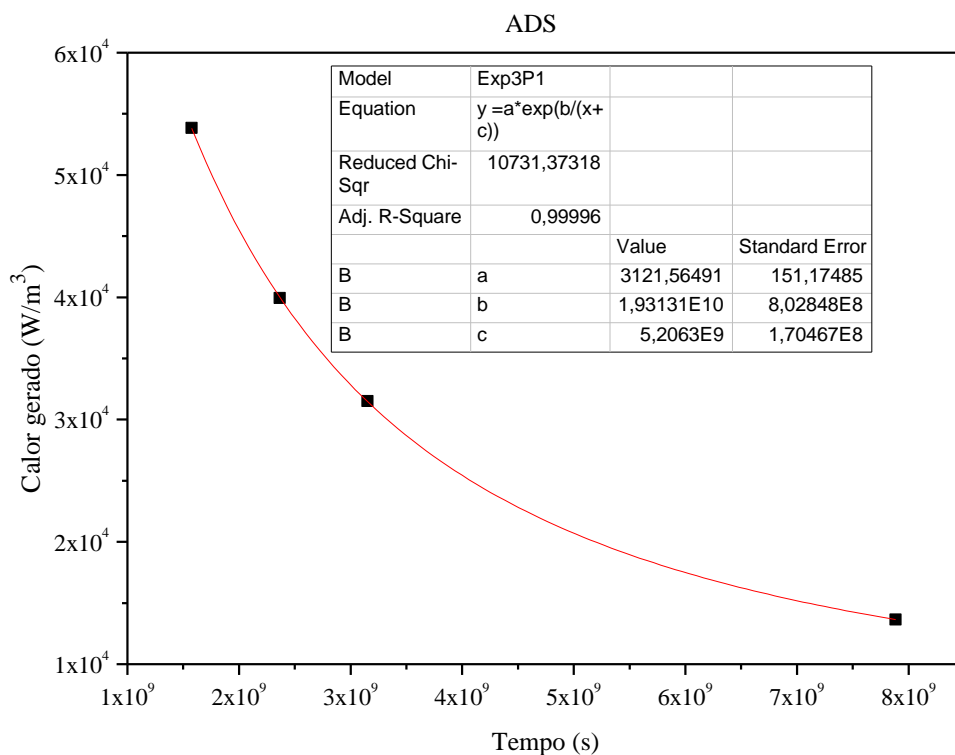
**Figura 6.6(a) – Curva de ajuste de dados de calor de decaimento do sistema PWR.**



**Figura 6.6(b) – Curva de ajuste de dados de calor de decaimento do sistema VHTR (UO<sub>2</sub>).**



**Figura 6.6(c) – Curva de ajuste de dados de calor de decaimento do sistema VHTR (Th-TU).**



**Figura 6.6(d) – Curva de ajuste de dados de calor de decaimento do sistema ADS.**

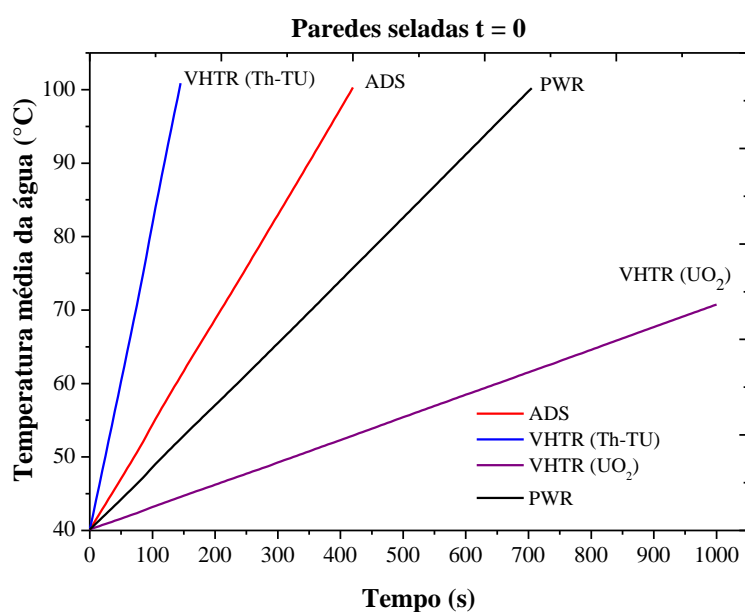
## 6.2 Análise dos resultados dos estudos térmicos

### 6.2.1 Evolução da temperatura da piscina de armazenagem

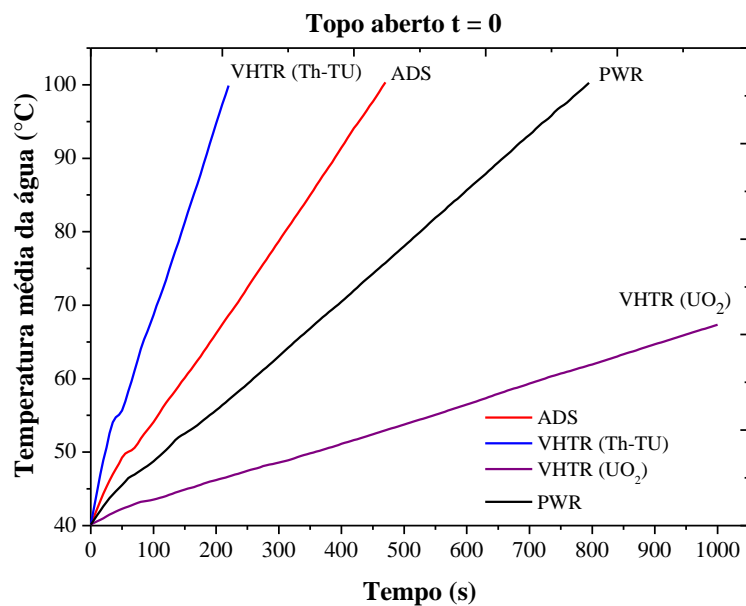
Os resultados que se seguem correspondem aos dois modelos de piscina de armazenagem de combustível propostos. O primeiro, chamado de topo aberto, e o segundo, chamado de paredes seladas. As configurações dessas piscinas já foram descritas anteriormente. É oportuno dizer que foi suposta a ausência de qualquer sistema externo de resfriamento para as piscinas de estocagem. Além disso, considerou-se que para os tempos  $t = 0$  e  $t = 10$  anos pós-descarga os combustíveis se comportaram como fontes de um fluxo constante de calor. A grandeza monitorada foi a temperatura média da água da piscina em cada caso. O tempo total adotado em cada simulação foi de  $10^3$  segundos, com passos de 5 segundos. Esse intervalo de tempo foi suficiente para se obter a taxa de aumento da temperatura média da água ( $R_T$ ).



