

Graiciany de Paula Barros

Combustíveis para ADS

Belo Horizonte

Junho de 2014

Graiciany de Paula Barros

Combustíveis para ADS

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. Área de concentração: Engenharia Nuclear e da Energia.

Universidade Federal Minas Gerais – UFMG

Escola de Engenharia

Departamento de Engenharia Nuclear

Orientador: Prof.Dra.Cláudia Pereira Bezerra Lima

Coorientador: Prof. Dra. Maria Auxiliadora Fortini Veloso

Belo Horizonte

Junho de 2014

Barros, Graiciany de Paula
B277c Combustíveis para ADS [manuscrito] / Graiciany de Paula Barros. — 2014.
164 f., enc.

Orientadora: Cláudia Pereira Bezerra Lima.
Coorientadora: Maria Auxiliadora Fortini Veloso.

Tese (doutorado) – Universidade Federal de Minas Gerais. Departamento
de Engenharia Nuclear.

Inclui apêndices.

Bibliografia: f.149-153.

1. Engenharia nuclear - Teses. 2. Combustíveis nucleares - Teses. 3.
Tório - Teses. I. Lima, Cláudia Pereira Bezerra . II. Veloso, Maria Auxiliadora
Fortini. III. Universidade Federal de Minas Gerais. Departamento de
Engenharia Nuclear. IV. Título.

CDU:621.039(043)

*À minha família,
pela compreensão e apoio
ao longo do período de elaboração deste trabalho.*

Agradecimentos

- À Prof. Cláudia, que nos anos de orientação, muito me ensinou e contribuiu para a execução deste trabalho e para minha formação.
- À Prof. Maria Auxiliadora, pela atenção, dedicação e apoio essenciais durante o processo de orientação.
- À minha família pelo apoio, carinho e compreensão.
- Ao Fábio, pela ajuda e apoio constantes.
- Aos colegas do DEN-UFMG, em especial ao Carlos Eduardo pela ajuda na fase final deste trabalho.
- Aos professores Ângela, Antonella e Clarysson pela amizade durante os anos de convivência.
- Aos amigos, Anderson, Júlio, Lorena, Mateus, Talita e Vivianne que estão sempre ao meu lado.
- Aos colegas da Controladoria-Geral do Estado, Ana, Fernanda, Nathália, Maria Aparecida, João Gabriel e Márcio pelo incentivo e companheirismo.

Resumo

Os *Accelerator Driven Systems* (ADS) são sistemas híbridos subcríticos em que partículas carregadas produzidas por um acelerador são usadas para induzir reações de *spallation* em algum material alvo, resultando na produção de nêutrons que são usados em um núcleo de reator subcrítico para manutenção das fissões em cadeia. Esses sistemas têm sido estudados para atuarem na transmutação de rejeitos nucleares e também na regeneração de tório. Entretanto, há uma dificuldade na utilização de tório em ADS, que é a necessidade de adição inicial de algum isótopo físsil (^{233}U ou ^{235}U) para se atingir os níveis de criticalidade necessários. Essa adição de isótopos físséis de urânio não parece ser uma opção conveniente, pois, além dos entraves tecnológicos, há a geração de rejeitos inerente a todo processo de enriquecimento. A adição de ^{233}U é ainda mais problemática, já que esse isótopo precisa ser gerado a partir do tório. Uma opção para o uso de tório sem a necessidade de inserção de ^{233}U seria utilizá-lo juntamente com rejeitos nucleares provenientes de reatores convencionais. Nesse contexto, o objetivo deste trabalho é encontrar uma configuração de combustível que torne possível a queima simultânea de tório e combustível irradiado. Aliando, dessa forma, uma solução para a redução dos rejeitos nucleares à utilização das extensas reservas de tório. Foram utilizados os códigos computacionais MCNPX 2.6.0 (MCNPX/CINDER) e Monteburns 2.0 (MCNP5/ORIGEN 2.1) para simular os aspectos neutrônicos dos combustíveis estudados. Os resultados obtidos indicaram uma possível configuração de combustível para ADS em que foi possível regenerar tório, sem adição inicial de urânio, e ao mesmo tempo queimar rejeitos radioativos.

Palavras-chaves: ADS; Tório; MCNPX; Monteburns; Reprocessamento GANEX.

Abstract

Accelerator Driven Systems (ADS) are subcritical hybrid systems in which charged particles produced by an accelerator are used to induce spallation reactions in some target material, resulting in the production of neutrons that are used in a subcritical reactor core to maintain the fission chain. These systems have been studied for transmutation of nuclear waste and for thorium regeneration. However, there is a difficulty in the use of thorium in ADS, which is the need to adding some fissile isotope (^{233}U ou ^{235}U) to reach the criticality necessary. This addition of fissile isotopes of uranium is not a good option due to its technological difficulties and waste generation inherent in every enrichment process. The addition of ^{233}U is even more problematic, since this isotope needs to be generated from ^{232}Th . One option for the use of thorium without the addition of ^{233}U consists in using thorium with nuclear waste from conventional reactors. In this context, the aim of this work is to establish a fuel configuration which simultaneously turns possible the thorium regeneration and the incineration of spent fuel. In order to simulate the neutronic aspects of the studied fuels, the computational codes MCNPX 2.6.0 (MCNPX/CINDER) and Monteburns 2.0 (MCNP5/ORIGEN 2.1) were used. The results indicate a possible configuration of ADS fuel that allows regeneration of thorium and incinerating radioactive waste.

Key-words: ADS; Thorium; MCNPX; Monteburns; Ganex process.

Lista de ilustrações

Figura 1 – Visão esquemática do sistema proposto por Bowman <i>et al.</i>	38
Figura 2 – Visão esquemática do sistema proposto por Rubbia <i>et al.</i>	39
Figura 3 – Descrição esquemática de uma reação de <i>spallation</i> seguida de evaporação ou fissão.	41
Figura 4 – Seção de choque microscópica de <i>spallation</i> para o ^{208}Pb e para o ^{209}Bi	42
Figura 5 – Seções de choque microscópicas para o ^{208}Pb	46
Figura 6 – Seções de choque microscópicas para o ^{209}Bi	47
Figura 7 – Ciclo $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$	57
Figura 8 – Esquema simplificado do reprocessamento GANEX.	61
Figura 9 – Formação de Pu e actínídeos menores em reatores nucleares.	62
Figura 10 – História de vida de um nêutron interagindo com um meio material.	65
Figura 11 – Processo de queima no código MCNPX 2.6.0.	67
Figura 12 – Interações do Monteburns com o MCNP e ORIGEN2.	69
Figura 13 – Representação esquemática do cilindro e feixe simulados.	74
Figura 14 – Geometria do ADS simulado.	81
Figura 15 – Espectros de energia dos nêutrons para a fonte de prótons e para a fonte de nêutrons.	83
Figura 16 – Diferença entre os espectros gerados pela fonte de prótons e pela fonte de nêutrons.	83
Figura 17 – Configuração radial do sistema $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% ^{233}\text{UO}_2$	86
Figura 18 – Configuração axial do sistema $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% ^{233}\text{UO}_2$	86
Figura 19 – Configuração radial do sistema composto de barras com $\text{ThO}_2 + 15\% ^{233}\text{UO}_2$ e barras com combustível queimado.	89
Figura 20 – Configuração axial do sistema composto de barras com $\text{ThO}_2 + 15\% ^{233}\text{UO}_2$ e barras com combustível queimado.	89
Figura 21 – Configuração radial do sistema abastecido com barras de ThO_2 e barras de combustível reprocessado.	94
Figura 22 – Configuração axial do sistema abastecido com barras de ThO_2 e barras de combustível reprocessado.	95
Figura 23 – Produção média de nêutrons por unidade de energia e por partícula incidente.	99
Figura 24 – Espectro de energia dos nêutrons produzidos nos alvos.	101
Figura 25 – Evolução do fator de multiplicação para o combustível 1.	102
Figura 26 – Diferença entre os valores de k obtidos com o Monteburns e com o MCNPX.	105
Figura 27 – Espectro de energia dos nêutrons no combustível 1.	106

Figura 28 – Diferença entre os espectros de energia obtidos com o Monteburns e com o MCNPX.	106
Figura 29 – Variação isotópica do ^{232}Th para os códigos MCNPX e Monteburns. . .	107
Figura 30 – Seções de choque microscópica para o ^{232}Th	108
Figura 31 – Diferença entre as variações isotópicas do ^{232}Th (MCNPX - Monteburns).108	
Figura 32 – Variação isotópica do ^{233}Pa para os dois códigos (MCNPX - Monteburns).109	
Figura 33 – Seções de choque microscópicas para o ^{233}Pa	110
Figura 34 – Diferença entre as variações isotópicas do ^{233}Pa (MCNPX - Monteburns).111	
Figura 35 – Variação isotópica do ^{233}U para os códigos MCNPX e Monteburns. . .	111
Figura 36 – Diferença entre as variações isotópicas do ^{233}U (MCNPX - Monteburns).113	
Figura 37 – Evolução do fator de multiplicação efetivo para o combustível 2.	114
Figura 38 – Diferença entre os valores k_{eff} obtidos com o combustível 1 e com o combustível 2.	116
Figura 39 – Espectro de energia dos nêutrons no combustível 2.	117
Figura 40 – Variação isotópica do ^{232}Th nas barras de tório.	117
Figura 41 – Variação isotópica do ^{233}Pa nas barras de tório.	118
Figura 42 – Variação isotópica do ^{233}U nas barras de tório.	119
Figura 43 – Variação isotópica do ^{235}U nas barras de combustível queimado.	120
Figura 44 – Variação isotópica do ^{238}U nas barras de combustível queimado.	120
Figura 45 – Variação isotópica do plutônio nas barras de combustível queimado . .	121
Figura 46 – Evolução dos fatores de multiplicação para as diluições em 53% de tório e em 53% de urânio.	123
Figura 47 – Seções de choque microscópicas de fissão para o ^{232}Th e para o ^{238}U . .	124
Figura 48 – Diferença entre os fatores de multiplicação obtidos com o Monteburns e com o MCNPX.	125
Figura 49 – Espectro de energia dos nêutrons no combustível 3 para a diluição com tório.	130
Figura 50 – Espectro de energia dos nêutrons no combustível 3 para a diluição com urânio.	130
Figura 51 – Variação isotópica do ^{232}Th nas barras de tório para os códigos MCNPX e Monteburns.	131
Figura 52 – Variação isotópica do ^{233}Pa nas barras de tório para os códigos MCNPX e Monteburns.	132
Figura 53 – Variação isotópica do ^{233}U nas barras de tório para os códigos MCNPX e Monteburns.	133
Figura 54 – Variação isotópica do ^{235}U nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	134
Figura 55 – Variação isotópica do ^{238}U nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	134

Figura 56 – Variação isotópica do ^{232}Th nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	135
Figura 57 – Variação isotópica do ^{233}U nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	136
Figura 58 – Variação isotópica do ^{237}Np nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	137
Figura 59 – Variação isotópica do ^{238}Np nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	137
Figura 60 – Variação isotópica do ^{242}Cm nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	139
Figura 61 – Variação isotópica do ^{244}Cm nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	139
Figura 62 – Variação isotópica do ^{245}Cm nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	140
Figura 63 – Variação isotópica do ^{241}Am nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	141
Figura 64 – Variação isotópica do ^{243}Am nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	141
Figura 65 – Variação isotópica do ^{238}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	142
Figura 66 – Variação isotópica do ^{239}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	142
Figura 67 – Variação isotópica do ^{240}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	143
Figura 68 – Variação isotópica do ^{241}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	143
Figura 69 – Variação isotópica do ^{242}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.	144

Lista de tabelas

Tabela 1 – Principais características do Linac LAMPF.	51
Tabela 2 – Principais características do ciclotron PSI.	53
Tabela 3 – Reservas mundiais de tório estimadas.	57
Tabela 4 – Modelos físicos simulados.	77
Tabela 5 – Dados da produção de nêutrons no alvo de chumbo	79
Tabela 6 – Parâmetros do sistema para a simulação do combustível 1.	87
Tabela 7 – Composição do combustível de UO_2 , com 3,1% de enriquecimento inicial, após 33.000 MWd/T	88
Tabela 8 – Parâmetros do sistema para a simulação do combustível 2.	88
Tabela 9 – Composição do combustível (normalizada) após o reprocessamento GANEX.	90
Tabela 10 – Composição do combustível reprocessado diluído em ThO_2	92
Tabela 11 – Composição do combustível reprocessado diluído em UO_2	93
Tabela 12 – Parâmetros do sistema para a simulação do combustível 3.	94
Tabela 13 – Resultados obtidos nas simulações de um alvo de chumbo utilizando diversos modelos.	97
Tabela 14 – Produção de nêutrons para cada próton incidente de 1 GeV.	100
Tabela 15 – k_{eff} e desvio padrão calculados pelo MCNPX para o combustível 1. . .	103
Tabela 16 – k e desvio padrão calculados pelo Monteburns para o combustível 1. . .	104
Tabela 17 – Variação isotópica no combustível 1.	113
Tabela 18 – k_{eff} e desvio padrão calculados pelo MCNPX para o combustível 2. . .	115
Tabela 19 – Variação isotópica no combustível 2 - barras de tório.	119
Tabela 20 – Variação isotópica no combustível 2 - barras de combustível queimado.	122
Tabela 21 – Fatores de multiplicação efetivos para cada diluição calculados pelo MCNPX.	122
Tabela 22 – Fatores de multiplicação para cada diluição calculados pelo Monteburns.	122
Tabela 23 – Resumo dos valores de k obtidos para as diluições em 53%.	124
Tabela 24 – k_{eff} e desvio padrão calculados pelo MCNPX para a diluição em 53% de tório.	126
Tabela 25 – k_{eff} e desvio padrão calculados pelo MCNPX para a diluição em 53% de urânio.	127
Tabela 26 – k e desvio padrão calculados pelo Monteburns para a diluição em 53% de tório.	128
Tabela 27 – k e desvio padrão calculados pelo Monteburns para a diluição em 53% de urânio.	129

Lista de abreviaturas e siglas

ADS	Accelerator Driven System
ATW	Accelerator Transmutation of Waste
BOL	Beginning of life
CEA	Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
CEM	Cascade-Exciton Model
CERN	Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire
ECR	Electron Cyclotron Resonance
ENDF	Evaluated Nuclear Data File
ENEA	European Nuclear Energy Agency
EVAP	Evaporação
GANEX	Group ActiNide EXtraction
GEM	Generalized Evaporation Mode
IAEA	International Atomic Energy Agency
INC	Cascata Intranuclear
INCL	Liège Intranuclear Cascade
k	Fator de multiplicação
k_{eff}	Fator de multiplicação efetivo
LAHET	The Los Alamos High Energy Transport Code
LAMPF	Los Alamos Meson Factory
LWR	Light Water Reactor
MCNP	Monte Carlo N-Particle code
MCNPX	Monte Carlo N-Particle eXtended code
MTA	Materials Testing Accelerator

NEA	Nuclear Energy Agency
ORNL	Oak Ridge National Laboratory
RAL	Rutherford Appleton Laboratory
RMCCS	Recommended Monte Carlo Cross Section
SCDTL	Side-coupled Linac
SDEF	General Source Definition

Lista de símbolos

q'''	Densidade de potência
ϕ	Fluxo
σ	Seção de choque microscópica
η	Fator de reprodução do sistema
ν	Número de nêutrons produzidos por fissão

Sumário

I	Introdução	23
1	Introdução	25
II	Desenvolvimento	29
2	Revisão bibliográfica	31
2.1	<i>Accelerator Driven Systems</i>	31
2.1.1	O possível papel do ADS	31
2.2	Cronologia	32
2.3	Componentes de ADS	34
2.3.1	O espectro de nêutrons	34
2.3.2	O combustível	36
2.3.2.1	A proposta de Bowman <i>et al.</i>	37
2.3.2.2	A proposta de Rubbia <i>et al.</i>	38
2.3.3	O alvo para <i>spallation</i>	40
2.3.3.1	Interação de prótons com a matéria	43
2.3.4	Refrigerante	45
2.3.5	O acelerador de partículas	48
2.3.5.1	Situação tecnológica atual do acelerador linear	50
2.3.5.2	Situação tecnológica atual do ciclotron	51
2.3.5.3	Requisitos para os aceleradores usados em ADS	54
2.3.5.4	Perspectivas para aceleradores de altas energias para ADS	54
2.3.5.5	Exemplos de propostas de aceleradores de altas intensidades	56
2.4	O papel dos ADS nos ciclos de combustíveis	56
2.4.1	O ciclo tório-urânio	56
2.4.1.1	A utilização de ADS para regeneração de tório	58
2.4.2	Reciclagem de combustível	59
2.4.2.1	A utilização de ADS para transmutação de rejeitos	61
3	Metodologia	63
3.1	Código MCNPX	64
3.2	Monteburns - Acoplamento entre os códigos MCNP e ORIGEN2	68
3.3	Análise da produção de nêutrons em alvos de <i>spallation</i> utilizando o código MCNPX 2.6.0	71
3.4	Simulações dos combustíveis para ADS	80
3.4.1	Combustível 1: $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$	85

3.4.2	Combustível 2: barras de $\text{ThO}_2 + 15\% \text{}^{233}\text{UO}_2$ e barras de combustível queimado	87
3.4.3	Combustível 3: barras de ThO_2 e barras de combustível reprocessado	90
4	Resultados e discussões	97
4.1	Resultados das simulações de alvos de <i>spallation</i>	97
4.1.1	Avaliação dos modelos físicos para a descrição de reações de <i>spallation</i> disponíveis no MCNPX 2.6.0	97
4.1.2	Análise da eficiência energética do feixe de prótons	98
4.1.3	Análise da produção de nêutrons em diversos materiais	99
4.2	Resultados das simulações dos combustíveis para ADS	101
4.2.1	Combustível 1: ${}^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{}^{233}\text{UO}_2$	102
4.2.1.1	Evolução do combustível	107
4.2.2	Combustível 2: barras de $\text{ThO}_2 + 15\% \text{}^{233}\text{UO}_2$ e barras de combustível queimado	113
4.2.2.1	Evolução do combustível	117
4.2.3	Combustível 3: barras de ThO_2 e barras de combustível reprocessado	122
4.2.3.1	Evolução do combustível	131
III	Conclusões	145
5	Conclusões	147
5.0.4	Simulações de alvos de <i>spallation</i>	147
5.0.5	Simulações dos núcleos subcríticos	147
	Referências	151
	Apêndices	157
	APÊNDICE A – Entradas utilizadas	159
	APÊNDICE B – Artigos Publicados	165

Parte I

Introdução

1 Introdução

Os *Accelerator Driven Systems* (ADS) são sistemas híbridos subcríticos em que partículas carregadas produzidas por um acelerador são usadas para induzir reações de *spallation* em algum material alvo, resultando na produção de nêutrons que são usados em um núcleo de reator subcrítico para manutenção das fissões em cadeia. Esses sistemas têm sido estudados para atuarem na transmutação de rejeitos nucleares e também na regeneração de tório.