As figuras 6.7 a 6.10 mostram o comportamento da temperatura da água dentro da piscina para cada um dos sistemas nucleares estudados nos instantes  $t = 0$  e  $t = 10$  anos, respectivamente, conforme cada um dos modelos adotados. De acordo com essas figuras nota-se que a temperatura da água cresce linearmente com o tempo. Assim, o valor de  $R_T$  foi obtido por um ajuste linear de cada uma das retas para os tempos  $t = 0$  e  $t = 10$  anos. Nas tabelas 6.3 e 6.4 são mostrados os valores de  $R_T$  e também o instante em que a água entra em ebulição ( $T_b$ ) para o caso de cada um dos combustíveis dos sistemas nucleares investigados nas correspondentes piscinas de armazenagem.



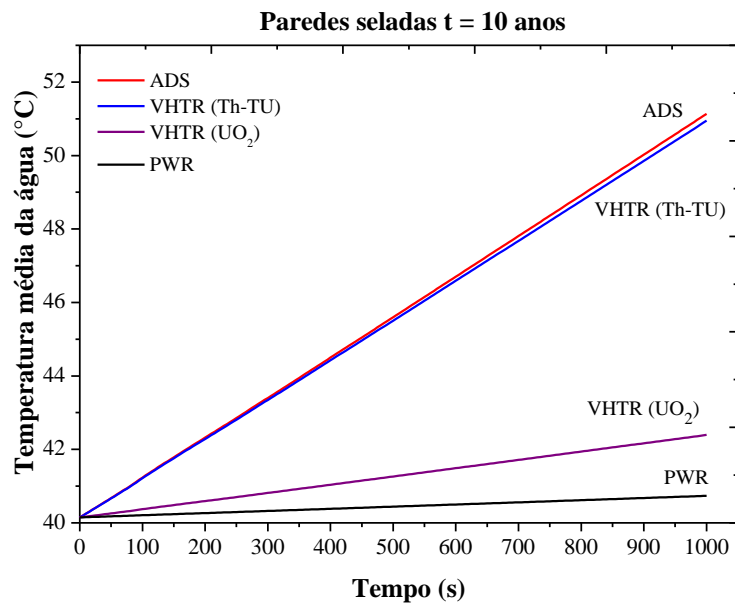
**Figura 6.7 – Temperatura da água da piscina do modelo paredes seladas em  $t = 0$  calculada pelo código ANSYS Student.**



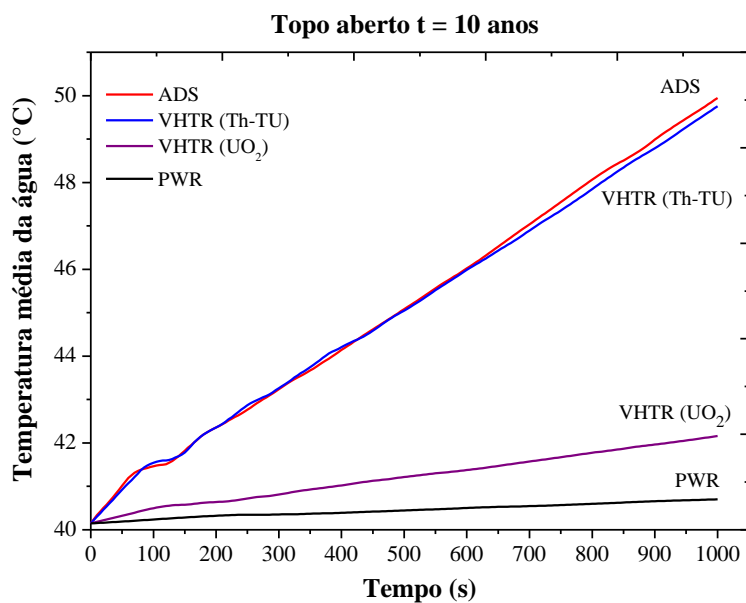
**Figura 6.8 – Temperatura da água da piscina do modelo topo aberto em t = 0 calculada pelo código ANSYS Student.**

**Tabela 6.3 – Taxa de aumento da temperatura média da água ( $R_T$ ) nas piscinas de armazenagem em t = 0 calculada pelo código ANSYS Student.**

Sistema	Tempo t = 0				
	Paredes seladas		Topo aberto		
	$R_T$ (°C/s)	$T_b$ (min)	$R_T$ (°C/s)	$T_b$ (min)	$\Delta R_T$ (%)
PWR	0,086	11,6	0,074	13,5	16,2
VHTR (UO <sub>2</sub> )	0,031	32,3	0,027	37,0	14,8
VHTR (Th-TU)	0,422	2,4	0,359	2,8	17,5
ADS	0,145	7,0	0,125	8,0	16,0



**Figura 6.9 – Temperatura da água da piscina do modelo paredes seladas em t = 10 anos calculada pelo código ANSYS Student.**



**Figura 6.10 – Temperatura da água da piscina do modelo topo aberto em t = 10 anos calculada pelo código ANSYS Student.**

**Tabela 6.4 – Taxa de aumento da temperatura média da água ( $R_T$ ) nas piscinas de armazenagem em  $t = 10$  anos calculada pelo código ANSYS Student.**

Sistema	Tempo $t = 10$ anos				
	Paredes seladas		Topo aberto		
	$R_T$ (°C/s)	$T_b$ (h)	$R_T$ (°C/s)	$T_b$ (h)	$\Delta R_T$ (%)
PWR	0,00059	28,4	0,00052	32,4	13,5
VHTR (UO <sub>2</sub> )	0,0023	7,25	0,0019	8,80	21,1
VHTR (Th-TU)	0,0108	1,54	0,0092	1,80	17,4
ADS	0,0110	1,50	0,0095	1,75	15,8

Uma análise inicial dos resultados obtidos pelo estudo térmico dos combustíveis nas piscinas de armazenagem permite dizer que ambos os modelos, paredes seladas e topo aberto, apresentaram comportamentos muito próximos quando considerados os dois instantes de investigação, ou seja,  $t = 0$  e  $t = 10$  anos. De fato, quando se analisa os resultados encontrados nas tabelas 6.3 e 6.4 percebe-se que a diferença máxima nos valores de  $R_T$  entre os dois modelos, no mesmo tempo, não foi superior a 21,1%. Além disso, como é esperado, o tempo em que o combustível de cada sistema leva a água ao ponto de ebulição  $T_b$  é inversamente proporcional à intensidade da fonte de calor. Desta forma, se realizada uma comparação entre as duas modelagens e adotando uma postura mais conservadora, o modelo de paredes seladas é mais indicado visto que o mesmo prediz taxas de variação da temperatura da água maiores e menores tempos para que a água atinja o ponto de ebulição.

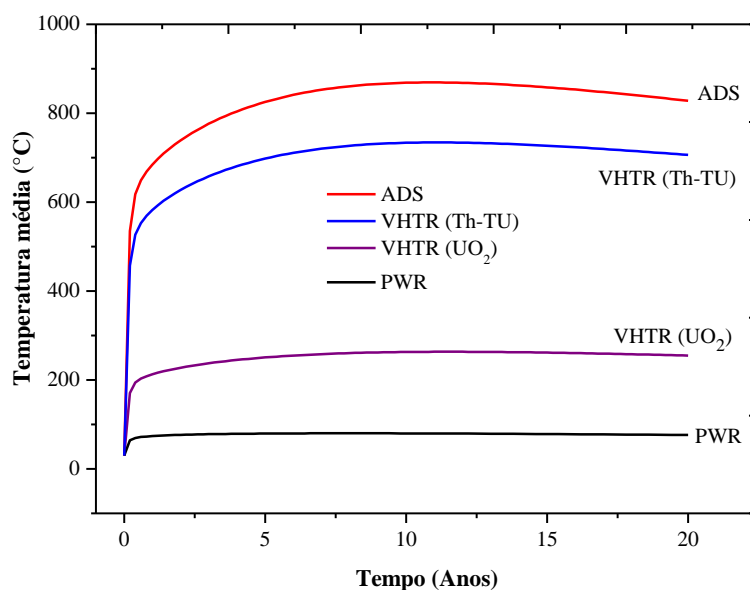
Quando se analisa os combustíveis a partir de suas composições, observa-se que os combustíveis oriundos de técnicas de reprocessamento, VHTR (Th-TU) e ADS, apresentam taxas de variação da temperatura da água maiores, quando comparadas com os valores dos combustíveis que estavam inicialmente frescos, VHTR (UO<sub>2</sub>) e PWR. Esse comportamento é justificado pela colaboração dos isótopos dos actínídeos menores e do plutônio, que são mais intensas nos casos dos combustíveis reprocessados. Nominalmente, podem ser citados os isótopos <sup>238</sup>Pu, <sup>242</sup>Cm, <sup>244</sup>Cm e <sup>241</sup>Am como os grandes colaboradores para o calor de decaimento nos combustíveis reprocessados. Uma situação particular ocorreu para o combustível do sistema PWR onde os produtos de fissão foram mais decisivos do que os actínídeos menores e o plutônio sobre os valores do calor de decaimento e, por consequência, sobre a taxa de variação da temperatura da água. Nesse caso em específico, os efeitos combinados dos isótopos <sup>137m</sup>Ba e <sup>137</sup>Cs explicam o comportamento térmico desse

combustível. Com relação ao combustível do sistema VHTR ( $\text{UO}_2$ ) houve uma equivalência na participação dos actínídeos menores e plutônio quando comparados aos produtos de fissão.

### ***6.2.2 Evolução da temperatura na superfície dos canisters de combustível no repositório geológico calculada pelo código ANSYS Student***

Neste estudo foi suposto que a temperatura inicial dos combustíveis dos sistemas nucleares estudados era  $30^\circ\text{C}$  e que o calor foi transmitido estritamente por condução térmica. Na execução dos cálculos foram geradas as malhas (*meshes*) pelos algoritmos fornecidos pelo módulo Transiente Térmico do código ANSYS Student e simulou-se a evolução da temperatura sobre a superfície dos *canisters* com os combustíveis investigados após 50 anos da descarga dos respectivos sistemas ao longo de 20 anos com a capacidade máxima de estocagem de cada recipiente. Durante os cálculos, o tempo de execução do primeiro passo pelo código foi de  $10^3$  segundos, após isso, o processo foi automatizado pelo próprio código ANSYS Student.

A figura 6.11 mostra como a temperatura da superfície de cada *canister* evoluiu com o transcorrer do tempo para cada um dos combustíveis. Observa-se que, qualitativamente, todos os combustíveis apresentaram um comportamento similar, com a temperatura atingindo um patamar de saturação ao longo do tempo. Na tabela 6.5 são listadas as temperaturas aproximadas de saturação para cada caso. O combustível do sistema PWR atingiu o patamar de saturação térmica mais rapidamente, aproximadamente 7,8 anos. Os combustíveis dos demais sistemas chegaram à saturação térmica da superfície do *canister* em 11 anos. Provavelmente, essa diferença de comportamento seja fruto da ação de produtos de fissão de vida mais curta que é mais pronunciada sobre o calor de decaimento do combustível do sistema PWR.



**Figura 6.11 – Evolução da temperatura na superfície dos *canisters* ao longo do tempo calculada pelo código ANSYS Student.**

**Tabela 6.5 – Temperatura de saturação na superfície dos *canisters* calculada pelo código ANSYS Student.**

Sistema	Tempo (anos)	Patamar de saturação da temperatura (°C)
PWR	7,8	80,1
VHTR (UO <sub>2</sub> )	11,4	263,5
VHTR (Th-TU)	11,2	734,3
ADS	11,0	868,5

Segundo a literatura (ACAR, 2013) (NIREX, 2005) (SKB, 1991), quando se considera repositórios geológicos para combustíveis oriundos de sistemas PWR, a temperatura máxima esperada na superfície de um *canister* é 100°C. Observando-se os resultados obtidos percebe-se que para os sistemas VHTR (UO<sub>2</sub>), VHTR (Th-TU) e ADS seriam ocasionadas temperaturas médias na superfície dos respectivos *canisters* superiores ao limite de 100 °C propostos para esse tipo de instalação. Sendo assim, se esses combustíveis fossem armazenados em um *canister* padrão para UO<sub>2</sub> derivado de PWR, a quantidade máxima possível de combustível a ser armazenada deveria ser consideravelmente menor, o que demonstra a necessidade de se investir no estudo de repositórios geológicos e novos tipos de *canisters* que sejam economicamente viáveis para a quantidade máxima de combustível permitida quando se trabalha com combustíveis irradiados em sistemas inovadores.