O interesse pelos ADS tem sido retomado nos últimos anos. Os pioneiros nessa retomada foram [Furukawa et al. \(1982\)](#), [Bowman et al. \(1992\)](#) e [Carminati et al. \(1993\)](#). Ideias semelhantes foram propostas há mais de 50 anos por [Lewis \(1952\)](#), [Lawrence, MacMillan e Alvarez \(1960\)](#), [Atta, Lee e Heckrotte \(1976\)](#), [Oak Ridge National Laboratory \(1977\)](#). Na época esses projetos não foram levados adiante devido à falta de incentivo econômico e também devido às dificuldades tecnológicas envolvendo os aceleradores de partículas necessários para tais projetos.

Como dito anteriormente, os ADS vêm sendo estudados para a queima de rejeitos nucleares provenientes de reatores convencionais. Dentre esses estudos destacam-se os de [Tuyle et al. \(1993\)](#), [Bowman \(1998\)](#), [Salvatores, Slessarev e Uematsu \(1994\)](#), [Takizuka et al. \(1991\)](#), [Yapici, Genc e Demir \(2008\)](#). Um dos problemas do uso da energia nuclear são os rejeitos nucleares de alta radiotoxicidade gerados durante a produção de energia. O principal desafio é encontrar métodos de diminuição da radiotoxicidade desses rejeitos, além, é claro, de métodos de deposição segura. A reutilização de combustível queimado em um ADS geraria energia e ainda reduziria os problemas associados aos rejeitos nucleares.

Há também estudos, como os de [Carminati et al. \(1993\)](#), [David et al. \(2000\)](#), [Ismail et al. \(2008\)](#), que propõem a utilização de ADS para a produção de combustível físsil a partir de isótopos férteis, utilizando como combustível misturas baseadas em tório para a produção de ^{233}U ou, em menor escala, urânio empobrecido para a conversão de ^{238}U em ^{239}Pu . O interesse no ciclo Th/U deve-se principalmente às extensas reservas de tório conhecidas e a necessidade de se substituir a longo prazo, ainda que parcialmente, o uso de urânio por outro combustível. O tório natural é constituído de ^{232}Th , um isótopo fértil, que por meio de uma reação de captura neutrônica gera o isótopo físsil ^{233}U .

A principal dificuldade encontrada na utilização de tório em ADS é a necessidade de adição inicial de algum isótopo físsil (^{233}U ou ^{235}U), uma vez que, mesmo com a presença dos nêutrons provenientes da fonte externa, os valores de criticalidade atingidos em um ADS abastecido apenas com tório natural seriam muito baixos. Por essa razão, em geral se propõe a utilização de tório com inserção de ^{233}U , como exemplificado por [David et](#)

al. (2000), Ishimoto, Ishibashi e Tenzou (2002), para atingir os níveis de criticalidade adequados. Entretanto, esta adição de isótopos físseis de urânio não parece ser uma opção conveniente, pois além dos entraves tecnológicos, há a geração de rejeitos inerente a todo processo de enriquecimento. A adição de ^{233}U é ainda mais problemática, já que esse isótopo precisa ser gerado a partir do tório.

Uma opção para o uso de tório sem a necessidade de inserção de ^{233}U seria utilizá-lo juntamente com rejeitos nucleares provenientes de *Light Water Reactor* (LWR). Dessa forma, o percentual de isótopos físseis contidos nesses rejeitos elevaria a criticalidade do sistema sem a necessidade de adição de ^{233}U ao tório. O uso simultâneo de tório e de combustível queimado garantiria o melhor aproveitamento das extensas reservas de tório aliado à diminuição da radiotoxicidade dos rejeitos radioativos. O uso simultâneo de tório e plutônio têm sido objeto de vários estudos, dentre eles os de Rubbia et al. (1995a), Yapici e Bayrak (2005), Sahin et al. (2006), Schram e Klaassen (2007), Sahin et al. (2009), Trelue, Bathke e Sadasivan (2011), algumas dessas propostas utilizam sistemas subcríticos como o ADS e indicam a viabilidade do uso combinado de tório e plutônio nesses sistemas.

Neste contexto de busca pela redução dos rejeitos radioativos gerados nos reatores convencionais e de necessidade de melhor aproveitamento das reservas de tório, o objetivo geral deste trabalho foi encontrar uma configuração de combustível que torne possível a queima simultânea de combustível irradiado e de tório. Aliando, dessa forma, uma solução para a redução dos rejeitos nucleares à utilização das extensas reservas de tório. Neste estudo optou-se por não utilizar apenas plutônio e tório, utilizou-se ou tório com combustível irradiado sem nenhum reprocessamento, ou tório com combustível reprocessado em que o plutônio foi extraído juntamente com os actínídeos menores. Esse aspecto favorece a não-proliferação nuclear e diferencia este estudo de muitos outros retratados pela literatura específica.

Este trabalho se iniciou com simulações de alvos de *spallation* utilizando o código MCNPX 2.6.0. Essas simulações tiveram como objetivos avaliar os modelos físicos para a descrição das reações de *spallation* presentes no código, identificar qual a faixa de energia do feixe de prótons é mais eficiente na produção de nêutrons por reações de *spallation* e também verificar a produção média de nêutrons por próton incidente para diversos tipos de materiais alvo. Essas simulações orientaram a escolha do alvo utilizado nas simulações dos combustíveis.

Foram utilizados os códigos computacionais MCNPX 2.6.0 (MCNPX/CINDER) e Monteburns 2.0 (MCNP5/ORIGEN 2.1) para simular os aspectos neutrônicos dos combustíveis estudados. O primeiro combustível avaliado foi a mistura $\text{ThO}_2 + 15\% \text{}^{233}\text{UO}_2$ para confirmar a necessidade de adição de ^{233}U ao tório e para comparar com os outros combustíveis estudados. Posteriormente, estudou-se um combustível em que algumas barras foram abastecidas com combustível queimado com composição equivalente a de

um combustível proveniente de um LWR e as demais barras foram abastecidas com ThO_2 + 15% $^{233}UO_2$. O objetivo do estudo desse combustível foi avaliar os efeitos da inserção de combustível queimado em um núcleo abastecido com tório. No terceiro combustível analisado algumas barras foram abastecidas com combustível reprocessado pelo método *Group ActiNide EXtraction* (GANEX) (MIGUIRDITCHIAN et al., 2008; WARIN, 2010), que permite a remoção simultânea dos actínídeos menores e plutônio, e as demais barras foram abastecidas com tório. O objetivo da simulação do combustível 3 foi investigar as vantagens de se reprocessar o combustível queimado antes de seu uso no ADS.

Os resultados obtidos indicaram uma configuração de combustível para ADS em que foi possível regenerar tório, sem adição inicial de urânio, e ao mesmo tempo queimar rejeitos radioativos. No cenário atual, em que estudos de combustíveis a base de tório ocupam cada vez mais destaque na literatura específica, propostas para o uso de tório, sem enriquecimento prévio, aliado a queima de rejeitos aparecem como alternativas para o melhor aproveitamento das reservas de tório aliado à diminuição dos problemas com os rejeitos nucleares.

Esta tese está dividida em cinco capítulos. O problema abordado e os objetivos deste trabalho foram descritos neste capítulo. No capítulo 2, são abordados cada um dos componentes de um ADS e as propostas mais relevantes para cada um desses componentes. No capítulo 3, é descrita a metodologia utilizada. No capítulo 4, são apresentados e discutidos os resultados obtidos a partir das simulações realizadas e, finalmente, no capítulo 5, são apresentadas as principais conclusões deste trabalho.

Parte II

Desenvolvimento

2 Revisão bibliográfica

Neste capítulo serão descritos cada um dos componentes de um ADS (alvo de *spallation*, moderador, refrigerante e acelerador de partículas) e as propostas mais relevantes para cada um desses componentes. A análise das propostas existentes para tais componentes foi utilizada para a definição dos parâmetros do ADS simulado neste trabalho.

2.1 *Accelerator Driven Systems*

Os ADS representam uma forma atrativa para a transmutação de rejeitos nucleares e também para a regeneração de tório. Conceitualmente, estes sistemas consistem no acoplamento entre um acelerador de partículas e um núcleo de reator subcrítico. Quando comparados aos reatores críticos, os ADS apresentam muitas vantagens, dentre elas: a baixa produção de actínídeos de vida-média longa, a eficiência na queima de actínídeos menores e, além disso, são sistemas de baixa pressão. ([World Nuclear Association, 2011](#)).

Em contraste aos reatores convencionais críticos, os quais necessitam manter as reações em cadeia no nível de criticalidade, os ADS possuem uma fonte suplementar de nêutrons podendo operar em condições de subcriticalidade. Esses nêutrons suplementares provêm de reações de *spallation* induzidas por prótons (ou outras partículas carregadas) altamente energéticas produzidos por um acelerador de partículas e dirigidos até algum material alvo com alta seção de choque para tais reações. As reações de *spallation* ocorridas no material alvo liberam uma grande quantidade de partículas, dentre elas os nêutrons que serão usados no núcleo subcrítico e funcionarão como uma fonte externa de nêutrons responsável pela manutenção das fissões em cadeia.

Tanto a geometria e a composição de um ADS quanto o fluxo de nêutrons gerados por *spallation* são ajustados de forma que esses sistemas sejam mantidos em condição de subcriticalidade durante todo o período de operação. Essa condição os torna sistemas de fácil controle. Além disso, sendo a fonte suplementar responsável pela continuidade das fissões em cadeia, seu desligamento implicará na interrupção das reações em cadeia, proporcionando elevados padrões de segurança.

2.1.1 O possível papel do ADS

Comparativamente aos reatores críticos, os ADS têm duas características específicas bastante atraentes:

1. Se bem projetados, eles previnem qualquer possibilidade de acidente de criticalidade.

Outra vantagem da subcriticalidade é a possibilidade de uso de combustíveis que não possuem a razão $\sigma_{\text{fissão}}/\sigma_{\text{captura}}$ suficientemente alta para manter os níveis de criticalidade necessários em reatores convencionais. (TRELLUE, 2003).

2. A condição de subcriticalidade associada à fonte externa fornece nêutrons adicionais que podem ser usados para a produção de ^{233}U e ^{239}Pu . Outra possibilidade para o uso dos nêutrons adicionais é a transmutação de produtos de fissão de longa-vida presentes no combustível queimado proveniente de reatores convencionais. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

Em princípio, acidentes de criticalidade como o de Chernobyl não ocorrem em um ADS. Entretanto, isso somente é verdade enquanto se monitora o valor efetivo da reatividade. O monitoramento não deve ser feito levando-se em conta apenas a energia do feixe de prótons e a energia de saída do reator, uma vez que um aumento da reatividade neste tipo de sistema subcrítico pode ser acompanhado por um acúmulo de nêutrons provenientes da fonte de *spallation* em determinados pontos do combustível. Esse aumento local da densidade de nêutrons pode não aumentar a potência média de saída (pode inclusive levar a um decréscimo), mas pode ocasionar picos de potência no sistema. Tal situação pode levar o sistema à condição de criticalidade. Tendo em vista essa questão, torna-se necessário um modo efetivo de monitoramento da reatividade neste tipo de sistema. Deve-se monitorar o fluxo de nêutrons em diversas regiões do sistema. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

Para baixos níveis de subcriticalidade (até $\approx 0,98$) a fração de nêutrons atrasados não tem nenhuma influência sobre a segurança do reator, uma vez que a realimentação do sistema devido aos nêutrons atrasados não será suficiente para levar o sistema a criticalidade. Da mesma forma, os coeficientes de temperatura possuem influência reduzida e podem até mesmo alcançar valores positivos. Entretanto, coeficientes excessivamente negativos devem ser evitados de forma que a subcriticalidade possa ser garantida em todos os níveis de potência. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

2.2 Cronologia

O desenvolvimento dos ADS vem ao encontro de questões atuais do desenvolvimento do potencial nuclear. Esses sistemas permitem a geração de potência e a produção de combustível aliado a altos padrões de segurança, garantidos pela condição de subcriticalidade. Além disso, são uma opção atraente para a redução dos problemas com combustível irradiado em LWRs, já que podem ser usados para a transmutação de rejeitos.

Desde a década de 1940, já se sabia que o bombardeio de urânio por prótons ou deutérios de alta energia produziria um grande número de nêutrons e que esses nêutrons

poderiam ser usados para a conversão de material fértil em fissil através de reações nucleares. Em 1941, Glenn Seaborg produziu pela primeira vez plutônio artificial utilizando um acelerador de partículas. ([The European Technical Working Group on ADS, 2001](#)).

Durante o período de 1950 a 1954, o programa *Materials Testing Accelerator* (MTA) do laboratório Lawrence Livermore investigou em detalhes o uso de aceleradores para a produção de material fissil. Quase que simultaneamente, no Canadá, Lewis estudou a capacidade de conversão e regeneração de combustível por aceleradores e iniciou medidas da taxa de produção de nêutrons por *Spallation* pelo ciclotron de McGill. ([The European Technical Working Group on ADS, 2001](#)).

Em 1960 foi patenteado um acelerador para produção de materiais físséis por Lawrence *et al.*. A proposta desse sistema era a utilização de urânio natural e tório para a produção de ^{239}Pu e ^{233}U , respectivamente. Estudos posteriores (1975-1988) feitos pelo programa *Fertile-to-Fissile Conversion (FERFICON)* - uma colaboração de vários laboratórios - investigou a dependência com a energia, de até 800 MeV, da eficiência de conversão fértil-fissil usando os materiais e as geometrias mais comumente utilizados. ([The European Technical Working Group on ADS, 2001](#)).

Um conceito relativamente realístico de um ADS, em que a segurança e transmutação de rejeitos nucleares são os principais objetivos, foi desenvolvido por [Tuyle et al. \(1993\)](#) no *Brookhaven National Laboratory*.

O primeiro projeto detalhado de um *ADS* para a transmutação utilizando nêutrons térmicos foi apresentado por [Bowman et al. \(1992\)](#) do grupo Los Alamos, introduzindo o nome *The Accelerator Transmutation of Waste (ATW)*. A proposta consiste em um ADS abastecido e refrigerado por sais fundidos, operando no ciclo Th/U.

Em 1993 um grupo de cientistas do *Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire* (CERN) liderado por C. Rubbia e F. Carminati apresentou os conceitos básicos do chamado *Energy Amplifier* ([CARMINATI et al., 1993](#); [RUBBIA et al., 1995b](#)). Esse sistema ocupa ainda um lugar de destaque dentro da literatura especializada.

O *Energy Amplifier* é um sistema nuclear subcrítico baseado no ciclo Th-U e consiste em um acelerador de prótons de intensidade igual a 1 GeV, diretamente acoplado a um núcleo de reator subcrítico refrigerado a chumbo e abastecido com uma mistura baseada em tório. O objetivo deste sistema é a produção de energia com baixa produção de actínídeos menores e de produtos de fissão de meia-vida longa. ([The European Technical Working Group on ADS, 2001](#)).

2.3 Componentes de ADS

Inúmeras propostas têm sido feitas para os ADS, com variações nos componentes desses sistemas. Os principais itens para o projeto desses sistemas são:

- 1) O tipo de espectro de nêutrons: rápido ou térmico.
 - 2) O tipo de combustível: sólidos (metálicos, óxidos, nitretos, etc.) ou líquidos (fluoretos, cloretos).
 - 3) O tipo de alvo de *spallation*: chumbo, chumbo-bismuto, tungstênio ou sal fundido.
 - 4) A natureza do refrigerante: gás, metal fundido ou sal fundido.
 - 5) O acelerador de partículas: ciclotrons ou aceleradores lineares.
- A seguir serão detalhados cada um desses itens.

2.3.1 O espectro de nêutrons

Já foi apontado por [Carminati et al. \(1993\)](#) a existência de nítidas limitações para o fluxo de nêutrons em ADS que operam no ciclo Th/U com nêutrons de energias térmicas. Segundo Carminati, para nêutrons térmicos ($E = 0,025$ eV), um ADS operando com uma densidade de potência $q''' = 15 \text{ W g}^{-1}$ têm fluxo ótimo igual a $\phi = 2,7 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Enquanto que para o mesmo valor de densidade de potência, o fluxo de nêutrons em um ADS que opera na faixa rápida do espectro é aproximadamente 20 vezes maior. Na prática o valor do fluxo depende dos materiais constituintes do sistema e da energia dos nêutrons, a qual depende da fonte emissora de nêutrons e da presença ou não de material moderador.

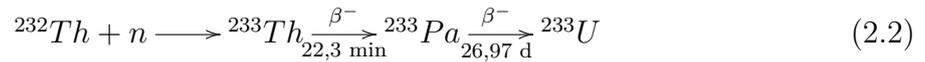
Para se comparar, por exemplo, um ADS que atua no ciclo (Th/U) operando em distintas regiões do espectro, é preciso saber que trata-se de uma competição entre as seções de choque de absorção (σ_a) e de fissão (σ_f), já que para a conversão/regeneração é necessário um valor apreciável do fator de reprodução do sistema. O fator de reprodução (η) de um sistema nuclear é definido como sendo o número médio de nêutrons gerados por fissão para cada nêutron absorvido pelo combustível. Sendo então, dado pelo produto do número de nêutrons produzidos por fissão (ν) e a razão entre as seções de choque de fissão e de absorção:

$$\eta = \nu \frac{\bar{\sigma}_f}{\bar{\sigma}_a} \quad (2.1)$$

Em um reator térmico, conforme citado por [Carminati et al. \(1993\)](#), o valor do fator de reprodução é $\eta \approx 2,29$ para o ^{233}U , um valor muito próximo ao valor mínimo necessário ($\eta = 2$) para que ocorra regeneração. Enquanto que, de acordo com [Rubbia et al. \(1995b\)](#), para um ADS rápido tem-se $\eta \approx 2,5$. Ou seja, os sistemas térmicos apesar de apresentarem alta seção de choque de absorção, não são muito eficientes na regeneração.