## 7 CONCLUSÕES E TRABALHOS FUTUROS

Nesta pesquisa procurou-se fazer uma análise dos parâmetros que se entendem como mais relevantes para a tomada de decisões sobre os processos de armazenagem e deposição de combustíveis nucleares irradiados em sistemas nucleares inovadores. Após a análise dos resultados obtidos, concluiu-se que:

- O combustível do reator PWR, usado como referência por essa pesquisa, representa a média de queima de descarga de meados da década de 1990 e abrange grande parte dos elementos combustíveis das piscinas da frota atual de reatores nucleares e explicita pela presente análise comparativa, que a evolução dos combustíveis dos reatores atuais e das próximas gerações irá demandar outras considerações e, provavelmente, alterações no projeto de armazenagem e de repositórios face às alterações que se pode prever no inventário;
- 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, ou seja, composição, radioatividade, radiotoxicidade e calor de decaimento, especialmente quando são comparados aos produtos de fissão. Essa hegemonia dos actínídeos é evidenciada através da influência de seus valores sobre a forma geral da curva de cada parâmetro;
- Analisando os actínídeos por grupos, observa-se que os actínídeos maiores, sobretudo os isótopos do elemento plutônio, 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 deva ser negligenciada; pelo contrário, elementos como amerício, neptúnio, cúrio e tório são responsáveis por parcelas importantes nos valores dos parâmetros que foram investigados;
- Quando observada a contribuição dos produtos de fissão, percebeu-se que os isótopos de vida médio-curta prevaleceram fortemente sobre os demais, para instantes até  $10^4$  anos. Após esse intervalo há uma prevalência de isótopos de vida-longa, porém, com intensidade em escala menor;

- Ainda com relação aos produtos de fissão, os valores relativos aos parâmetros do combustível do sistema ADS foram aqueles que apresentaram as maiores intensidades entre os casos estudados. Relativamente aos dois reatores VHTR's, as influências desses isótopos apresentaram valores muito próximos para todos os parâmetros. Isso se evidencia pela sobreposição de suas curvas;
- A radiação emitida pelos combustíveis é fortemente influenciada pelos produtos de fissão para intervalos de tempo menor que 100 anos. A exceção a esse fato ocorreu apenas no combustível do reator VHTR (Th-TU);
- Citando nominalmente, os isótopos que mais interferiram nos parâmetros estudados e que devem ser acompanhados, são:

Actinídeos -  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{229}\text{Th}$ ,  $^{230}\text{Th}$  e  $^{225}\text{Ac}$ .

Produtos de Fissão -  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{147}\text{Pm}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{93}\text{Zr}$ ,  $^{93\text{m}}\text{Nb}$ ,  $^{151}\text{Sm}$ ,  $^{137\text{m}}\text{Ba}$  e  $^{155}\text{Eu}$ .

- No estudo de criticalidade concluiu-se que, ao serem depositados 1225 elementos combustíveis dentro de uma piscina de armazenagem semelhante àquela da planta nuclear de Angra-I (97,8% de ocupação), contendo as composições isotópicas dos sistemas nucleares investigados, somente o material oriundo do sistema ADS não apresentou um valor de  $k_{\text{eff}}$  compatível com os limites de criticalidade requeridos pela norma nacional de armazenagem de combustível irradiado. Ao se aplicar a análise do  $k_{\text{safe}}$ , o valor dessa grandeza deveria ser 0,831 para se garantir a segurança de criticalidade da instalação para esse combustível.
- Ao adotar-se a criticalidade do reator PWR como referência, verificou-se que as proporções de massas dentro da piscina deveriam ser 1:0,481:0,481:0,359, considerando respectivamente os sistemas PWR, VHTR (UO<sub>2</sub>), VHTR (Th-TU) e ADS, de modo a se manter a criticalidade atingida pelo combustível do reator PWR.
- Na análise térmica das piscinas de armazenagem, ao comparar-se os dois modelos estudados, verificou-se que a diferença máxima nos valores da taxa de aumento da



temperatura da água ( $R_T$ ) foi de 21,1%. Nessa investigação, percebeu-se que o modelo com todas as paredes adiabáticas era o mais crítico, levando a água ao ponto de ebulição no menor intervalo de tempo ( $T_b$ ); notou-se também que os combustíveis provenientes de técnicas de reprocessamento, VHTR (Th-TU) e ADS, apresentaram os maiores valores de  $R_T$ . Esse comportamento é uma consequência da ação dos isótopos de actínídeos menores e de plutônio sobre o calor de decaimento dos combustíveis desses sistemas.

- Na análise térmica do repositório geológico, o combustível do reator PWR apresentou um comportamento semelhante àquele obtido em pesquisas prévias. Porém, os combustíveis dos outros sistemas nucleares apresentaram patamares de saturação da temperatura acima do previsto. É importante salientar que as referências são relativas ao combustível irradiado em PWR's e que, por isso, mais investigações sobre o comportamento de combustíveis provenientes de sistemas inovadores dentro de repositórios geológicos são recomendadas.
- Este trabalho foi um marco na comparação de repositórios temporários e finais de combustíveis queimados de sistemas inovadores. Dos resultados verifica-se claramente a necessidade de estudos tais como:
  - avaliar o impacto gerado pelos combustíveis de sistemas inovadores na gestão do *back-end* do ciclo dos combustíveis nucleares e planejar abordagens adequadas para as demandas geradas pelas mudanças advindas nos perfis dos reatores nucleares e também dos combustíveis irradiados com relação à deposição em repositórios temporários e permanentes;
  - aprofundamento na análise da criticalidade dos combustíveis dos sistemas inovadores dentro dos repositórios temporários (piscinas de armazenagem), principalmente com melhorias no estudo da evolução temporal da criticalidade desses sistemas;
  - ajuste na modelagem do repositório temporário para os sistemas inovadores, contemplando aspectos como a inclusão dos contêineres de contenção dos combustíveis;
  - investigar a compatibilidade dos *canisters* disponíveis no mercado para receberem os combustíveis provenientes de sistemas inovadores, diante da possibilidade de mudança de perfil na frota de reatores nucleares no futuro.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ACAR, B. B. **Back-end Nuclear Fuel Cycle Options: Effects on High Level Waste Management and Disposal**. Ankara, Institute of Sciences of Hacettepe University, thesis, 2013.

ADAMANTIADES, A., KESSIDES, I. **Nuclear Power for Sustainable Development: Current Status and Future Prospects**. *Energy Policy*, 37, p. 5149-5166, 2009.

BARROS, G. P. **Combustíveis para ADS**. Belo Horizonte, Departamento de Engenharia Nuclear – Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, tese, 2014.

ANSYS INCORPORATED. 2009. **Modeling and Meshing Guide**. ANSYS, USA, 2009.

BARROS, G. P., VELASQUEZ, C. E., PEREIRA, C., VELOSO, M. A. F., COSTA, A. L. **Depletion Evaluation of an ADS Using Reprocessed Fuel**. *International Journal of Hydrogen Energy*, 40, p. 15148-15152, 2015.

BENEDICT, M., PIGFORD, T. **Nuclear Chemical Engineering**. New York, McGraw Hill Book Company, 2<sup>nd</sup> ed., 1981.

BERDEGUEZ, M. B. T. **Modelagem Computacional de um ADS Para Transmutação de Rejeitos e Produção de Hidrogênio**. Ilhéus, Universidade Estadual de Santa Cruz, dissertação, 2012.

BOOTH, T. E. **MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5**. Los Alamos National Laboratory, report LA-UR-03-1987, 2003.

BOWMAN, C. D., ARTHUR, E. D., LISOWSKI, P. W., LAWRENCE, G. P., JENSEN, R. J., et al. **Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation Using an Accelerator-driven Intense Thermal Neutron Source**. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, v. 320, p. 336–367, 1992.

BOWMAN, C. D. **Sustained Nuclear Energy Without Weapons or Reprocessing Using Accelerator Driven Systems**. *Journal de Physique IV*, France 9, 1999.

BROEDERS, C. H. M., BROEDERS, I., KESSLER, G., KIEFHABER, E. Recent Neutron Physics Investigations on the Incineration of Plutonium and Other Transurania Elements. In:

MERZ, E., WALTAR, C. E. (eds.). **Advanced Nuclear Systems Consuming Excess Plutonium**. Kluwer Academic Publishers, p. 27–42, 1997.

BUSCH, R. D., BOWMAN, S. M. **KENO V.a Primer: A Primer for Criticality Calculations with SCALE/KENO V.a Using GeeWiz**. Oak Ridge, Oak Ridge National Laboratory, report ORNL/TM-2005/135, 2005.

CARMINATI, F., KLAPISCH, R., REVOL, J. P. C., ROCHE, C., RUBIO, J. A., et al. **An Energy Amplifier for Cleaner and Inexhaustible Nuclear Energy Production Driven by a Particle Beam Accelerator**. Geneva, CERN, CERN/AT/93-47 (ET), 1993.

CENTER FOR ENVIRONMENT, COMMERCE & ENERGY. **Chinese Pebble-Bed High Temperature Reactor**. Chicago, USA, 2011.

CHAPIN, D., KIFFER, S., NESTELL, J. **The Very High Temperature Reactor: A Technical Summary**. Alexandria, MPR Associates, p. 2-1, 2004.

COCHRAN, R. G., TSOULFANIDIS, N. **The Nuclear Fuel Cycle: Analysis and Management**. La Grange Park, American Nuclear Society, p. 2, 1999.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR – CNEN. 2003. **NE-5.02 Transporte, Recebimento, Armazenagem e Manuseio de Elementos Combustíveis de Usinas Nucleoelétricas**. Rio de Janeiro, fevereiro, 2003.

COTA, S. D. S. **Estudo Neutrônico Preliminar da Reciclagem de Combustíveis Alternativos em Reatores PWR**. Belo Horizonte, Departamento de Engenharia Nuclear – Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, dissertação, 1996.

CROFF, A. G., BJERKE, M. A., MORRISON, G. W., PETRIE, L. M. **Revised Uranium-plutonium Cycle PWR and BWR Models for The ORIGEN Computer Code**. Oak Ridge, Oak Ridge National Laboratory, report ORNL/TM-6051, 1978.

CROFF, A. G. **A User's Manual for The ORIGEN 2 Computer Code**. Oak Ridge, Oak Ridge National Laboratory, report ORNL/TM-7175, 1980.

DA SILVA, F. C. **Avaliação Neutrônica da Inserção de Transurânicos em Reatores Nucleares Tipo VHTR**. Belo Horizonte, Departamento de Engenharia Nuclear – Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, tese, 2012.

DE SOUZA, F. **Determinação das Concentrações de Atividade de  $^{234}\text{U}$  e  $^{238}\text{U}$  em Águas Subterrâneas de Três Poços Perfurados em Rochas da Suíte Intrusiva de Itu (SP)**. São Paulo, Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas – Universidade de São Paulo, dissertação, 2006.

DEHART, M. D. **Triton: A Two-dimensional Transport and Depletion Module for Characterization of Spent Nuclear Fuel**. Oak Ridge, Oak Ridge National Laboratory, report ORNL/TM-2005/36, v. I, 2009.

DEL CUL, G. D. et al. **TRISO-Coated Fuel Processing to Support High-Temperature Gas-Cooled Reactors**. Oak Ridge, Oak Ridge National Laboratory, report ORNL/TM-2002/156, 2002.

DEPARTMENT OF ENERGY, US – DOE. 1994. **The History of Nuclear Energy**. Washington, D. C., Office of Nuclear Energy, Science and Technology, p. 4-5, 1994.

DUDERSTADT, J. J., HAMILTON L. J. **Nuclear Reactor Analysis**. New York, John Wiley & Sons, p. 650, 1976.

ELETRONUCLEAR. 2005. **Relatório de Impacto Ambiental (RIMA) da Unidade 3 da Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto**. Disponível em [http://www.eletronuclear.gov.br/Portals/0/RIMAdAngra3/03\\_caracterizacao.html](http://www.eletronuclear.gov.br/Portals/0/RIMAdAngra3/03_caracterizacao.html). Acesso em 15/11/2016.

ENCYCLOPAEDIA BRITANNICA. 2016. **Nuclear Reactor**. Disponível em <https://www.britannica.com/technology/nuclear-reactor/images-videos>. Acesso em 18/09/2016.

EUROPEAN NUCLEAR SOCIETY – ENS. 2016. **Nuclear Power Plants, World-Wide**. Disponível em <https://www.euronuclear.org/info/encyclopedia/n/nuclear-power-plant-world-wide.htm>. Acesso em 11/07/2016.

EUROPEAN TECHNICAL WORKING GROUP ON ADS. **A European Roadmap for Developing Accelerator Driven Systems (ADS) for Nuclear Waste Incineration**. Paris, France, April, 2001.

GENERAL ATOMICS. **Gas Turbine-Modular Helium Reactor (GT-MHR) Conceptual Design Description Report**. San Diego, GA Project N° 7658, report 910720, revision 1, 1996.