Isso porque muitas das absorções não geram fissões, mas sim reações de capturas radiativas, dentre outras.

Uma questão relevante na escolha do espectro de nêutrons para sistemas abastecidos com tório é o efeito protactínio. O ^{233}U é formado quando o ^{232}Th captura um nêutron, e logo em seguida sofre dois decaimentos β^- :



A presença do protactínio impõe limites para o fluxo de nêutrons. Essa limitação ocorre em detrimento dos seguintes efeitos do protactínio:

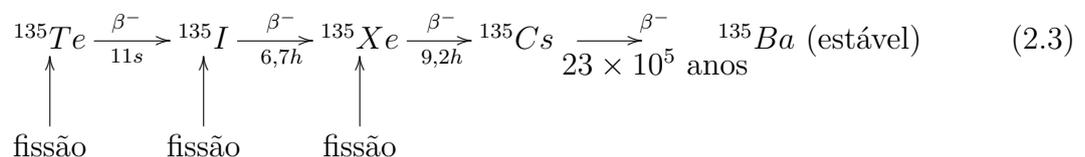
1) A seção de choque de absorção do protactínio à temperatura ambiente para nêutrons térmicos é $\sigma_a = 43$ barns e para nêutrons rápidos tem-se $\sigma_a = 1,12$ barns. Ou seja, em reatores térmicos o efeito protactínio será mais pronunciado, reduzindo consideravelmente o fluxo de nêutrons o que leva a conclusão de que o uso de um espectro rápido reduz o efeito protactínio.

O protactínio captura nêutrons, pois possui uma alta seção de choque de absorção de nêutrons na faixa térmica, mas como possui pequena seção de choque de fissão causa um decréscimo na reatividade do sistema. Além disso, quando o protactínio captura nêutrons ele deixa de decair em ^{233}U , o que também influenciará negativamente na evolução da criticalidade do sistema.

2) Após o desligamento do sistema, o ^{233}Pa acumulado decai em ^{233}U , ocasionando um aumento na reatividade e no valor do fator de multiplicação (k) que pode levar o sistema a um estado de criticalidade. Isso ocorrerá após transcorrido um tempo próximo a meia vida do ^{233}Pa , que é de cerca de um mês. Sendo, então, necessárias ações corretivas através da inserção de reatividade negativa. Dessa forma, as vantagens no quesito segurança passiva de sistemas subcríticos serão reduzidas.

Outro efeito que deve ser levado em conta na escolha do espectro de nêutrons a ser utilizado é o efeito xenônio. O ^{135}Xe é um dos mais importantes venenos em sistemas nucleares, devido a sua alta seção de choque de absorção para nêutrons térmicos, já para nêutrons rápidos os valores de seção de choque de absorção são menores.

O isótopo ^{135}Xe é formado diretamente pela fissão e pelo decaimento do ^{135}I , sendo este formado pela fissão e pelo decaimento do ^{135}Te , que também é produzido durante a fissão. Esses processos e suas meias-vidas estão esquematizados a seguir:



Como o decaimento do ^{135}Te para o ^{135}I é muito rápido, pode-se supor que todo o ^{135}I é produzido diretamente pela fissão. Como as meias vidas do ^{135}Xe e do ^{135}I são curtas e a seção de choque de absorção do xenônio é muito grande, as concentrações destes isótopos em todos os reatores atingirão rapidamente a saturação ou valor de equilíbrio. Essa situação de equilíbrio também ocorre em ADS. Para nêutrons térmicos e em situação de equilíbrio, a fração de nêutrons capturados pelo ^{135}Xe é de 0.021 para um fluxo de $\phi = 2,7 \times 10^{13} n \text{ cm}^{-2} s^{-1}$. (RUBBIA et al., 1995b).

Embora a criação do xenônio pelas fissões e sua transmutação por absorção de nêutrons terminem após o desligamento do sistema, esse isótopo continua a ser produzido pelo decaimento do iodo presente. Assim, a concentração do xenônio, após o desligamento do sistema, cresce e depois começa a decrescer devido ao seu decaimento radioativo. O máximo da concentração ocorre depois de 10 a 12 horas do desligamento do sistema. Esse comportamento do crescimento da reatividade provocado pela redução do xenônio é de pouca importância para sistemas operados com valores baixos do fluxo, mas pode trazer alguns problemas para os sistemas que operam com alto valor do fluxo. Se em algum instante após o desligamento, a reatividade positiva disponível pela retirada das barras de controle for menor que a reatividade negativa associada ao xenônio, o sistema não poderá ser religado até que o xenônio tenha decaído (tempo morto).

Todos esses problemas gerados pelo ^{135}Xe são praticamente inexistentes em ADS rápidos. Nesses sistemas os efeitos do xenônio e do protactínio no fluxo de nêutrons são bem menores do que em um ADS térmico. Isso porque as seções de choque de absorção desses dois venenos presentes no combustível são bem maiores para nêutrons térmicos, o que torna favorável a utilização de nêutrons rápidos, pois a menor redução no fluxo de nêutrons implica uma maior capacidade de regeneração.

2.3.2 O combustível

Os ADS podem operar tanto com combustíveis baseados em tório, possibilitando a regeneração de combustível, quanto com transurânicos para a transmutação de combustível proveniente de reatores convencionais. Essas possibilidades serão abordadas na seção 2.4. Outros aspectos referentes ao combustível envolvem a escolha de operação com combustíveis sólidos ou líquidos, uma vez que há propostas de ADS operando com combustíveis sólidos e outras com sais fundidos.

Combustíveis sólidos, especialmente os óxidos, têm a vantagem de serem bem conhecidos e documentados pela literatura por serem utilizados em LWRs. Entretanto, possuem o problema do progressivo envenenamento por produtos de fissão, uma vez que não é possível a retirada desses produtos de fissão durante a operação. Como os ADS objetivam a regeneração/transmutação, a economia de nêutrons é de extrema importância e uma baixa disponibilidade de nêutrons implica em uma menor taxa de regeneração/transmutação.

Uma das principais propostas de utilização de combustíveis sólidos foi feita por [Rubbia et al. \(1995b\)](#). Essa proposta será descrita posteriormente.

Por outro lado, os combustíveis líquidos, tais como os sais fundidos, permitem uma contínua monitoração e retirada dos produtos de fissão. Garantindo maior disponibilidade de nêutrons para a regeneração/transmutação do combustível, o que torna os combustíveis líquidos uma opção atraente. As desvantagens do uso de sal fundido são o alto índice de corrosão causada pelos sais e também o fato de o combustível circular fora do núcleo levando consigo emissores de nêutrons atrasados, tornando radioativos os tubos de circulação o que aumenta a necessidade de manutenção para cumprir os requisitos de radioproteção. Dentre as propostas de combustíveis líquidos possui relevância o sistema a sal fundido de [Bowman et al. \(1992\)](#), do grupo Los Alamos. Apesar de certos desafios tecnológicos, como, por exemplo, o controle da corrosão, sais fundidos aparecem como uma opção promissora para uma nova geração de reatores nucleares, subcríticos ou não.

A retomada do interesse em ADS origina-se, principalmente, das propostas feitas por [Bowman et al.](#) e [Rubbia et al.](#). O primeiro conceitua um sistema subcrítico abastecido com sal fundido operando na faixa térmica, enquanto que o segundo propõe um sistema subcrítico rápido abastecido com combustível sólido e refrigerado a chumbo. Praticamente todas as propostas atuais derivam, de certo modo, dessas duas propostas primordiais.

2.3.2.1 A proposta de [Bowman et al.](#)

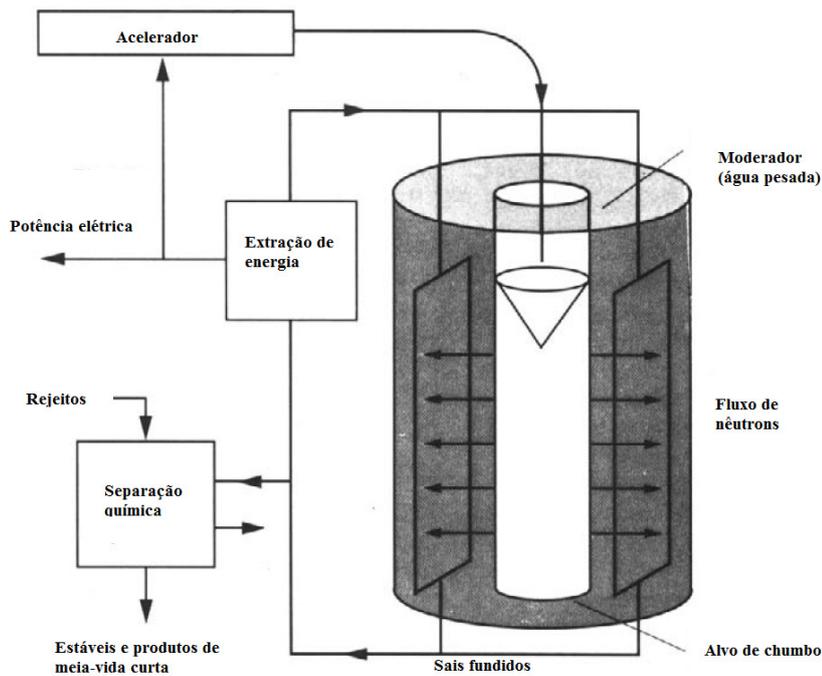
Como dito anteriormente, o sistema de [Bowman et al.](#) utiliza como combustível uma mistura de sais fundidos (fluoretos). O ciclo proposto é o Th/U e o fluxo de nêutrons térmicos atinge o valor de $10^{16} \text{nêutrons} \times \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$. Essa população de nêutrons é proveniente da fissão do ^{233}U . Nesse sistema ocorre a extração do ^{233}Pa para que este possa decair em ^{233}U sem reduzir a disponibilidade de nêutrons no sistema, já que antes de decair para o ^{233}U o protactínio pode capturar nêutrons. Essa extração é necessária devido ao efeito protactínio pronunciado na faixa térmica. O processo de retirada do protactínio só é possível devido ao uso de combustível do tipo sal fundido (uma mistura de fluoretos). ([NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003](#)).

Fluxos muito intensos como o desta proposta (da ordem de $10^{16} \text{nêutrons} \times \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$) oferecem vantagens, como por exemplo, a redução da meia-vida dos actinídeos presentes no sistema devido a grande disponibilidade de nêutrons para as reações de transmutação. Em contra partida, o conjunto de aceleradores para se alcançar fluxos tão altos é de extrema complexidade tecnológica.

A Figura 1 mostra um esquema simplificado do sistema de [Bowman et al.](#). O feixe de prótons atinge o alvo de chumbo e gera nêutrons que são moderados pela água pesada que envolve o alvo de *spallation*. O sal fundido contendo o material físsil passa pelos dois canais existentes no cilindro externo ao alvo de *spallation* (o núcleo do sistema), de forma

que os nêutrons produzidos no alvo incidam no material combustível gerando fissões e conseqüentemente calor para a produção de energia elétrica. Parte da energia gerada é utilizada para a aceleração de partículas.

Figura 1 – Visão esquemática do sistema proposto por Bowman *et al.*.



Fonte: (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

Em uma segunda proposta, Bowman sugere a possibilidade de uso de um ADS abastecido por sais fundidos para a transmutação de plutônio e produtos de fissão. Esse sistema operaria a uma potência de 750 MWt, com fluxo térmico de $2 \times 10^{14} \text{ nêutrons} \times \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ e moderado a grafita. Tal sistema seria abastecido com uma mistura de produtos de fissão, zircônio e fluoreto de plutônio obtido através da fluoretação de combustível queimado e posterior extração por sublimação do hexafluoreto de urânio. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

2.3.2.2 A proposta de Rubbia *et al.*

Em sua primeira versão, esta proposta visava principalmente a produção de energia. Nessa proposta inicial, baseada no ciclo Th-U, o carregamento inicial de combustível teria cerca de 30 toneladas e seria enriquecido em 10% de ^{233}U . A taxa de queima estimada para um período de 5 anos seria 100 GWd/ton que equivale a 10% do carregamento inicial.

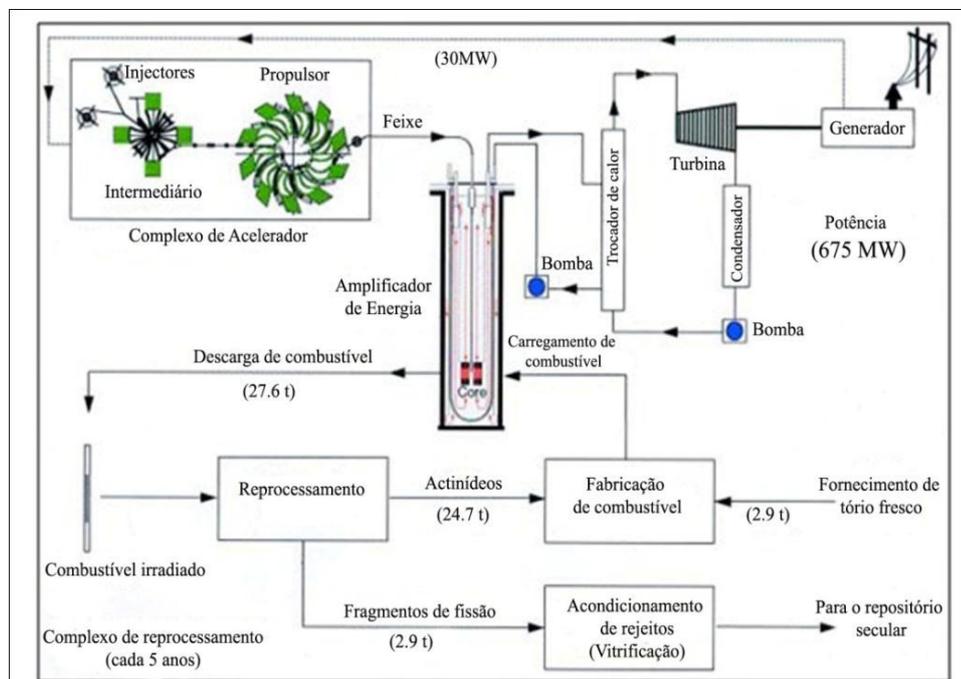
Mais tarde, as possibilidades de queima e transmutação foram analisadas, mantendo-se a opção por combustíveis sólidos. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

O sistema de aceleração de Rubbia envolve três ciclotrons trabalhando em série e acelerando prótons a uma energia de 1 GeV, com uma intensidade de ≈ 10 mA. O fator de multiplicação para este sistema subcrítico rápido é de cerca de 0,98. A potência térmica prevista é de 1500 MW (representando um ganho de 120 vezes) e a potência elétrica de 600 MW. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

A fim de não moderar os nêutrons e para obter uma potência específica da ordem de $0,5 MW l^{-1}$, a refrigeração é feita por metal líquido. Por razões neutrônicas e de segurança, o chumbo foi escolhido como refrigerante. O chumbo fundido não apresenta riscos de explosão, como ocorre com o sódio, que possui alta toxicidade química, alto índice de corrosão e alta produção de radionuclídeos por ativação neutrônica. O chumbo líquido permite manter uma baixa pressão no reator e obter uma eficiência termodinâmica elevada, devido à alta temperatura de operação. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

A Figura 2 mostra uma visão esquemática do sistema proposto por Rubbia *et al.*.

Figura 2 – Visão esquemática do sistema proposto por Rubbia *et al.*.



Fonte: (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

Outro aspecto importante da proposta de Rubbia *et al.* é a convecção natural que

ocorre devido ao grande volume de chumbo. Para que a convecção natural ocorra, são necessárias cerca de 10.000 toneladas de chumbo em um vaso de 30 metros de altura. A altura da coluna de chumbo determina a velocidade do fluxo. A altura de 30 metros é necessária para uma velocidade de fluxo suficiente para extrair o calor gerado durante a operação. Devido a convecção natural não é necessário tubulação primária evitando, assim, problemas devido a fugas nessa tubulação. A grande massa de chumbo também reduz as variações térmicas no caso de variações na intensidade do feixe proveniente do acelerador. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

No caso improvável de a temperatura do chumbo exceder em mais de 100⁰C o valor normal de operação (no caso dos trocadores de calor primários falharem, por exemplo) o aumento de volume do chumbo dentro do tubo do feixe cessaria a produção de novos nêutrons no combustível, uma vez que impossibilitaria o feixe de prótons de atingir o alvo de *spallation* (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003). Ao mesmo tempo, o chumbo líquido flui para o vazio que separa a parede interna da parede externa do vaso, permitindo a retirada de calor por convecção do ar. Dessa forma o vaso de chumbo líquido funcionaria como um mecanismo de segurança passiva. O chumbo funciona também como um absorvedor de nêutrons colaborando para a manutenção do nível adequado de subcriticalidade.

2.3.3 O alvo para *spallation*

O alvo de *spallation* é provavelmente o mais importante componente de um ADS, porque ele representa o acoplamento entre o acelerador de partículas e o núcleo subcrítico. Reações nucleares de *spallation* podem ocorrer quando partículas com altas energias interagem com núcleos pesados. Essas partículas podem ser, por exemplo, prótons ou dêuterons. A energia das partículas incidentes para a geração dessas reações varia de cerca de 100 MeV a poucos GeV.

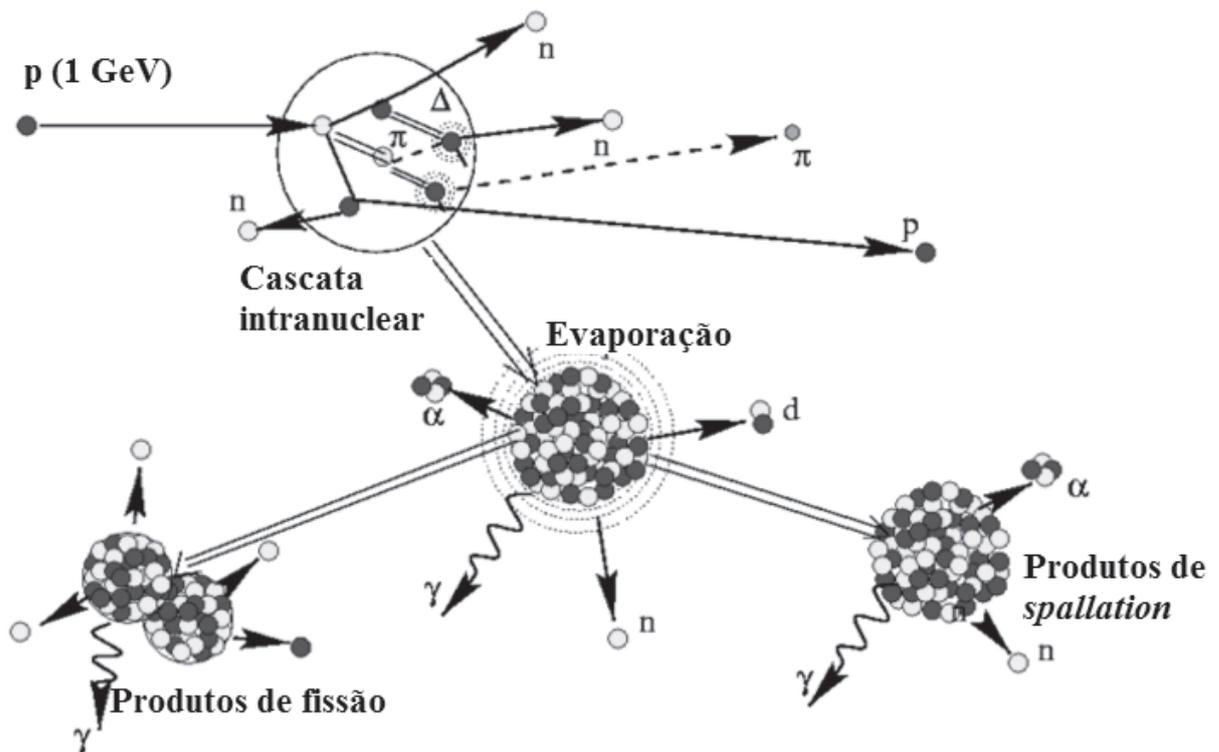
Em uma primeira aproximação esse processo de interação pode ser dividido em dois estágios. Em um primeiro estágio, conhecido como *intranuclear cascade*, os nucleons incidentes espalham de forma incoerente os nucleons do alvo, depositando uma fração de suas energias. Os nucleons incidentes, por sua alta energia, possuem pequeno comprimento de onda de de Broglie e por isso interagem diretamente com os nucleons dos núcleos alvo. Este rápido estágio de espalhamento nucleon-nucleon leva a ejeção de nucleons (incluindo uma grande quantidade de nêutrons) do alvo e a excitação do núcleo residual que irá desexcitar em um segundo estágio. (MONGELLI et al., 2005).

No segundo estágio ocorre a desexcitação do núcleo residual que pode ocorrer de dois modos: evaporação ou fissão. Na evaporação, a desexcitação do núcleo resulta na emissão pelo núcleo residual de nucleons ou partículas leves como o D, T, He, α , Li e Be. Estes processos de *spallation* produzem uma grande quantidade de nêutrons, além de

outros nucleons e partículas carregadas. (MONGELLI et al., 2005).

A Figura 3 ilustra esquematicamente o processo de *spallation*. Uma partícula, neste caso um próton, interage com o núcleo dando início a cascata intranuclear que leva a emissão de diversas partículas. Em seguida, o núcleo excitado se estabiliza por meio de evaporação ou fissão.

Figura 3 – Descrição esquemática de uma reação de *spallation* seguida de evaporação ou fissão.



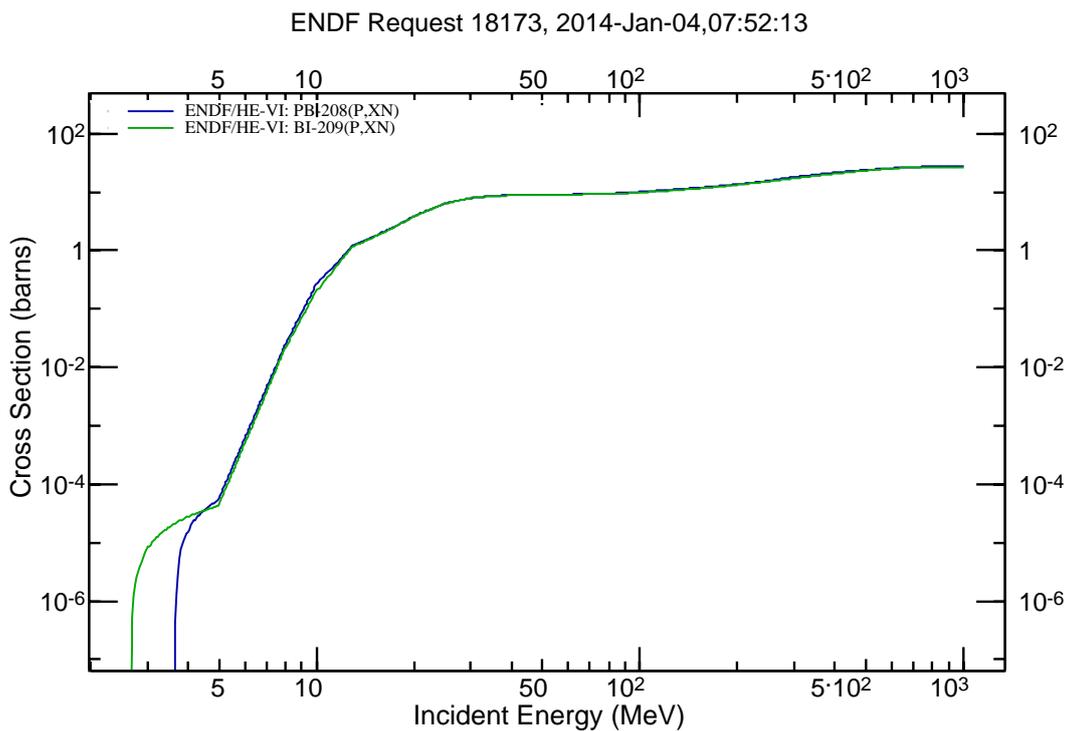
Fonte: (IAEA, 2014) (Traduzida).

A probabilidade de ocorrência de reações de *spallation* cresce com a energia das partículas incidentes e também com o número de massa do núcleo alvo e só ocorrem após um limiar de energia, porque para energias menores que esse valor os prótons não conseguem vencer o potencial coulombiano e interagir com o núcleo para a liberação de nêutrons.

Devido a necessidade de alta produção de nêutrons somente alvos de alto número atômico são considerados. Têm sido propostos como alvos líquidos, principalmente, o chumbo e a mistura eutética de chumbo-bismuto. A Figura 4 mostra as variações das seções de choque para reações de *spallation* $Z(p, xn)$ para os isótopos mais abundantes do chumbo e bismuto, respectivamente. A análise dessas figuras permite verificar a presença

da energia limiar, e que os valores das seções de choque de *spallation* para estes isótopos são bem altos para energias de cerca 600 MeV. Além disso, pode-se perceber que os valores de seção de choque destes dois isótopos são bem próximos entre si. Ou seja, a escolha do uso de um ou outro não é favorecida pelos valores de seção de choque.

Figura 4 – Seção de choque microscópica de *spallation* para o ^{208}Pb e para o ^{209}Bi .



Fonte: (National Nuclear Data Center, 2014)

O chumbo possui uma temperatura de fusão muito alta de 327°C , o que acarreta altos custos para mantê-lo fundido todo o tempo. Já o chumbo-bismuto apresenta uma temperatura de fusão de 123.5°C . O uso de bismuto leva a uma ampla produção de ^{210}Po que é altamente radioativo e volátil, entretanto, o uso de apenas chumbo também leva a produção deste isótopo, porém, em menor quantidade. Como a temperatura usada para o chumbo-bismuto é bem menor que a usada para o chumbo, a taxa de evaporação de ^{210}Po será similar, prevalecendo a vantagem da menor temperatura de fusão do uso combinado dos dois elementos. (NIFENECKER et al., 2001).

Por outro lado, o bismuto é um material de custo mais elevado que o chumbo. Por esse motivo e também pela facilidade da utilização de um único elemento, um grande

número de propostas de relevância, como, por exemplo, a de Rubbia *et al.*, fazem o uso apenas do chumbo. Além disso, como será demonstrado na Seção 4.1, a diferença na produção de nêutrons por partícula incidente nos dois alvos não é tão significativa. A seguir será demonstrado algebricamente que a produção de nêutrons por reações de *spallation* é mais alta para alvos de alto número atômico.

2.3.3.1 Interação de prótons com a matéria

Perda de energia devido a colisões com elétrons:

Prótons com altas energias interagem com a matéria principalmente por colisões com elétrons e essas colisões levam a perdas de energia. De acordo com Nifenecker, David e Loiseaux (1999), uma boa aproximação da energia perdida devido a colisões com elétrons é dada pela fórmula de Bethe:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{DZ\rho}{A} \left(\frac{Z_p}{\beta}\right)^2 \left(\ln\left(\frac{2m_e c^2 \gamma^2 \beta^2}{I(Z)}\right) - \beta^2\right) MeV/cm \quad (2.4)$$

em que A, Z e ρ representam, respectivamente, o número de massa, a carga e a densidade de massa do núcleo alvo e Z_p , β e E representam, respectivamente, a carga, velocidade e energia da partícula incidente. A constante D é igual a $D = 0,3071 MeV cm^2/g$; I é o potencial médio de ionização dos átomos alvo, com valor aproximado $I(Z) = 16Z^{0,9} eV$ e $m_e c^2 = 0,511 MeV$ (energia de repouso do elétron).

A fórmula de Bethe não permite obter uma expressão analítica para o alcance da partícula incidente. Uma aproximação dada por Nifenecker, David e Loiseaux (1999), que permite obter uma razoável estimativa do alcance dos prótons, é :

$$\frac{dE}{dx} = 496\rho \frac{Z Z_p A_p^{0,75}}{A E^{0,75}} = c_R E^{-0,75} MeV/cm \quad (2.5)$$

em que

$$c_R = 496\rho \frac{Z Z_p A_p^{0,75}}{A}. \quad (2.6)$$

O alcance é obtido por integração de

$$\frac{dx}{dE} = \frac{E^{0,75}}{c_R} \quad (2.7)$$

que resulta em:

$$R_{el}(E) = \frac{E^{1,75}}{1,75c_R}. \quad (2.8)$$

Para prótons de 1 GeV obtêm-se um alcance eletrônico de:

$$R_{el}(E = 1 GeV) = 205 \frac{A}{Z\rho}. \quad (2.9)$$

Frenagem devido ao potencial nuclear:

Enquanto começam a ser desacelerados, os prótons podem sofrer reações nucleares. Para as energias de prótons maiores que, normalmente, 100MeV , as mais violentas reações ocorridas são as de *spallation*. Essas reações geram a maior parte dos nêutrons produzidos. Segundo Nifenecker, Meplan e David (2003), no modelo *black nucleus*, as seções de choque das reações podem ser interpretadas como:

$$\sigma(E) = \sigma_0 \left(1 - \frac{V_c}{E}\right) \quad (2.10)$$

em que:

$$\sigma_0 = \frac{\pi}{100} (1.3A^{1/3} + 1)^2 \quad (2.11)$$

V_c é a barreira coulombiana:

$$V_c = \frac{1.44Z}{1.3A^{1/3} + 1} \frac{A + A\rho}{A}. \quad (2.12)$$

Com essas expressões é possível calcular o alcance nuclear (alcance das forças nucleares). Para prótons de altas energias a seção de choque se reduz ao valor dado pelo modelo de *black nucleus*, e o alcance nuclear será aproximadamente:

$$R_{nuc} = \frac{A}{0.6\rho\sigma_0} + \frac{31A^{1/3}}{\rho}. \quad (2.13)$$

Comparação entre o alcance eletrônico e o alcance nuclear:

Tomando como exemplo o berílio e o chumbo, para prótons de 1 GeV , o alcance dos prótons considerando apenas as colisões com elétrons é dado por:

- Para o berílio: $R_{el}(E= 1\text{ GeV}) = 250\text{ cm}$
- Para o chumbo: $R_{el}(E= 1\text{ GeV}) = 45\text{ cm}$

Já o alcance nuclear será:

- berílio $R_{nuc} = 35\text{ cm}$
- chumbo $R_{nuc} = 16\text{ cm}$

A partir desses resultados vê-se que a probabilidade de que prótons de 1 GeV levem a reações nucleares é alta tanto para o berílio quanto para o chumbo. O alcance nuclear é pequeno com relação ao alcance eletrônico, para núcleos leves. Por outro lado, a energia depositada nos núcleos alvos nas reações nucleares é maior para núcleos pesados. A energia depositada nos núcleos alvos é proporcional à espessura do alvo, $\propto A^{1/3}$. O que resulta que

a razão entre a energia perdida devido a interações nucleares e a energia perdida devido a interações eletrônicas é $(A/Z)E^{0.75}$. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

Estas considerações simplificadas mostram que a energia dos prótons deve ser suficientemente alta para que a energia perdida devido a interações nucleares exceda a energia perdida devido a interações eletrônicas (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003). Um tratamento mais detalhado requer simulações com o modelo *Intranuclear Cascade* que será descrito na seção 3.3.

2.3.4 Refrigerante

Alguns projetos recentes de ADS têm sido inspirados nos reatores refrigerados a gás de alta temperatura, já que estes reatores apresentam características desejáveis, tais como as apontadas por Nifenecker et al. (2001):

- A alta temperatura permite alta eficiência termodinâmica.
- Altas taxas de queima do combustível podem ser obtidas.

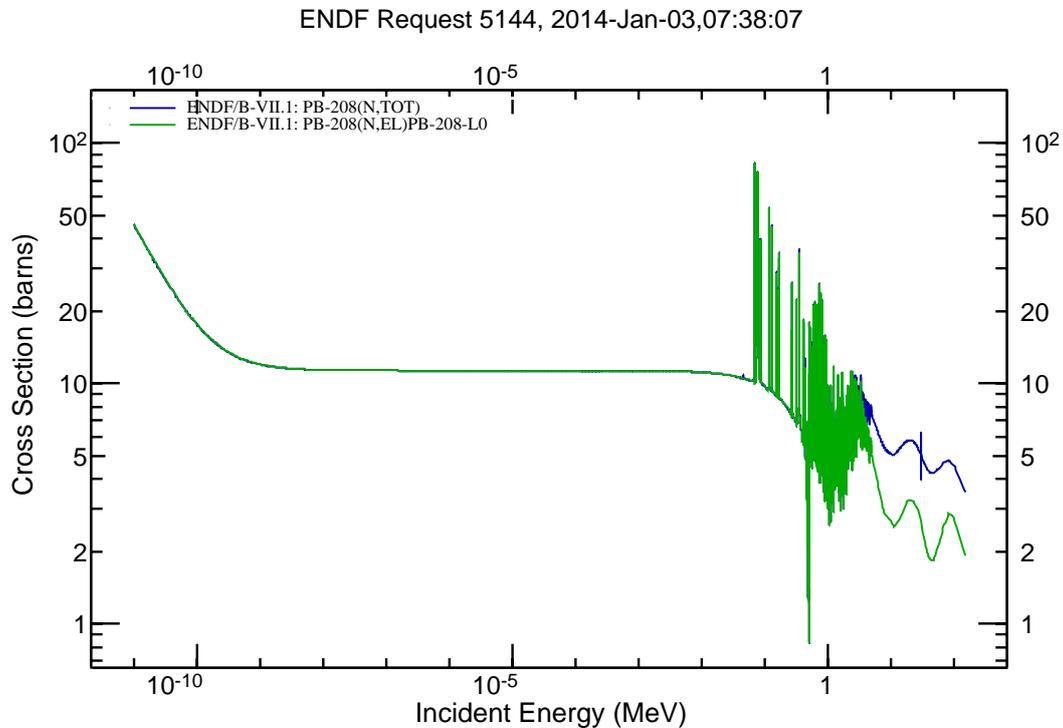
Entretanto, existem algumas limitações nesses sistemas, tais como, baixa densidade de potência devido a pequena capacidade térmica do gás e também uma significativa probabilidade de perda acidental do refrigerante (NIFENECKER et al., 2001).

Também existem propostas, como a de Rubbia *et al.*, de sistemas que utilizam o chumbo como agente refrigerante e também como alvo para *spallation*. Esse tipo de projeto oferece muitas vantagens, como por exemplo, a aparente simplicidade e também sua segurança passiva. (RUBBIA et al., 1995b).

O chumbo também possui pequena seção de choque de absorção de nêutrons (ver Figura 5), propriedade exigida para desempenhar bem a função de refrigerante. Na região rápida do espectro o valor da seção de choque de absorção é ainda menor.

Além disso, a alta densidade e o bom coeficiente de expansão do chumbo permitem a transferência de calor por convecção necessária para uma alta geração de potência. Finalmente, o chumbo é um excelente material para blindagem, fazendo com que grande parte da radiação produzida pelo núcleo do ADS seja rapidamente absorvida. Não havendo necessidade de adicionar mais refletores internos para proteger elementos estruturais importantes, como no caso do uso de sódio líquido. Com o uso de chumbo a dose de radiação transmitida para o exterior do núcleo do sistema é muito baixa. (RUBBIA et al., 1995b).

O chumbo é um material refrigerante propício a ser usado em sistemas rápidos, isso porque ele possui baixa eficiência de moderação. A moderação de nêutrons é feita através

Figura 5 – Seções de choque microscópicas para o ^{208}Pb .

Fonte: (National Nuclear Data Center, 2014)

de colisões elásticas com os núcleos e o ^{208}Pb (o mais abundante dos isótopos do chumbo) possui baixa seção de choque para colisões elásticas, conforme mostrado na Figura 5.