GOLDBERG, S. M., ROSNER, R. **Nuclear Reactors: Generation to Generation**. Cambridge, American Academy of Arts and Sciences, p. 1, 2011.

HUEBNER, K. H., DEWHIRST, D. L., SMITH, D. E., BYROM, T. G. **The Finite Element Method for Engineers**. John Wiley & Sons, 4<sup>th</sup> ed., p. 6, 2001.

IDAHO NATIONAL LABORATORY – INL. 2010. **NGNP Research and Development Status**. Idaho Falls, INL/EXT-10-19259, 2010.

IKEDA-OHNO, A., HENNIG, C., TSUSHIMA, S., SCHEINOST, A. C., BERNHARD, G., YAITA, T. **Speciation and Structural Study of U (IV) and (VI) Perchloric and Nitric Acid Solutions**. *Inorganic Chemistry*, **48**, p. 7201-7210, 2009.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. 1997. **Evaluated Nuclear Data File (ENDF) – ENDF/HE-VI: Pb-208 and Bi-209 Spallation Cross Section**. Disponível em <https://www-nds.iaea.org/exfor/servlet/E4sMakeE4>. Acesso em 20/10/2016.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. 2011a. **Evaluated Nuclear Data File (ENDF) – ENDF/B-VII.1: U-235 Neutron Fission Cross Section**. Disponível em <https://www-nds.iaea.org/exfor/servlet/E4sMakeE4>. Acesso em 07/11/2016.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. 2011b. **Evaluated Nuclear Data File (ENDF) – ENDF/B-VII.1: U-238 Neutron Fission Cross Section**. Disponível em <https://www-nds.iaea.org/exfor/servlet/E4sMakeE4>. Acesso em 07/11/2016.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. 2011c. **Evaluated Nuclear Data File (ENDF) – ENDF/B-VII.1: Th-232 Neutron Fission Cross Section**. Disponível em <https://www-nds.iaea.org/exfor/servlet/E4sMakeE4>. Acesso em 07/11/2016.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. 2011d. **Evaluated Nuclear Data File (ENDF) – ENDF/B-VII.1: Pb-208 Neutron Total and Elastic Scattering Cross Sections**. Disponível em <https://www-nds.iaea.org/exfor/servlet/E4sMakeE4>. Acesso em 20/10/2016.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY – IAEA. 2014. **Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards**. IAEA Safety Standards, series N° GSR Part 3, 2014.

JAPAN ATOMIC ENERGY AGENCY – JAEA. 2006. **Nuclear Science and Engineering Research – Formation of Basis for R&D on Nuclear Energy, and Creation of Innovative Nuclear Energy Utilization Technology**. Disponível em [http://jolifukyu.tokai-sc.jaea.go.jp/fukyu/mirai-en/2006/7\\_1.html](http://jolifukyu.tokai-sc.jaea.go.jp/fukyu/mirai-en/2006/7_1.html). Acesso em 26/09/2016.

JAPAN ATOMIC ENERGY AGENCY – JAEA. 2016. **Nuclear Data Center: Tables of Nuclear Data**. Disponível em <http://www.ndc.jaea.go.jp/NuC/index.html>. Acesso em 26/09/2016.

JOLIOT-CURIE, I. **Artificial Production of Radioactive Elements**. In: *Nobel Lectures: Chemistry 1922-1941*. Amsterdam, Elsevier Publishing Company, 1966. Disponível em [http://www.nobelprize.org/nobel\\_prizes/chemistry/laureates/1935/joliot-curie-lecture.html](http://www.nobelprize.org/nobel_prizes/chemistry/laureates/1935/joliot-curie-lecture.html). Acesso em 27/07/2016.

KALLMAN, B. **The Very High Temperature Reactor**. PH241 – Introduction to Nuclear Energy, Stanford University, May 19, 2013. Disponível em <http://large.stanford.edu/courses/2013/ph241/kallman1/>. Acesso em 26/09/2016.

KAPOOR, S. S. **Accelerator-driven Sub-critical Reactor System (ADS) for Nuclear Energy Generation**. *Pramana – Journal of Physics*, Indian Academy of Sciences, v. 59, n° 6, p. 941-950, 2002.

KASTEN, P. R. **Gas-cooled Reactors: The Importance of Their Development**. Oak Ridge, Oak Ridge National Laboratory, report ORNL-5515, 1979.

KESSIDES, I. N. **Nuclear Power: Understanding the Economic Risks and Uncertainties**. *Energy Policy*, 38, p. 3849-3864, 2010.

KESSLER, G. **Requirements for Nuclear Energy in the 21<sup>st</sup> Century: Nuclear as a Sustainable Energy Source**. *Progress in Nuclear Energy*, vol. 40, n° 3-4, p. 309-325, 2002.

KREMPEL, A., SANTOS, C. D. P., SATO, H. H., MAGALHÃES, L. **Spent Nuclear Fuel Storage – Basic Concept**. In: *International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2009*, Rio de Janeiro, RJ, Brazil, September 27 to October 2, 2009.

LAKE, J. A. **The Fourth Generation of Nuclear Power**. *Progress in Nuclear Energy*, vol. 40, n° 3-4, p. 301-307, 2002.

LAMARSH, J. R., BARATTA, A. J. **Introduction to Nuclear Engineering**. Upper Saddle River, Prentice Hall, 3<sup>rd</sup> ed., p. 119, 2001.

LEE, W. E., GILBERT, M., MURPHY, S. T., GRIMES, R. W. **Opportunities for Advanced Ceramics and Composites in the Nuclear Sector**. *Journal of the American Ceramic Society*, 96 [7], p. 2005-2030, 2013.

LEWIS, R. W., NITHIARASU, P., SEETHARAMU, K. N. **Fundamentals of the Finite Element Method for Heat and Fluid Flow**. John Wiley & Sons, p. 38-45, 2004.

LIDSKY, L., MILLER, M. **Nuclear Power and Energy Security: A Revised Strategy for Japan**. In: PARES Workshop: Energy Security in Japan. Tokyo, Japan, 1998.

LUDWIG, S. B. **ORIGEN 2, Version 2.1** (August, 1991). Release Notes – Revised, May, 1999.

MASSACHUSETTS INSTITUTE OF TECHNOLOGY – MIT. 2015. **Systems Analysis of the Nuclear Fuel Cycle – ORIGEN 2.1**. Retrieved from <http://ocw.mit.edu>, October, 2015.

MARI, C. **The Costs of Generating Electricity and Competitiveness of Nuclear Power**. *Progress in Nuclear Energy*, 73, p. 153-161, 2014.