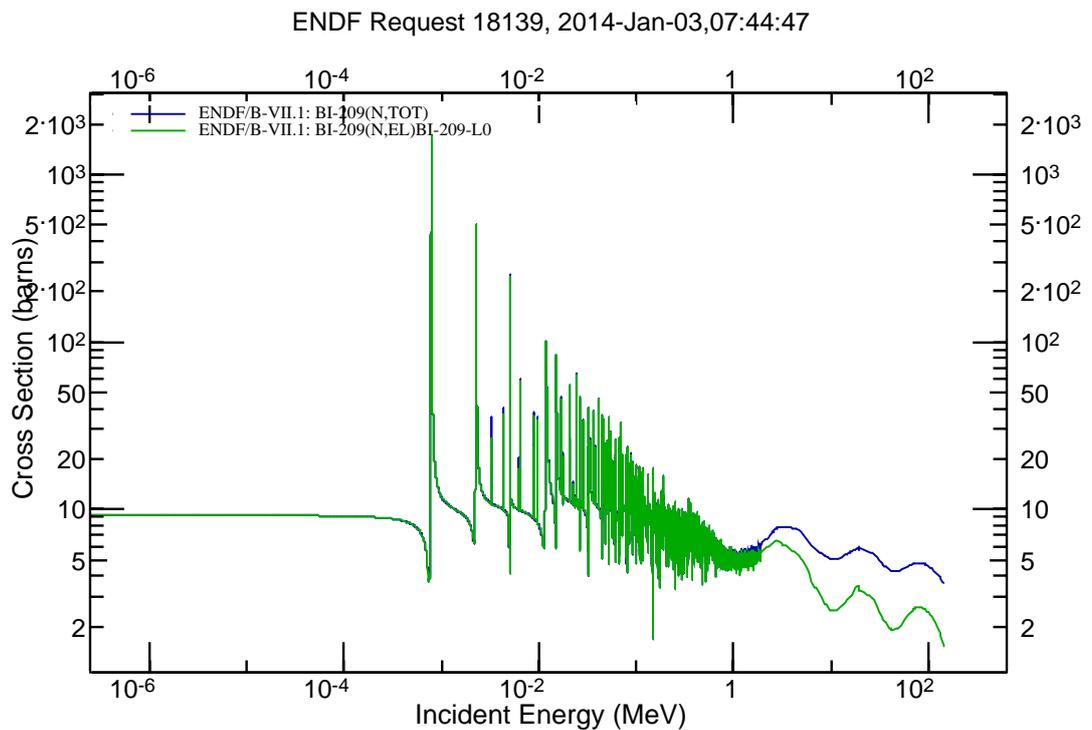
Todavia, o uso do refrigerante chumbo apresenta algumas dificuldades. Como citado na seção anterior, o chumbo necessita uma temperatura muito alta para ser mantido fundido. Além disso, existem os efeitos de corrosão causados pelo chumbo fundido, pois o mesmo apresenta alta solubilidade para muitos metais, a qual cresce com a temperatura. Como consequência disso, após um prolongado tempo de imersão, alguns metais e ligas apresentam uma significativa deterioração.

Outra proposta relevante são os sistemas refrigerados a sal fundido de Bowman *et al.*. Sais fundidos possibilitam contínuo gerenciamento do combustível gerando um bom controle da reatividade, bem como uma economia de nêutrons através da retirada dos venenos do combustível. Entretanto, a separação química do protactínio e dos produtos de fissão e a reinserção de combustível são processos bastante complexos. Além disso, esses sistemas apresentam grande índice de corrosão e como os sais são usados simultaneamente

como combustível e refrigerante, propiciam a contaminação do circuito secundário.

Devido a alta temperatura de fusão do chumbo tem sido proposto o uso da mistura eutética de chumbo-bismuto como refrigerante. Esse refrigerante permite que o sistema opere em uma temperatura menor do que aquela necessária para o uso exclusivo de chumbo, uma vez que essa mistura eutética possui menor ponto de fusão do que o chumbo isoladamente. Ele também permite o uso de nêutrons rápidos, pois seus constituintes não são moderadores, já que tanto o Pb (Figura 5), quanto o Bi (Figura 6) possuem baixa seção de choque de colisão elástica. Enquanto que o sódio por seu relativamente baixo número atômico modera consideravelmente os nêutrons. (MUKAIYAMA et al., 2001).

Figura 6 – Seções de choque microscópicas para o ^{209}Bi .



Fonte:([National Nuclear Data Center, 2014](#))

As propriedades térmicas e mecânicas do PbBi permitem operar em uma ampla faixa de temperatura (funde a 123.5°C e evapora a 1670°C). Além disso, como o PbBi é quimicamente inerte ocorre uma redução no número de acidentes. De acordo com [Hill et al. \(1999\)](#), algumas outras vantagens do PbBi são:

- Baixa pressão de vapor em condições de funcionamento.
- Elevado número atômico permitindo a utilização do espectro rápido.
- Baixa seção de choque de captura gerando economia de nêutrons (mais nêutrons poderão ser usados para transmutação do cobertor subcrítico)
- Bom refletor de nêutrons e boa blindagem para a radiação gama.
- Retém a maioria dos actínídeos e produtos de fissão, caso sejam liberados para o refrigerante.
- Pequena modificação de volume com a solidificação.

Naturalmente, como acontece com qualquer opção, existem algumas características indesejáveis no PbBi. As três principais preocupações são a corrosividade, a radioatividade após a irradiação e a toxicidade. A mistura PbBi pode dissolver aço e pode ser contaminada por misturas sólidas devido às interações com os materiais estruturais. A questão da corrosividade tem sido tratada na Rússia, através do desenvolvimento de materiais estruturais adequados e o uso de oxigênio para permitir a utilização de um revestimento de óxido para a proteção dos materiais. (HILL et al., 1999).

O controle de oxigênio é essencial, uma vez que muito altas e muito baixas concentrações de oxigênio podem causar problemas. A experiência russa provém da utilização de PbBi em reatores de submarinos. O bismuto ao capturar um nêutron cria o ^{210}Po com meia-vida de 138 dias. Esta meia-vida suficientemente curta faz com o ^{210}Po não seja uma preocupação para a deposição dos resíduos, mas sim uma preocupação operacional. Felizmente, grande parte do ^{210}Po permanece no PbBi refrigerante. Além disso, chumbo e bismuto são ambos metais pesados. Quando irradiado, eles representam um "misto" de resíduos que complica ainda mais a disposição final. (HILL et al., 1999).

2.3.5 O acelerador de partículas

O propósito do acelerador é a produção eficiente de nêutrons secundários, através de colisões entre o feixe produzido pelo acelerador e os núcleos do material do alvo. A eficiência dessa produção está intimamente ligada à natureza e energia das partículas do feixe. A energia transportada pelo feixe de prótons pode variar muito, podendo atingir até centenas de MeV, dando uma produção de nêutrons proporcional a energia e intensidade do feixe. Ou seja, o acelerador deve ser também energeticamente eficiente, atingindo altas intensidade, de forma que o número de prótons transportados pelo feixe seja o maior possível. (CARMINATI et al., 1993).

Conforme descrito anteriormente, a seção de choque de *spallation* atinge valores apreciáveis (cerca de 30 barns) quando a partícula incidente possui energias suficientemente

altas ($\approx 1\text{GeV}$). Então, os aceleradores usados nos sistemas híbridos subcríticos devem permitir que as partículas aceleradas alcancem altas energias.

De acordo com a *Nuclear Energy Agency* (NEA, 2002), para acelerar um feixe de prótons de alta intensidade a uma energia da ordem de 1 GeV, podem ser usados um acelerador linear ou um ciclotron. A escolha depende de muitos fatores, mas para cumprir os requisitos do feixe para aplicações em ADS (especificamente uma frequência muito baixa de interrupções do feixe), ambos projetos de aceleradores necessitam ser modificados e desenvolvidos. O modo de operação de um ADS será muito provavelmente contínuo, embora o modo de operação pulsado possa ser usado para testes, *set-up*, etc.

Um acelerador linear de prótons possui limitações de desempenho que podem ser mais econômicas do que tecnológicas, já que grandes comprimentos levam a altos custos com blindagem. Quadrupolos (para focagem transversal) colocados a cada intervalo ao longo de um acelerador linear, bem como elementos focais longitudinais propiciam um limite muito alto para a carga por feixe que pode ser acelerada sem perda significativa do feixe. Aceleradores lineares (linac) operam com cavidades de radiofrequência com frequências tipicamente 10-20 vezes superior à utilizada em ciclotrons. Juntos, esses fatores significam que, em princípio, um acelerador linear poderia acelerar uma corrente de uma a duas ordens de grandeza maior do que um ciclotron, sem problemas na extração do feixe. Para um linac de comprimento adequado, a energia final não é limitada por razões dinâmicas. A eficiência elétrica é alta em feixes de altas correntes, mesmo em um linac em operação de condução normal. Se um acelerador linear com supercondutividade é utilizado na seção de alta energia, a eficiência é ainda maior. (NEA, 2002).

Ciclotrons são baseados na chamada "ressonância ciclotron", que estabelece que em campo magnético constante, perpendicular à órbita do feixe, a frequência de revolução da partícula é fixa e independente da energia da partícula. Mas, no caso do setor focalizado de um ciclotron, em energias relativísticas, energias superiores a 1 GeV são mais difíceis de se obter. Como o efeito relativista aumenta a massa da partícula, focos transversais têm que ser modificados. Ciclotrons de altas intensidades usam setores magnéticos separados durante dois a três estágios. Prótons com energia de 1 GeV parecem representar um limite razoável para um projeto de ciclotron multi-estágios. (NEA, 2002).

Um grande problema no uso de altas energias e altas correntes no ciclotron é a extração do feixe produzido pelo sistema. Para limitar as perdas e minimizar a ativação, um sistema defletor orienta o feixe através do campo magnético, desviando-o com canais magnéticos e eletrodos de alta tensão, reduzindo assim a fração do feixe que é perdida. O limite de corrente no ciclotron é, então, dado por um requerimento de projeto para produzir um feixe no raio externo da máquina, com uma separação radial suficiente para a extração do feixe após um único ciclo (volta). A separação radial depende da tensão e do número de cavidades ressonantes, pois a separação é determinada pelo ganho de energia

por ciclo. (NEA, 2002).

2.3.5.1 Situação tecnológica atual do acelerador linear

A maioria dos atuais grandes aceleradores lineares de prótons foram concebidos como injetores de síncrotrons de grande porte e são máquinas de pulso curto com potência média do feixe relativamente baixa. A máquina de maior potência é o *Los Alamos Meson Factory* (LAMPF) que acelera prótons a energias superiores a 800 MeV. Ele possui 800 metros de comprimento e produz feixes de 15 mA com uma frequência de 120 Hz. A potência média do feixe é de 1.4 MW. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

O acelerador é formado por três partes, como destaca Nifenecker, Meplan e David (2003):

1. A fonte e o injetor.

A fonte pode prover íons H^+ ou H^- , o maior valor de intensidade (30 mA) é obtido com íons H^+ . Os íons são acelerados a 750 kV por um acelerador eletrostático Cockroft-Walton, formando um feixe contínuo de 201,25 MHz.

2. Drift tube Linac.

Os prótons de 0,75 MeV são injetados em um *drift tube* Linac (DTL). O DTL possui comprimento de 16,7 m e acelera prótons a energias superiores a 100 MeV. Trabalha em uma frequência de 201,25 MHz. Os *drift tubes* são colocados em três tanques, cada tanque contém 165 *drift tubes* e é alimentado por uma radio-frequência de pico de potência igual a 2,7MW. A focalização do feixe é feita com 135 quadrupolos colocados no modo focalização- desfocalização- focalização- desfocalização (FDFD).

3. Side-coupled Linac.

Os prótons de 100 MeV são acelerados até cerca de 800 MeV em um linac *side-coupled* (SCDTL), que possui um comprimento de 726,9 m. Trabalha em uma frequência de 805 MHz. A potência de radio-frequência é fornecida por 44 unidades com pico de potência de 1,25MW. A focalização do feixe é obtida com 204 quadrupolos dispostos em pares.

O valor da eficiência da transferência radio-frequência para o feixe será de 55% para o LAMPF (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003). As principais características do LAMPF são apresentadas na Tabela 1.

Tabela 1 – Principais características do Linac LAMPF.

Acelerador	
Comprimento	800 m
Energia	800 MeV
Intensidade do pulso	15 mA
Frequência	120 MHz
Intensidade média	1,2 mA
Injetor	
Energia	0,75 MeV
Intensidade	30 mA
DTL	
Energia	100 MeV
Comprimento	100 m
Frequência	201,25 MHz
Campo Axial	1,6–2,4 MV/m
Potência da RF	3,92 t
<i>sidecoupled</i> (SCDTL)	
Energia	800 MeV
Comprimento	700 m
Frequência	805 MHz
Campo Axial	1,1 MV/m
Potência da RF	55MW
Fonte: (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003)	

2.3.5.2 Situação tecnológica atual do ciclotron

O ciclotron de maior potência em operação é o do *Paul Scherrer Institute* (PSI) em Zurique na Suíça. O conceito de um acelerador para ADS baseado no ciclotron é, assim como o esquema do LINAC, um acelerador de multi-estágios com energia final de 1 GeV. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

Um esquema de três fases proposto para um ciclotron para a geração de prótons de energia de 1 GeV seria, de acordo com NEA (2002), a junção das seguintes máquinas e intervalos de energia para cada estágio de aceleração:

1. Fonte de prótons DC (corrente contínua) Até cerca de 60 keV
2. DC-Pre-acelerador, Cockcroft-Walton ou *Radiofrequency Quadrupole* (RFQ) acima de: 0,8 a 4 MeV
3. Injetor ciclotron (4 a 6 setores) acima de: 80 a 120 MeV
4. Anel do estágio final do ciclotron (entre 8 e 12 setores) acima de: 1 GeV

O PSI pode ser visto como uma prova do uso de ciclotrons para a geração de prótons de alta energia. O anel de 590 MeV deste ciclotron produz correntes de feixe de 1,5 mA a 1,7 mA, o valor mais alto de corrente do feixe extraído até agora é de 2,0 mA. A instalação foi operada a um feixe de potência de cerca de 1 MW por mais de 6000 horas/ano em 1999, com o feixe disponível durante 91% do tempo programado. Isso é excelente para os projetos de pesquisa nos quais os feixes são aplicados. Assim, o PSI está entre os aceleradores que produzem a maior potência por feixe e, provavelmente, é líder no que diz respeito à carga anual acelerada. Demonstrando que uma máquina para acelerar prótons de 1 GeV pode ser construída com base no atual conhecimento e tecnologia. (NEA, 2002)

O problema com as perdas na extração do feixe é resolvido com um projeto que garanta trajetórias circulares bem separadas. As principais características do PSI são dadas na Tabela 2.

O valor da eficiência da transferência RF para o feixe será de 27% para o PSI (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003), ou seja, o PSI é menos eficiente que o LAMPF.

Tabela 2 – Principais características do ciclotron PSI.

Acelerador	
Energia	590 MeV
Intensidade média	1,8 mA
Potência do feixe	1 MW
Pré-Injetor	
Energia	0,8 MeV
Intensidade	12 mA
Injetor	
Energia	72 MeV
Intensidade	2 mA
Frequência	50,6 MHz
Raio de injeção	40,6 cm
Raio de extração	350 cm
Potência magnética	20 kW
Dissipação de Potência RF	0,4 MW
Eficiência de extração	99,97 %
Potência total de RF	2 x 0,18 MW
Setor ciclotron	
Energia	590 MeV
Intensidade	1,8 mA
Frequência	50,63 MHz
Raio de injeção	210 cm
Raio de extração	445 cm
Campo Magnético	2,09 T
Ganho de energia por volta	2,46 MeV
Potência magnética	1 MW
Dissipação de potência de RF	1,4 MW
Potência total de RF	2,1 MW
Radio frequência	
Potência do feixe	1 MW
Potência total da RF	2,61 MW

Fonte: (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003)

2.3.5.3 Requisitos para os aceleradores usados em ADS

Os requisitos para um acelerador de prótons de altas intensidades, apontados por Nifenecker, Meplan e David (2003), para uso em um ADS são resumidos a seguir:

- A energia dos prótons deve ser maior que 600 MeV, a fim de otimizar o número de nêutrons produzidos por MeV de energia incidente. Uma vez que, com prótons de alta energia há maior ocorrência de reações de *spallation*.
- A potência do feixe deve ser superior a 10 MW. Isso significa que para prótons de 1 GeV, correntes maiores que 10 mA são necessárias.
- As perdas de feixe devem ser muito pequenas, a fim de minimizar a ativação das estruturas do acelerador.
- Uma alta disponibilidade do feixe produzido é necessária para o uso em ADS. Outro evento específico para aceleradores é a ocorrência de *trips* (paradas) de curta duração em que o feixe é perdido. Se a duração de um *trip* exceder o tempo necessário para o sistema subcrítico chegar ao equilíbrio térmico, após uma variação da potência de entrada, as estruturas do ADS serão submetidas ao estresse térmico e ao aumento da fadiga. A redução da frequência e da duração dos *trips* é importante para aceleradores de alta intensidade.
- A eficiência de energia do acelerador deve ser razoavelmente alta.

2.3.5.4 Perspectivas para aceleradores de altas energias para ADS

Segundo Nifenecker, Meplan e David (2003), as intensidades dos feixes gerados em aceleradores podem ser limitadas por vários fatores :

- A intensidade que pode ser fornecida pela fonte de íons é um fator limitante. Uma solução para essa limitação parece ser o uso das fontes de plasma ECR (*electron cyclotron resonance*), que são capazes de oferecer intensidades muito altas com boa emitância e confiabilidade.
- O acelerador de pré-injeção também pode limitar a intensidade. Até recentemente, a pré-aceleração foi feita com aceleradores eletrostáticos como Cockroft-Waltons ou SAMES. A necessidade de se ter a fonte com uma diferença de potencial próxima de 1MV causa dificuldades e é a causa de avarias. Os RFQs (*radio frequency quadrupole*) hoje são capazes de acelerar com segurança várias dezenas de mA em vários MeV.
- A carga espacial aumenta com a corrente máxima do acelerador. A região crítica é a de baixas energias e uma maneira de diminuir os efeitos da carga

espacial é reduzir a distância entre os dispositivos de focalização. Novamente os RFQs são úteis desde que seus comprimentos de onda sejam da ordem de poucos milímetros. Parece que os linacs são mais promissores que ciclotrons quando a carga espacial é levada em conta. Em ciclotrons, a limitação da carga espacial diminui quando a separação entre as trajetórias circulares (voltas) aumenta e, portanto, o ganho de energia aumenta. No entanto, o aumento do ganho de energia também aumenta a tensão na cavidade e, conforme discutido a seguir, os riscos de *trips*. Na prática, a intensidade da corrente dos ciclotrons parece ser limitada a cerca de 10 mA. Intensidades de até 100 mA são viáveis com o uso de linacs.