MASCHEK, W., RINEISKI, A., MORITA, K., MÜHLING, G., FLAD, M. **Safety Analysis for ADS Cores with Dedicated Fuel and Proposals for Safety Improvements**. In: *Emerging Nuclear Energy and Transmutation Systems: Core Physics and Engineering Aspects*. Vienna, IAEA, IAEA-TECDOC-1356, p. 265-276, 2003.

MIGUIRDITCHIAN, M., CHAREYRE, L., SOREL, C., BISEL, I., BARON, P., MASSON, P. **Development of the GANEX Process for the Reprocessing of Gen IV Spent Nuclear Fuels**. In: *Atalante 2008*, Montpellier, France, May 19 - 22, 2008.

MONGELLI, S. T., MAIORINO, J. R., ANÉFALOS, S., DEPPMAN, A., CARLUCCIO, T. **Spallation Physics and the ADS Target Design**. *Brazilian Journal of Physics*, vol. 35, n° 3b, p. 894–897, 2005.

MOUROGOV, V., FUKUDA, K., KAGRAMANIAN, V. **The Need for Innovative Nuclear Reactor and Fuel Cycle Systems: Strategy for Development and Future Prospects**. *Progress in Nuclear Energy*, vol. 40, n° 3-4, p. 285-299, 2002.

MURRAY, R. L. **Nuclear Energy: An Introduction to the Concepts, Systems, And Applications of Nuclear Processes**. Oxford, Butterworth-Heinemann, 5<sup>th</sup> ed., p. 94, 2001.

NIREX LIMITED. 2005. **Outline Design for a Reference Repository Concept for UK High Level Waste/Spent Fuel**. Technical Note Number 502644, 2005.

NIFENECKER, H., MEPLAN, O., DAVID, S. **Accelerator Driven Subcritical Reactors**. Philadelphia, IOP Publishing, 2003.

NUCLEAR ENERGY AGENCY – NEA. 2013. **Minor Actinide Burning in Thermal Reactors**. Paris, report NEA n° 6997, 2013.

NUCLEAR ENERGY RESEARCH ADVISORY COMMITTEE, US – NERAC. 2002. **A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems**. Nuclear Energy Research Advisory Committee and the Generation IV International Forum, GIF-002-00, 2002.

NUCLEAR REGULATORY COMMISSION, US – NRC. 2015. **Science 101 – What is Nuclear Fuel?** Disponível em <https://public-blog.nrc-gateway.gov/2015/02/24/science-101-what-is-nuclear-fuel/>. Acesso em 30/029/2016.

NUCLEAR ENERGY INSTITUTE – NEI. 2016. **On-Site Storage of Nuclear Waste**. Disponível em <http://www.nei.org/Knowledge-Center/Nuclear-Statistics/On-Site-Storage-of-Nuclear-Waste>. Acesso em 11/07/2016.

NUSBAUMER, O. **Decay Heat in Nuclear Reactors**. 2006. Disponível em <http://decay-heat.tripod.com>. Acesso em 29/11/2016.

PARK, C. H., LEE, A., LEE J. M., MOON, J. H. **Estimation of the Spent Fuel Pool Water Temperature at a Loss-of-Pool-Cooling Accident**. World Academy of Science, *Engineering and Technology*, 7, p. 1353-56, 2013.

PEGRAM JR, J. W. **Calculation of Upper Subcritical Limits for Nuclear Criticality in a Repository**. Lynchburg, Framatome Technologies Incorporated, Document B00000000-01717-0210-00027 Rev 00, July 23, 1998.

PEREIRA, F., SALOMÉ, J., VIANA, C., CARDOSO, F., VELASQUEZ, C. E., BARROS, G. P., PEREIRA, C. **Thermal Analysis of Spent Nuclear Fuels Repository**. In: 5th International ATALANTE Conference on Nuclear Chemistry for Sustainable Fuel Cycles. *Procedia Chemistry*, 21, p. 386-393, 2016.

PIORO, I. **Handbook of Generation IV Nuclear Reactors**. Cambridge, Woodhead Publishing, 1<sup>st</sup> ed., p. 246-251, 2016.



REGALBUTO, M. C., COPPLE, J. M., LEONARD, R., PEREIRA, C., VANDEGRIFT, G. F. **Solvent Extraction Process Development for Partitioning and Transmutation of Spent Fuel**. In: *8<sup>th</sup> Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation*, Las Vegas, US, November 9 - 11, 2004.

RUBBIA, C., RUBIO, J. A., BUONO, S., CARMINATI, F., FIÉTIER, N., et al. **Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier**. Geneva, CERN, CERN/AT/95-44 (ET), 1995.

SALOMÉ, J. A. D., PEREIRA, C., ASSUNÇÃO, J. B. A. **Criticality Safety Analysis Using Continuous Energy Libraries of MCNP code**. *Int. J. Nuclear Energy Science and Technology*, vol. 9, N° 4, p. 333-364, 2015.

SVENSK KARNARNBRANSLEHANTERING AB. 1991. **Heat Propagation From a Radioactive Waste Repository - SKB 91 Reference Canister**. Technical Report 91-61, 1991.

STACEY, W. O. **Nuclear Reactor Physics**. New York, Wiley-VCH, 2<sup>nd</sup> ed., p. 249, 2007.

STERBENTZ, J. W. Low-Enriched Fuel Design Concept for the Prismatic Very High Temperature Reactor Core. In: 2007 INTERNATIONAL CONGRESS ON ADVANCES IN NUCLEAR POWER PLANTS, May, 2007, **Proceedings of ICAPP 2007**, Nice, France, May 13-18, paper 7098, 2007.

TAIWO, T. A., KIM, T. K., YANG, W. S., KHALIL, H. S. **Evaluation of High Temperature Gas-Cooled Reactor Physics Experiments as VHTR Benchmark Problems**. Chicago, Argonne National Laboratory, ANL-Gen IV-059, 2005.

TRELLUE, H. R., POSTON, D. I. **User's Manual, Version 2.0 for MonteBurns, Version 5B**. Los Alamos, Los Alamos National Laboratory, report LA-UR-4999, 1999.

TSOULFANIDIS, N. **The Nuclear Fuel Cycle**. La Grange Park, American Nuclear Society, p. 302-303, 2013.

TSVETKOV, P. V., LEWIS, T. G., ALAJO, A. B. **TRU-Fueled Very High Temperature Reactors for Applications Requiring an Extended Operation with Minimized Control Rod and No Refueling**. *J. Eng. Gas Turbines Power*, 131(5), 052907, 2009.