- Alta transmissão em aceleradores é necessária a fim de minimizar perdas de feixe. Em princípio, linacs parecem ter uma certa vantagem nesse quesito. Na verdade extração do feixe de ciclotron é um ponto delicado. No entanto, transmissões de até 99,9% foram relatadas para o PSI. A experiência operacional obtida com o PSI mostra que os aceleradores de alta intensidade podem operar com redução dos riscos para os operadores.
- Atualmente a disponibilidade do feixe já atinge 85 a 90% tanto no LAMPF quanto no PSI. A manutenção regular e mais freqüente seria eficiente para um aumento na disponibilidade, além de ajustes de projeto. Com essas melhorias, estima-se que a disponibilidade seria superior a 95%.
- Desligamentos de curta duração (*trips*) causam quedas acentuadas na intensidade do feixe, podendo induzir a fadiga dos elementos estruturais do ADS. Muitos dos desligamentos são devido a falhas de elementos individuais, tais como unidades de potência de RF, janelas de cavidades e dispositivos de focalização. O número de *trips* em LAMPF e em PSI é próximo de 10.000 por ano. Esse número deve ser drasticamente reduzido por várias ordens de grandeza. Várias medidas parecem ser capazes de melhorar consideravelmente a situação:
 1. Minimizar o número de itens individuais cujas falhas levam a perdas no feixe, por exemplo, cavidades de RF e unidades de potência. Esses itens devem ser planejados de forma que quando um deles falhe a diminuição da energia seja pequena o suficiente para que o feixe não seja desfocado para longe do alvo. Um exemplo é fornecido pelo projeto ATW, que planeja ter uma unidade de potência individual para cada cavidade. A falha de uma unidade levaria a uma diminuição da energia do feixe de 5,5 MeV do total de 1.000 MeV. Esta diminuição de 0,55% não é suficiente para uma mudança na posição do feixe no alvo.
 2. A utilização de dispositivos que rapidamente compensam a perda de energia devido à falha de uma unidade pelo aumento do ganho das unidades próximas.

2.3.5.5 Exemplos de propostas de aceleradores de altas intensidades

Ciclotron

Como exemplo, foi discutida a proposta de um sistema ciclotron de alta intensidade apresentada pelos físicos do PSI. Essa proposta é muito semelhante àquela feita pelo grupo do CERN para o *Energy Amplifier* e consiste em um injetor ciclotron que fornece prótons de 120 MeV. A segunda fase é um ciclotron com 12 setores e oito cavidades de radiofrequência. Isso proporciona uma *gap* de energia por ciclo maior que a do PSI e um menor número de ciclos. O efeito da carga espacial (*space charge effect*) é então reduzido a ponto de feixes de 10 mA poderem ser extraídos. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

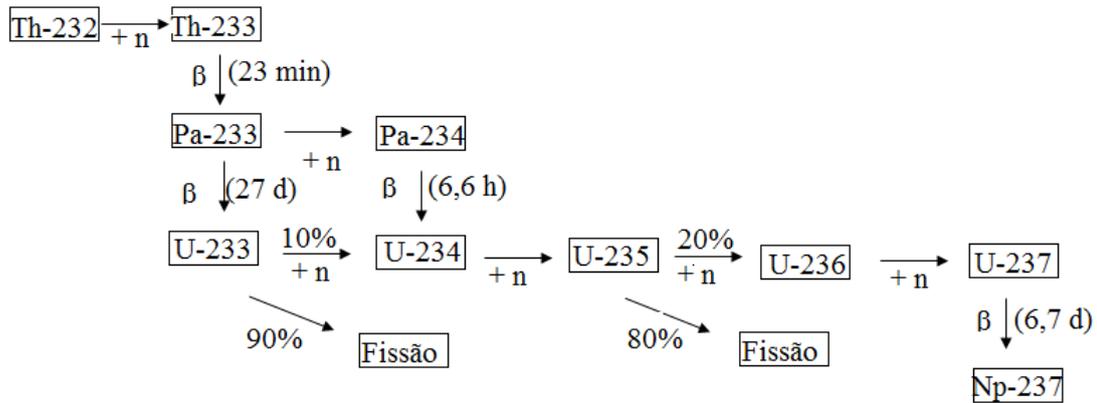
LINAC

Como exemplo, pode-se citar a proposta do ATW que é semelhante a outras propostas como a TRASCO. A proposta inclui uma fonte *electron cyclotron resonance* (ECR) fornecendo até 100 mA, um RQF de 350 Mcs acelera prótons até a 6,7 MeV. Um SCDTL *Side-coupled Linac* de condução normal acelera prótons a até 10 MeV, trabalhando em 350 Mcs, e as seções supercondutoras, operando em 350 Mcs, chegam a 210 MeV de energia e, a 700 Mcs, alcançam 210-1000 MeV. A energia final é 1 GeV para uma intensidade de 45 mA. A versão mais confiável da proposta atribui uma unidade de potência de RF a cada cavidade com um ganho de energia 5.5 MeV. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

2.4 O papel dos ADS nos ciclos de combustíveis

2.4.1 O ciclo tório-urânio

O tório, assim como o urânio, pode ser usado como combustível nuclear. Embora não seja físsil, o isótopo ^{232}Th pode capturar um nêutron produzindo o ^{233}U , que é um isótopo físsil. Então o ^{232}Th , bem como o ^{238}U , é um isótopo fértil. A Figura 7 apresenta de forma esquemática o ciclo $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$.

Figura 7 – Ciclo $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$ 

De acordo com a *International Atomic Energy Agency* (IAEA, 2005), o tório é de 3 a 4 vezes mais abundante do que o urânio, encontra-se amplamente distribuído na natureza, é de fácil exploração e não tem sido explorado comercialmente como poderia. Combustíveis de tório, portanto, somados aos combustíveis de urânio asseguram um longo período de sustentabilidade da energia nuclear. O Brasil possui uma das maiores reservas mundiais de tório, como mostrado na Tabela 3.

Tabela 3 – Reservas mundiais de tório estimadas.

Pais	Toneladas
Índia	846.000
Turquia	744.000
Brasil	606.000
Austrália	521.000
Estados Unidos	434.000
Egito	380.000
Noruega	320.000
Venezuela	300.000
Canadá	172.000
Rússia	155.000
África do Sul	148.000
China	100.000
Groenlândia	86.000
Finlândia	60.000
Suécia	50.000
Cazaquistão	50.000
Outros países	413.000
Total mundial	5.385.000

Fonte: OECD NEA & IAEA Uranium 2011: Resources, Production and Demand (Red Book) 2011.

O uso de tório é uma forma atraente de produzir energia nuclear com baixos níveis de

radiotoxicidade. Além disso, pode-se queimar o plutônio, proveniente do desmantelamento de armas nucleares, juntamente com o tório. Outra vantagem desse combustível é o fato de o dióxido de tório (ThO_2) ser quimicamente mais estável e apresentar maior resistência à radiação que dióxido de urânio (UO_2). A quantidade de produtos de fissão liberados pelo ThO_2 é uma ordem de grandeza inferior à quantidade liberada pelo UO_2 . O ThO_2 também possui propriedades térmicas favoráveis em virtude de sua maior condutividade térmica e seu menor coeficiente de expansão térmica em comparação ao UO_2 . (IAEA, 2005).

O ^{232}Th apresenta seção de choque de absorção para nêutrons térmicos de cerca de 7,4 barns, valor três vezes maior que o apresentado pelo ^{238}U na faixa rápida (2,7 barns). Assim, a taxa de regeneração de combustível obtida na conversão $^{232}Th/^{233}U$, na faixa térmica, é maior que a obtida na conversão $^{238}U/^{239}Pu$ na faixa rápida. A conversão U/Pu somente pode ser feita utilizando nêutrons rápidos enquanto que a conversão Th/U ocorre em todas as faixas do espectro. (IAEA, 2005).

Combustíveis baseados em tório apresentam resistência a proliferação devido a formação de ^{232}U via reação (n, 2n) com o ^{232}Th , ^{233}Pa e ^{233}U . A meia-vida do ^{232}U é de apenas 73,6 anos e seus filhos também possuem meia-vida muito curta. O $(Th, Pu)O_2$ é mais atrativo que o $(U, Pu)O_2$ para a incineração de plutônio proveniente de PWRs, uma vez que no primeiro não há nova formação de ^{239}Pu contribuindo para a não proliferação nuclear. (IAEA, 2005).

Outra vantagem do ciclo Th/U é a menor radiotoxicidade dos rejeitos finais desse ciclo. Isso porque uma menor quantidade de plutônio e actínídeos menores de meia-vida longa (Np, Am e Cm) é formada em comparação ao ciclo U/Pu. Entretanto, ao fim do ciclo do tório também há radionuclídeos como o ^{231}Pa , ^{229}Th e ^{230}U que possuem alta radiotoxicidade. (IAEA, 2005).

2.4.1.1 A utilização de ADS para regeneração de tório

Os ADS vêm sendo estudados em diversos países com diferentes finalidades. Nos Estados Unidos, Europa e Japão, eles vêm sendo estudados principalmente como soluções a longo prazo para os resíduos nucleares, através da queima de plutônio e actínídeos menores, e da transmutação de produtos de fissão de longa-vida. Já na Índia a principal motivação é o desenvolvimento de ADS para produção de ^{233}U de forma segura e eficiente a partir das extensas reservas de tório contidas neste país. (IAEA, 2005).

Uma das principais conclusões obtidas dos estudos sobre o uso de combustíveis a base de tório em ADS é que não é economicamente viável utilizá-lo com adição de urânio pouco enriquecido (com um teor de até 20% de ^{235}U). No que diz respeito à resistência a proliferação, combustíveis a base de tório são uma fonte pobre de material físsil utilizável na fabricação de armas nucleares. O combustível de tório após a queima contém ^{233}U , mas também contém ^{232}U , que decai produzindo nuclídeos emissores de radiação gama. Isso

confere resistência à proliferação, pois cria problemas de manuseio, facilita a detecção (rastreadabilidade) e aumenta a capacidade para salvaguardar este material. ([World Nuclear Association, 2013](#)).

2.4.2 Reciclagem de combustível

O crescimento do uso da energia nuclear está relacionado com as percepções públicas sobre impacto ambiental associado às usinas nucleares e com o ciclo do combustível. Várias opções de ciclo do combustível estão sendo avaliadas em busca de otimizar a utilização e os quesitos de segurança e de não-proliferação associados a energia nuclear. A evolução técnica e econômica do ciclo de combustível nuclear dependerá da taxa de crescimento do uso de energia nuclear e das escolhas nacionais entre as opções para cada etapa do ciclo de combustível. Muitos acreditam que o ciclo aberto do combustível, com disposição direta do combustível irradiado em depósitos geológicos, é uma opção economicamente viável em um futuro imediato. Outros consideram que a opção do ciclo fechado é a mais viável a longo prazo, objetivando a reciclagem dos materiais físséis presentes no combustível irradiado e consequentemente a diminuição nos níveis de radiotoxicidade dos rejeitos nucleares. ([IAEA, 2007](#)).

Em uma perspectiva de desenvolvimento sustentável, a reciclagem é uma opção atraente para a melhoria da eficiência na gestão dos recursos naturais e para a redução dos resíduos radioativos. Além disso, as reservas de urânio e tório são esgotáveis e o crescimento da demanda, a longo prazo, excederia a quantidade de urânio e tório de recuperação economicamente viável. Há duas formas de se reciclar o combustível nuclear, uma envolvendo a reciclagem sem reprocessamento do combustível já irradiado e outra envolvendo uma etapa prévia de reprocessamento antes da reutilização do combustível. ([IAEA, 2007](#)).

Dentro desse contexto de reciclagem do combustível irradiado, o reprocessamento do combustível é uma parte vital da maioria das metodologias envolvendo ciclos fechados do combustível. O reprocessamento do combustível permite separar e recuperar materiais físséis presentes no combustível já queimado em reatores convencionais. A reciclagem de urânio reprocessado e plutônio além de diminuir o volume e radiotoxicidade dos rejeitos, também reduz a necessidade de mineração e enriquecimento, otimizando todo o processo. A disposição direta do combustível queimado impõe a necessidade de criação de depositórios permanentes com capacidade muito maior que os depósitos necessários quando se usa o ciclo fechado. ([IAEA, 2007](#)).

Alguns países (como a França, a Índia, o Japão, a Inglaterra e a Rússia) já reconhecem a importância do reprocessamento/reciclagem de combustível nuclear, o que tem motivado o desenvolvimento de novas técnicas de reprocessamento. O reprocessamento é considerado como um ponto sensível dentro do ciclo, devido ao risco de proliferação.

Entretanto, a indústria nuclear vem acumulando experiência em cada etapa do processo de reciclagem do urânio e ações apropriadas têm sido tomadas para a operação segura das plantas de reprocessamento. As atividades atualmente realizadas vão desde o reprocessamento em pequena escala de combustível de reatores de pesquisa até em larga escala para plantas industriais (IAEA, 2007).

Outro fator importante apontado pela IAEA (2010), é o fato de o risco de proliferação nuclear associado ao reprocessamento ser menor do que o associado ao enriquecimento de urânio, uma vez que o material produzido em cada estágio do reprocessamento não pode ser diretamente convertido em armas nucleares. Como o uso do reprocessamento reduz a necessidade de enriquecimento de novo combustível, tal aspecto favorece a adoção do reprocessamento de combustível.

Sabe-se que o tempo de armazenamento dos rejeitos pode ser significativamente diminuído se os actínídeos de meia-vida longa forem separados do restante do combustível queimado. Ao separar os elementos em parcelas, elas poderão ser tratadas de maneiras diferentes. Alguns desses actínídeos de meia-vida longa podem ser irradiados por nêutrons e serem transmutados em nuclídeos de meia-vida mais curta. É especialmente importante que os actínídeos que serão transmutados sejam separados dos lantanídeos (Nd, Sm, Eu), uma vez que alguns dos lantanídeos possuem alta seção de choque de absorção de nêutrons diminuindo a disponibilidade de nêutrons para as reações de transmutação. (ANEHEIM et al., 2010).

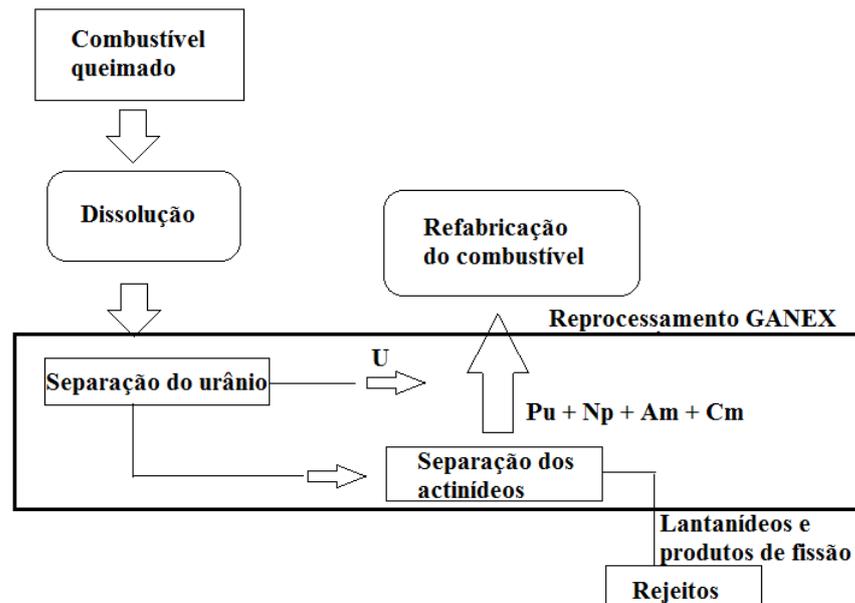
A primeira aplicação conhecida das técnicas de reprocessamento foi no projeto Manhattan para a construção de armas nucleares. As aplicações seguintes do reprocessamento foram voltadas para fins pacíficos visando o melhor aproveitamento do combustível nuclear. Uma variedade de métodos químicos têm sido propostos e demonstrados para o reprocessamento de combustível. Dentre esses métodos, há os que buscam a redução dos riscos de proliferação, por não efetuarem a separação dos óxidos de urânio e de plutônio. Dentre esses métodos pode-se citar o Coprocessamento e o método de reprocessamento a seco AIROX. Recentemente, foi proposto pelo *Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives* (CEA) o método GANEX para remoção simultânea de todos os actínídeos. O GANEX também é um método de reprocessamento não-proliferante.

O objetivo do reprocessamento GANEX é recuperar os elementos transurânicos do combustível queimado. O método é dividido em duas etapas, na primeira etapa o urânio é separado do restante do combustível, cerca de 99.99% do urânio é retirado. Na segunda etapa, os actínídeos (Pu, Am, Cm e Np) são separados dos produtos de fissão e lantanídeos. Em termos de resultado, o plutônio, o amerício, neptúnio e o cúrio são recuperados juntos em um mesmo líquido (produto dos actínídeos) e as perdas de actínídeos são estimadas em valores inferiores a 0,5% (essencialmente Np), ou seja, a recuperação de actínídeos será de no mínimo 99,5%. A contaminação deste produto de actínídeos por alguns lantanídeos

(especialmente Nd, Sm e Eu) é em torno de 5%. (WARIN, 2010).

A Figura 8 mostra esquematicamente a sequência do reprocessamento GANEX. Um detalhe importante é que o U inicialmente separado pode ser utilizado no combustível refabricado (reprocessado) nos percentuais desejados.

Figura 8 – Esquema simplificado do reprocessamento GANEX.