TSYPLENKOV, V. **Electricity Production and Waste Management**: Comparing the Options. *IAEA Bulletin – Quarterly Journal of the International Atomic Energy Agency*, v. 35, n° 04, p. 27-33, 1993.

UNIVERSITY OF CHICAGO LIBRARY ARCHIVE. 2016. **Sketch of Chicago Pile 1 Experiment – Image apf2-00501**. Digital Activities & Collections. Disponível em [http://storage.lib.uchicago.edu/ucpa/series2/derivatives\\_series2/apf2-00501r.jpg](http://storage.lib.uchicago.edu/ucpa/series2/derivatives_series2/apf2-00501r.jpg). Acesso em 28/07/2016.

VAN TUYLE, G. J., TODOSOW, M., GEIGER, M. J., ARONSON, A. L., TAKAHASHI, H. **Accelerator-driven sub-critical target concept for transmutation of nuclear wastes**. *Nuclear Technology*, v. 101, p. 1–22, 1993.

VANDEGRIFT, G. F., REGALBUTO, M. C., AASE, S. BAKEL, A., BATTISTI, T. J. et al. **Designing and Demonstration of the UREX+ Process Using Spent Nuclear Fuel**. In: *Atalante 2004*, Nimes, France, June 21 - 25, 2004.

VON HIPPEL, F. **The Uncertain Future of Nuclear Energy**. Princeton, The International Panel on Fissile Materials, 2010.

WADE, D. C., YANG, W. S., KHALIL, H. **ATW Neutronic Design Studies**. *Progress in Nuclear Energy*, vol. 40, n° 3-4, p. 497-504, 2002.

WARIN D., MASSON M., BORDIER, G. **The Atalante Facility at CEA/Marcoule: Towards Gen IV Systems Fuel Cycle**. Montpellier, France, 2008.

WARIN, D. **Future Nuclear Fuel Cycles: Prospect and Challenges for Actinide Recycling**. *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, v. 9, p. 1–6, 2010.

WESTINGHOUSE ELECTRIC CORPORATION. 1984. **The Westinghouse Pressurized Water Reactor Nuclear Power Plant**. Pittsburg, Westinghouse Water Reactor Divisions, p. 13-19, 1984.

WORLD NUCLEAR ASSOCIATION – WNA. 2014. **Outline History of Nuclear Energy**. Disponível em <http://www.world-nuclear.org/information-library/current-and-future-generation/outline-history-of-nuclear-energy.aspx>. Acesso em 01/07/2016.

WORLD NUCLEAR ASSOCIATION – WNA. 2015. **Current and Future Generation/Thorium**. Disponível em <http://www.world-nuclear.org/information-library/current-and-future-generation/thorium.aspx#References>. Acesso em 26/09/2016.

WORLD NUCLEAR ASSOCIATION – WNA. 2016a. **World Energy Needs and Nuclear Power**. Disponível em <http://www.world-nuclear.org/information-library/current-and-future-generation/world-energy-needs-and-nuclear-power.aspx>. Acesso em 11/07/2016.

WORLD NUCLEAR ASSOCIATION – WNA. 2016b. **Generation IV Nuclear Reactors**. Disponível em <http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/nuclear-power-reactors/generation-iv-nuclear-reactors.aspx>. Acesso em 10/11/2016.

YAMAURA, M. **Partição de Actínídeos e de Produtos de Fissão de Rejeito Líquido de Alta Atividade**. São Paulo, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), tese, 1999.

## APÊNDICE A

A seguir são apresentados os trabalhos decorrentes da pesquisa realizada.

### Artigos completos publicados em periódicos:

- SALOMÉ, J. A. D., PEREIRA, C., ASSUNÇÃO, J. B. A. **Criticality safety analysis using continuous energy libraries of MCNP code.** *Int. J. Nuclear Energy Science and Technology*, vol. 9, Nº 4, p. 333-364, 2015.
- SALOMÉ, J. A. D., CARDOSO, F., VESLAQUEZ, C. E., PEREIRA, F., BARROS, G. P., PEREIRA, C. **VHTR, ADS and PWR spent nuclear fuel analysis.** In: 5th International ATALANTE Conference on Nuclear Chemistry for Sustainable Fuel Cycles. *Procedia Chemistry*, 21, p. 255-262, 2016.
- PEREIRA, F.; SALOMÉ, J.; VIANA, C.; CARDOSO, F.; VELASQUEZ, C. E.; BARROS, G. P.; PEREIRA, C. **Thermal Analysis of Spent Nuclear Fuels Repository.** In: 5th International ATALANTE Conference on Nuclear Chemistry for Sustainable Fuel Cycles. *Procedia Chemistry*, 21, p. 386-393, 2016.

### Trabalhos completos publicados em anais de congressos:

- SALOMÉ, J. A. D., VELASQUEZ, C., CARDOSO, F., PEREIRA, C. **Análise da influência de actínídeos maiores e menores em combustíveis nucleares irradiados.** In: *Terceira Semana de Engenharia Nuclear e Ciências das Radiações - SENCIR 2016* Belo Horizonte, MG, Brasil, 4 a 6 de Outubro de 2016.
- SALOMÉ, J. A. D., CARDOSO, F., FARIA, R. B., PEREIRA, C. **Evaluation of the thermal neutron flux in the core of IPEN/MB-01 reactor using the code monte carlo (MCNP).** In: *International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2015* São Paulo, SP, Brazil, October 04-09, 2015.
- SALOMÉ, J. A. D., CARDOSO, F., FARIA, R. B., PEREIRA, C. **Criticality safety analysis of IPEN/MB-01 reactor using continuous energy libraries of codes MCNP5 and Scale-Keno-VI.** In: *Top Fuel 2015*, Zurich, Switzerland, September 13-17, 2015.
- SALOMÉ, J. A. D., PEREIRA, C. **Aplicação do código MCNP5 e suas bibliotecas de energia contínua em análises de segurança de criticalidade.** In: *Segunda Semana de Engenharia Nuclear e Ciências das Radiações - SENCIR 2014* Belo Horizonte, MG, Brasil, 7 a 9 de Outubro de 2014.
- SALOMÉ, J. A. D., PEREIRA, C., ASSUNÇÃO, J. B. A., VELOSO, M. A. F., COSTA, A. L., DA SILVA, C. A. M. **Criticality safety validation of MCNP5 using continuous energy libraries.** In: *International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2013* Recife, PE, Brazil, November 24-29, 2013.