2.4.2.1 A utilização de ADS para transmutação de rejeitos

O combustível usado na grande maioria dos reatores em operação consiste em óxidos de urânio ou, em menor escala, de um misto de óxidos de urânio e plutônio. Ao ser retirado do reator, esse combustível apresenta uma grande quantidade de isótopos que ainda poderiam gerar energia. O particionamento e a transmutação são consideradas como as principais formas de redução da quantidade e radiotoxicidade dos rejeitos nucleares. O plutônio e os actínídeos menores são os que mais contribuem para os altos níveis de radiotoxicidade. A formação desses isótopos está esquematizada na Figura 9. Se estes núclídeos são removidos dos rejeitos (particionamento) e fissionados (transmutação), o rejeito gerado terá menor nível de radiotoxicidade. (The European Technical Working Group on ADS, 2001)

Quando se queima novamente os resíduos nucleares em um reator, a fissão dos actínídeos (Pu, Np, Am e Cm) resulta em produtos de fissão de meia-vida, em geral, menor. Dessa forma, diminui-se a radiotoxicidade dos rejeitos nucleares. Em princípio, todos os reatores (críticos, subcríticos, térmicos e rápidos) podem ser usados para a transmutação de rejeitos. Reatores rápidos apresentam a vantagem da maioria dos elementos transurânicos

3 Metodologia

Neste capítulo serão descritos os códigos computacionais utilizados e os parâmetros das simulações realizadas. Para as simulações foram utilizados dois códigos computacionais:

- O código MCNPX versão 2.6.0 foi utilizado para as simulações de alvos de *spallation*. Essas simulações tiveram como objetivos avaliar os modelos físicos para a descrição das reações de *spallation* presentes no código, identificar qual a faixa de energia do feixe de prótons é mais eficiente na produção de nêutrons por reações de *spallation* e também verificar a produção média de nêutrons por próton incidente para diversos tipos de materiais alvo.

O MCNPX também foi utilizado nas simulações dos combustíveis para ADS avaliados neste estudo. Para essas simulações foi modelado um ADS simplificado com geometria similar ao modelo de [Rubbia et al. \(1995b\)](#). As simulações de ADS tiveram o intuito de descrever o comportamento quanto aos aspectos neutrônicos (evolução da criticalidade, fluxo de nêutrons e evolução isotópica) dos combustíveis estudados. O cálculo da queima nesse código é um processo integrado, que envolve o cálculo do fluxo no estado estacionário pelo MCNPX e a evolução isotópica pelo código CINDER90. A principal dificuldade na utilização do MCNPX para simulação de ADS é que o código considera o fluxo de nêutrons provenientes do alvo de *spallation* apenas no instante inicial da queima.

- O Monteburns versão 2.0 (*Monte Carlo burnup tool*) foi utilizado para validar os resultados da evolução do combustível obtidos com o código MCNPX. O Monteburns é uma ferramenta inteiramente automatizada que acopla o código de transporte por Monte Carlo MCNP ao código de queima e decaimento radioativo ORIGEN2.1, ORIGEN2.2 ou ao CINDER90. Neste trabalho foram utilizados os códigos MCNP5 e ORIGEN2.1. O ORIGEN2.1 foi utilizado por ser o único dentre os três códigos de queima disponível no Departamento de Engenharia Nuclear da UFMG.

A geometria utilizada nas simulações com o Monteburns e os combustíveis estudados foram os mesmos utilizados nas simulações com o MCNPX. O Monteburns permite acompanhar a evolução do combustível levando-se em conta o fluxo de nêutrons provenientes do alvo de *spallation* durante todo o período de queima, diferenciando-se assim do MCNPX.

3.1 Código MCNPX

O método de Monte Carlo fornece uma solução numérica para problemas em que os objetos simulados interajam com outros objetos ou com seu meio externo. Esse método representa uma tentativa de modelar a natureza através da simulação direta da dinâmica básica do sistema estudado. Neste sentido, o método de Monte Carlo é essencialmente simples na sua abordagem, representando uma solução para um sistema macroscópico através da simulação das suas interações microscópicas. (BIELAJEW, 2001).

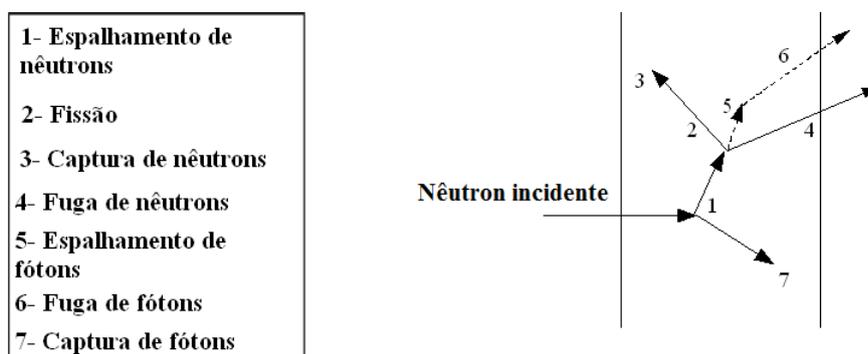
Essa solução é determinada por amostragem aleatória das relações, ou das interações microscópicas, até que o resultado convirja. Assim, os mecanismos de execução de uma solução envolvem cálculos repetitivos. Como um número muito grande de interações microscópicas devem ser modeladas matematicamente, serão necessários muitos cálculos repetitivos que podem ser executados em um computador. Todavia, o método de Monte Carlo é anterior ao computador e este não é essencial para se obter uma solução através deste método, embora, na maioria dos casos, computadores possibilitem a determinação de uma solução de forma mais rápida. (BIELAJEW, 2001).

Esse método pode ser usado para duplicar teoricamente um processo estatístico - como, por exemplo, a interação de partículas nucleares com materiais - ele é particularmente útil para problemas complexos que não podem ser modelados por códigos que utilizem métodos determinísticos. Todos os eventos probabilísticos de um determinado processo físico são simulados sequencialmente. As distribuições de probabilidade que governam cada evento são estatisticamente amostradas para descrever o fenômeno total. O processo de amostragem estatística baseia-se na geração de números pseudo-aleatórios, de forma análoga ao que ocorre em uma roleta de cassino, daí o nome Monte Carlo. No transporte de partículas, a técnica de Monte Carlo funciona como um experimento teórico em que cada uma das muitas partículas são seguidas desde uma determinada fonte (evento de criação da partícula) até sua morte devido a algum evento terminal (fuga, absorção, etc.). (Los Alamos National Laboratory, 1997).

O código *Monte Carlo N-Particle code* (MCNP) é um dos códigos mais utilizados na área de transporte de radiação. A Figura 10 representa como é simulada pelo MCNP a história de um nêutron, aleatoriamente selecionado, incidente em um bloco de material fissionável. Números entre 0 e 1 são selecionados aleatoriamente para determinar o tipo de interação (se houver) e em que posição ela ocorrerá, com base em princípios físicos e probabilidades (dados de transporte - seções de choque) que regem os processos e materiais envolvidos. Nesse exemplo particular, uma colisão de nêutrons ocorre no evento 1. Esse nêutron é espalhado na direção indicada, a qual é selecionada aleatoriamente a partir da distribuição de probabilidade de espalhamento. Um fóton é também produzido neste evento e temporariamente armazenado para análise posterior. No evento 2, ocorre uma reação de fissão, que resulta no desaparecimento do nêutron incidente e no surgimento de outros

dois nêutrons e um fóton. Um nêutron e o fóton são armazenados para análise futura. O primeiro nêutron é capturado no evento 3 e então desaparece do sistema (evento terminal). O nêutron armazenado é recuperado e, por amostragem aleatória, foge do sistema no evento 4. O fóton produzido no evento de fissão, interage no evento 5 e foge no sistema no evento 6. O fóton gerado no evento 1 é agora computado e sofre uma captura no evento 7. O MCNP recupera as partículas que foram anteriormente armazenadas de tal forma que a última partícula armazenada é a primeira a ser recuperada para análise. (Los Alamos National Laboratory, 1997).

Figura 10 – História de vida de um nêutron interagindo com um meio material.



Fonte:(Los Alamos National Laboratory, 1997)(Traduzida).

Cada história de nêutron concluída se soma a muitas outras histórias de nêutrons do sistema e as distribuições de probabilidade de ocorrência dos eventos envolvendo nêutrons tornam-se mais conhecidas. Esse mesmo procedimento é empregado para as demais partículas do sistema simulado e as variáveis de interesse solicitadas pelo usuário (fluxo, criticalidade e etc.) são registradas juntamente com as estimativas da precisão estatística (incerteza) dos resultados. (Los Alamos National Laboratory, 1997).

Para cada elemento ou isótopo simulados no código MCNP, são exigidas bibliotecas de seção de choque para todas as interações possíveis para a energia em questão. Dados de seção de choque para energias térmicas são necessários se os nêutrons são transportados em energias suficientemente baixas onde ligações químicas e moleculares são importantes. Dados de dosimetria são opcionais e podem ser utilizados quando se pretende determinar as taxas de reação. Quando o MCNP é executado, as histórias de vida das partículas escolhidas aleatoriamente são computadas evento por evento. De acordo com Habib (2005), se uma partícula colide com um núcleo uma sequência padrão é seguida pelo código; para o caso de nêutrons a sequência é a seguinte :

1. O MCNP identifica o nuclídeo com o qual ocorre a colisão através da seção de choque total σ_T deste nuclídeo.

2. As partículas criadas nas colisões são geradas para subsequente transporte.
3. A captura de nêutrons é prevista, levando-se em consideração a seção de choque de absorção σ_a .
4. Se o tratamento térmico não é usado, são levados em conta os espalhamentos elásticos ou colisões inelásticas, e as novas energias e direções são determinadas. A seleção de eventos de espalhamento elástico baseia-se na probabilidade:

$$\frac{\sigma_{el}}{\sigma_{el} + \sigma_{in}} = \frac{\sigma_{el}}{\sigma_T - \sigma_a} \quad (3.1)$$

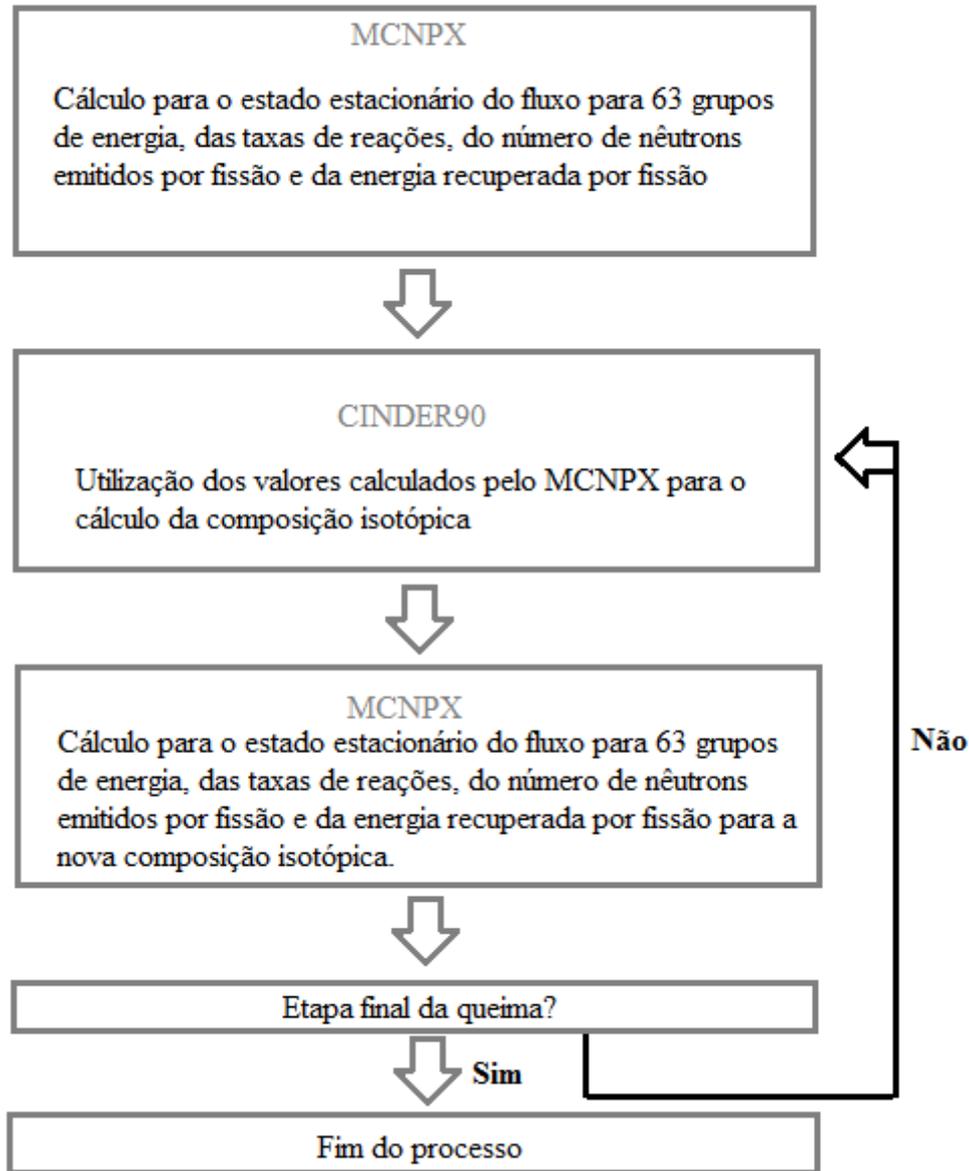
Em que σ_{el} é a seção de choque para espalhamento elástico, σ_{in} é a seção de choque para espalhamento inelástico e σ_T é a seção de choque total ($\sigma_{el} + \sigma_{in} + \sigma_a$).

5. Se a energia do nêutron é inferior a um limiar pré-definido (nêutrons térmicos) e as seções de choque para a faixa térmica estão disponíveis, a colisão é modelada por tratamento térmico ao invés do processo descrito no item 4.

O MCNP eXtended (MCNPX) 2.6.0 é um código de Monte Carlo escrito na linguagem Fortran90 (F90) que transporta quase todas as partículas em quase todas as energias. Ele pode ser usado para o transporte de radiação e para modelagem dos fenômenos de interação da radiação com a matéria. Esse código foi baseado no MCNP4C3, mas possui muitas funcionalidades não presentes no MCNP4C3. Uma dessas funcionalidades é a capacidade de transporte de partículas carregadas. Outra funcionalidade é o cálculo da evolução temporal da composição isotópica do material de interesse (*depletion*, *burnup*, *transmutation*, queima). Essa capacidade, baseada no código CINDER90 escrito por William B. Wilson e no Monteburns escrito por Holly R. Trellue, é limitada a problemas que envolvam cálculos de criticalidade. (HENDRICKS et al., 2008).

A queima é um processo vinculado, que envolve cálculos de fluxo no estado estacionário pelo MCNPX e cálculos da composição isotópica pelo CINDER90. O MCNPX calcula, para o estado estacionário, o fluxo para 63 grupos de energia, as taxas de reações, o número de nêutrons emitidos por fissão e a energia recuperada por fissão. Esses valores são usados pelo CINDER90 para calcular a nova composição isotópica. Essa nova composição isotópica é usada pelo MCNPX para calcular o novo conjunto de valores de fluxo, taxas de reação, nêutrons emitidos e energia recuperada por fissão. Esse processo, descrito na Figura 11, é repetido até a etapa final especificada pelo usuário. (HENDRICKS et al., 2008).

Figura 11 – Processo de queima no código MCNPX 2.6.0.



O MCNPX calcula os parâmetros descritos anteriormente apenas para os materiais especificados pelo usuário, para os materiais produzidos pelo algoritmo do gerador de isótopos, ou selecionados pelos dados específicos dos produtos de fissão. Se alguma informação não estiver disponível no MCNPX, o CINDER90 calcula as reações de 3400 isótopos usando as seções de choque intrínsecas e dados de decaimento presentes no código CINDER90. O MCNPX é capaz de calcular as energias, a partir das taxas de reações, para isótopos que possuam dados de seções de choque de transporte. Para isótopos que não possuem seções de choque de transporte disponíveis no código, o MCNPX calcula o fluxo para os 63 grupos de energia o qual é enviado para o CINDER90 que combina com

63 grupos de seções de choque (inerentes do CINDER90) para gerar as taxas de reações para os 63 grupos. As taxas de reações são, então, integradas para determinar o número total de reações. (HENDRICKS et al., 2008).

3.2 Monteburns - Acoplamento entre os códigos MCNP e ORIGEN2

O Monteburns consiste em um *script* escrito em Perl que interage com a parte principal do código escrita em FORTRAN77, com propósito de acoplar o código de Monte Carlo para transporte de partículas MCNP ao código de queima e decaimento radioativo ORIGEN2 ou ao código CINDER90. Neste trabalho o Monteburns foi utilizado para acoplar os códigos MCNP5 e ORIGEN 2.1. O Monteburns produz resultados de criticalidade do sistema e de variação isotópica a partir de dados de geometria, de materiais e dados operacionais fornecidos pelo usuário. O nome Monteburns vem de **Monte** Carlo **burnup** tool. (POSTON; TRELLUE, 1999).

A interação entre o MCNP e o ORIGEN2 através do Monteburns se dá pelo fornecimento pelo MCNP das seções de choque microscópicas de um grupo e fluxos para a queima feita pelo ORIGEN2. Após a execução do MCNP e do ORIGEN2 os resultados para cada intervalo de queima escritos em arquivos de saída e a composição isotópica obtida a partir do ORIGEN2 é usada para gerar uma nova entrada que será usada pelo MCNP no próximo intervalo de queima. Essa entrada contém a composição ajustada e a densidade de cada material analisado. (POSTON; TRELLUE, 1999).

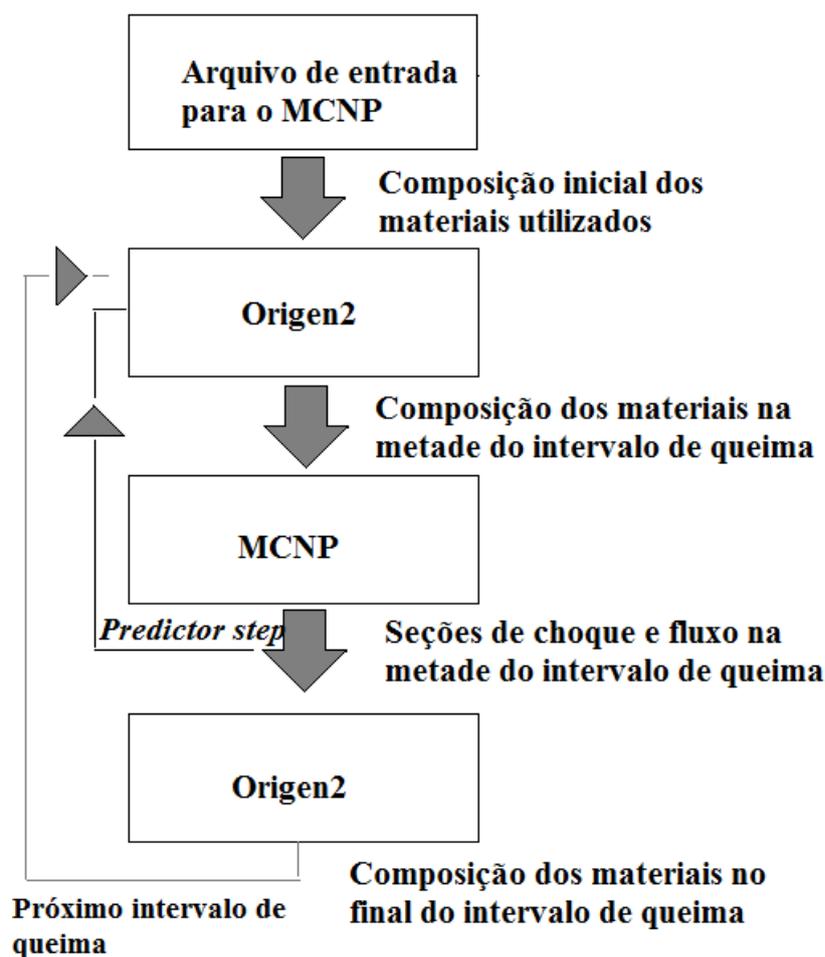
O Monteburns executa uma ou mais vezes o MCNP e o ORIGEN2 para cada intervalo especificado pelo usuário. O usuário também pode especificar uma ou mais realimentações do sistema. Os resultados obtidos a partir do Monteburns serão mais precisos se cada intervalo de queima for dividido em períodos menores, pois a composição dos materiais e o fluxo de nêutrons no sistema pode mudar significativamente com o passar do tempo. O usuário pode especificar que o tempo de queima seja dividido em intervalos menores de forma a atualizar constantemente os resultados gerados pelo MCNP para uso no ORIGEN e vice-versa, dessa forma os valores de fluxo e composição simulados serão mais precisos do que se poucos intervalos fossem utilizados. (POSTON; TRELLUE, 1999).

Para aumentar a precisão do cálculo de queima, o Monteburns adota um procedimento (*predictor step*) para assegurar que sejam utilizadas seções de choque representativas do sistema. Para isso, esse preditor é executado na metade do intervalo de queima e as seções de choque microscópicas correspondentes ao ponto central do intervalo de queima são calculadas pelo MCNP. Esse procedimento é baseado na premissa de que a composição isotópica na metade do intervalo de queima é uma aproximação razoável para a composição durante todo o intervalo, sendo que o fator mais importante é que o espectro de energia

dos nêutrons nesse ponto central do intervalo seja representativo do intervalo inteiro. (POSTON; TRELLEUE, 1999).

A Figura 12 mostra esquematicamente como o Monteburns realiza a interação entre o MCNP e o ORIGEN. Vale ressaltar que o procedimento de predictor utilizado pelo Monteburns também é utilizado no MCNPX (FENSIN, 2008).

Figura 12 – Interações do Monteburns com o MCNP e ORIGEN2.



Fonte:(POSTON; TRELLEUE, 1999)(Traduzida).

O código MCNP é amplamente utilizado para cálculos de transporte de nêutrons, fótons e elétrons. A principal característica desse código é a possibilidade de determinação do comportamento das partículas considerando a geometria e a composição do material. Entretanto, ele não pode determinar os efeitos da queima nos materiais do sistema. Já o código ORIGEN2 analisa a queima e o decaimento dos isótopos no sistema ao longo do tempo. A limitação do ORIGEN2 é que ele não leva em conta a geometria do sistema. A geometria, juntamente com a composição dos materiais, influencia o espectro de energia dos nêutrons, fazendo com que as seções de choque variem nas regiões do sistema simulado.

Essa influência da geometria e dos materiais é levada em conta pelo MCNP. Assim, é desejável o acoplamento do MCNP ao ORIGEN2 para permitir cálculos precisos da queima em sistemas nucleares. O MonteBurns foi escrito para executar essa função. (TRELLUE; D.POSTON, 2000).

O MonteBurns foi desenvolvido para uso no projeto ATW do *Los Alamos National Laboratory* para ser usado em simulações de geometrias tridimensionais (3D) de sistemas que não sejam reatores convencionais (como os outros códigos exigem). Os cálculos de queima feitos pelo MonteBurns são automatizados e também podem ser feitos para reatores convencionais. (TRELLUE; D.POSTON, 2000).

Como dito na seção anterior, o MCNPX realiza a queima de combustível apenas quando se utiliza o cartão kcode, ou seja, a capacidade de queima é direcionada a reatores convencionais. Já o código MonteBurns permite a queima quando se utiliza apenas o cartão sdef, o que possibilita sua utilização na simulação de sistemas híbridos como os ADS e os sistemas híbridos fusão-fissão. Desse modo, ele permite a simulação da queima em reatores convencionais usando o modo criticalidade (kcode) e também permite a simulação da queima em sistemas híbridos utilizando o modo fonte externa (sdef).

Para normalizar o fluxo de acordo com a potência especificada pelo usuário, vários cálculos são realizados. Primeiro calcula-se a energia recuperável por fissão para cada material analisado. Depois é feita a normalização do fluxo para cada região do sistema de acordo com a potência total. O modo como é feita essa normalização é diferente quando o MCNP é executado em modo criticalidade (kcode) de quando o MCNP é executado em modo fonte externa (sdef). O fator de normalização utilizado, de acordo com Trellue e D.Poston (2000), é dado por:

$$C = \frac{P \times 10^6 W / MW}{(1,602 \times 10^{-13} J / MeV) \times N \times Q} \quad (3.2)$$

em que:

P = Potência (MW) definida pelo usuário;

$N = \frac{k_{eff}}{\nu}$, para problemas do tipo kcode, ou

N = peso dos nêutrons perdidos por fissão/ peso dos nêutrons da fonte, para problemas do tipo sdef;

Q = energia média recuperável por fissão (MeV)

O MonteBurns mesmo para problemas do tipo sdef gera resultados de k do sistema,

em que se considera a multiplicação no sistema devido principalmente a fissões e o fluxo da fonte externa. Nesse caso, de acordo com [Poston e Trelue \(1999\)](#), o k é dado por:

$$k = \frac{f_{mult} - 1}{f_{mult} - 1/\nu} \quad (3.3)$$

em que:

f_{mult} = multiplicação no sistema;

ν = peso dos nêutrons gerados devido a fissões/peso dos nêutrons perdidos por fissão

O Monteburns gera resultados de k durante a queima, que levam em conta a multiplicação no sistema (devido às reações de fissão no combustível e ao fluxo da fonte externa). Já o MCNPX gera resultados de k_{eff} durante a queima que representam apenas as reações de fissão no combustível.

Para executar o Monteburns o usuário deverá criar 2 arquivos de entrada: o arquivo de entrada para o MCNP e um arquivo de entrada geral para o Monteburns (que deverá ter o mesmo nome do arquivo de entrada para o MCNP, mas com a extensão .inp). Para muitos cenários de queima, o usuário também deverá criar um arquivo de entrada para realimentação do sistema (com a extensão .feed), esse arquivo deverá conter instruções detalhadas para cada intervalo de queima (os intervalos de queima, a potência e os dados de inserção ou remoção de materiais). O arquivo de entrada para realimentação não é necessário quando se queima em potência constante e sem nenhum tipo de inserção ou remoção de material. O Monteburns também utiliza um arquivo de entrada (MBXS.INP) que contém a lista com os identificadores de seções de choque do MCNP para os isótopos produzidos durante a queima e que não foram inicialmente especificados pelo usuário. Esse arquivo (MBXS.INP) é incluído no pacote do código-fonte do Monteburns e pode ser modificado se necessário. ([POSTON; TRELUE, 1999](#)).

3.3 Análise da produção de nêutrons em alvos de *spallation* utilizando o código MCNPX 2.6.0

Utilizando o código computacional MCNPX 2.6.0 é possível simular a produção de nêutrons por *spallation* em um alvo. O código MCNPX é uma combinação do MCNP e do *The Los Alamos High Energy Transport Code* (LAHET). O LAHET pode ser usado para o transporte de uma infinidade de partículas com altas energias. O MCNPX oferece opções de transporte baseadas em três modelos: BERTINI e ISABEL (ambos são opções

contidas no LAHET), e o pacote *Cascade-Exciton Model* (CEM). (Los Alamos National Laboratory, 2008).

Em um alvo para *spallation*, nêutrons são produzidos como resultado de reações nucleares em cascatas entre prótons de alta energia e núcleos de algum material alvo. Estas reações de *spallation* (p,xn) se baseiam na fragmentação do núcleo com emissão de várias partículas, dentre elas os nêutrons. A análise desse tipo de reação no código MCNPX é feita através de três fases: na primeira fase, partículas incidentes interagem com o núcleo através de sucessivas colisões nucleon-nucleon. Nesta primeira fase, em que partículas de alta energia são emitidas, o modelo de Cascata Intranuclear (INC) é utilizado. Depois da fase INC o núcleo é deixado em estado excitado. Esse é o ponto de partida para a segunda fase de Pré-equilíbrio. Na terceira fase, a fase de Evaporação (EVAP), o núcleo é desexcitado. (Los Alamos National Laboratory, 2008).

A maioria dos códigos computacionais utilizados para simulação de reações entre prótons de alta energia e núcleos atômicos utilizam o modelo de Cascata Intranuclear de Bertini para a descrição da primeira fase da reação de *spallation* e para as fases finais estes códigos utilizam o modelo Evaporação de Dostrovski *et al.* ou Dresner. As metodologias dos modelos INC e EVAP são muito diferentes: no INC as histórias de nucleons individuais são acompanhadas de maneira clássica ou semi-clássica, já o EVAP acompanha a desexcitação nuclear enquanto o núcleo decai de um nível energético para outro nível de menor energia. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

A conexão entre estes dois modelos é um ponto delicado da simulação das reações de alta energia entre prótons e núcleos. Em princípio, a descrição das histórias individuais das partículas feita pelo INC se justifica desde que o comprimento de onda do nucleon incidente seja menor que o raio do nucleon, ou seja, $\lambda < \pi r/2$ Fermi e $E > 160 \text{ MeV}$. Por outro lado, a abordagem dada pelo modelo de Evaporação é válida somente se a energia do nucleon incidente não for muito superior à profundidade do potencial nuclear (cerca de 40 MeV). Assim, a energia de transição entre os modelos INC e EVAP não pode ser especificada rigorosamente. Por essa razão, muitos códigos, dentre eles o MCNPX, possuem uma etapa intermediária cujo domínio de validade sobrepõe os domínios de validade do INC e do EVAP. Essa etapa intermediária é representada pelo modelo Pré-equilíbrio. (NIFENECKER; MEPLAN; DAVID, 2003).

A simulação de reações de *spallation* no MCNPX ocorre em três estágios e em cada um desses estágios um modelo específico é utilizado. O MCNPX permite escolher diferentes modelos para a descrição de cada estágio da reação de *spallation*. A seguir serão descritos, de acordo com Krasa (2008), os modelos utilizados pelo código em cada um dos estágios.

1. Modelos de Cascata Intranuclear

Os modelos de INC disponíveis no MCNPX (Bertini (BERTINI, 1963), Isabel (YARIV; FRAENKE, 1981), o CEM (GUDIMA; MASHNIK; TONEEV, 1983), Liège Intranuclear Cascade (INCL4) (BOUDARD et al., 2002)) descrevem interações entre uma partícula incidente e nucleons do material alvo durante a cascata intranuclear, como uma sequência de colisões binárias separadas no espaço e no tempo. Esses modelos são válidos se o comprimento de onda da partícula incidente for menor do que a distância média entre os nucleons do núcleo alvo, de forma que, o livre caminho médio da partícula incidente no núcleo alvo seja maior do que a distância entre os nucleons. A trajetória entre as colisões é assumida como sendo linear.

As colisões continuam até que um certo grau de equilíbrio seja atingido. O critério utilizado no modelo INCL4 para que essas colisões cessem é o chamado tempo de corte (tempo de equilíbrio empírico) que permite a ocorrência de, em média, cinco interações nucleon-nucleon seqüenciais.

Nos modelos do tipo Bertini (Bertini, Isabel) o critério de equilíbrio é deduzido a partir da energia da partícula mais rápida remanescente no núcleo (chamada de energia de corte), que deve ser menor do que o potencial nuclear ($\approx 40MeV$).

O modelo CEM usa um critério para o escape de uma partícula primária do estágio da Cascata Intranuclear utilizando o potencial ótico local, que é determinado a partir dos valores das seções de choque. Atingido um valor pré-estabelecido de potencial ótico a partícula escapa do estágio de cascata intranuclear e se mantém em um estado excitado. Em geral, o estágio de cascata intranuclear é menor neste modelo do que nos demais.

2. Modelos de Pré-equilíbrio

Os modelos de Pré-equilíbrio (*Multistage Preequilibrium Exciton Model* (PRAEL; BOZOIAN, 1988) e *Modified Exciton Model* (K.; TONEEV, 1975 apud KRASA, 2008)) descrevem o processo de equalização de energia como uma sequência de interações de duas partículas, enquanto que o núcleo é, em cada uma das fases (após cada interação), definido como o número de partículas e de vacâncias. Esta descrição de um núcleo é chamada de *exciton model*.

Esses modelos utilizam equações que descrevem a obtenção do equilíbrio pelo núcleo após o estágio de cascata intranuclear. Quando o estado de equilíbrio é alcançado, o modelo de Pré-equilíbrio é substituído por um modelo de Evaporação.

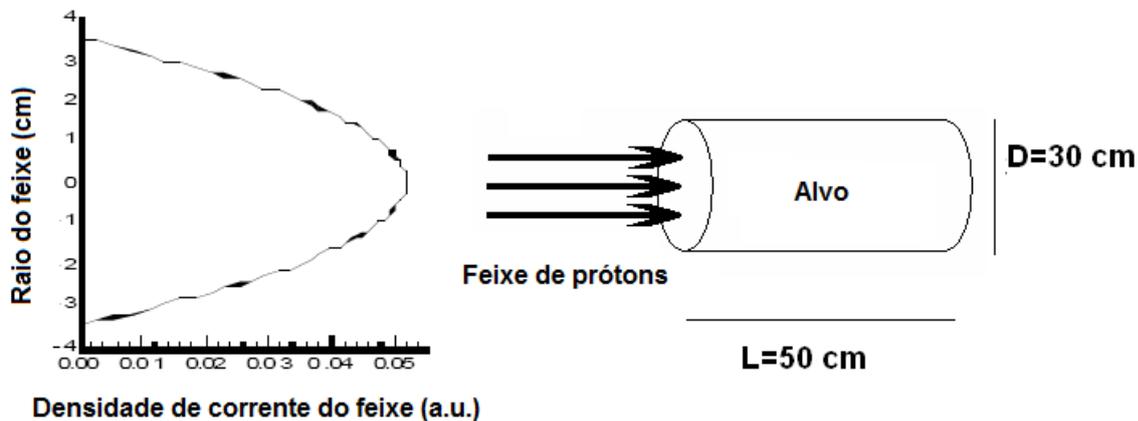
3. Modelos de Evaporação e Fissão

Os modelos de Evaporação (Dresner (DRESNER, 1962), ABLA (JUNGHANS et al., 1998)) descrevem a desexcitação de um núcleo residual que alcançou a energia de excitação no estágio de Pré-equilíbrio. Os núcleos residuais permanecem em estados altamente energéticos, a energia pode ser dissipada por evaporação de n, p, d, t, ^3H e partículas α . Esse processo de emissão pode ser descrito de maneira semelhante a uma evaporação em um sistema de alta temperatura.

A fissão é um processo que compete com a evaporação como forma de o núcleo alcançar a estabilidade após sofrer uma reação de *spallation*. O MCNPX possui dois modelos de fissão para o núcleo residual: o modelo de *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL) para actínídeos com $Z \geq 91$ e o modelo *Rutherford Appleton Laboratory* (RAL) para actínídeos com $Z \geq 71$.

Neste trabalho foram feitas diversas simulações de alvos de *spallation*. Os objetivos dessas simulações foram avaliar os modelos físicos para a descrição das reações de *spallation* presentes no código, identificar qual a faixa de energia do feixe de prótons é mais eficiente na produção de nêutrons por reações de *spallation* e também verificar a produção média de nêutrons por próton incidente para diversos tipos de materiais alvo. A geometria utilizada para os alvos consiste em um cilindro de 30 centímetros de diâmetro e 50 centímetros de altura. A Figura 13 mostra a representação geométrica do alvo e do feixe simulados.

Figura 13 – Representação esquemática do cilindro e feixe simulados.



Fonte:(Los Alamos National Laboratory, 2008)(modificada)

Para a simulação da produção de nêutrons nos alvos de *spallation* foram construídas entradas para o código MCNPX, uma dessas entradas será esquematizada a seguir:

Entrada para o MCNPX utilizada na simulação de um alvo de chumbo

c Definição das células

c _____

1 1 -11.4 1 -2 -3 \$ alvo de chumbo

c _____

2 0 (-1:2:3) -4 \$ esfera

c _____

3 0 4 \$ exterior

c _____

c Definição das superfícies

c _____

1 pz 0

2 pz 50

3 cz 15

4 so 90

c _____

c Cartões de dados

c _____

mode n h /

imp:n,h,/ 1 1r 0

phys:n 1000. j j

phys:h 1000. j j

lca j j j

nps 20000

c _____

c Definição da fonte de *spallation*, feixe de prótons de 1-GeV, perfil parabólico de 7-cm-diam

c _____

sdef sur 1 erg 1000. dir 1 vec 0. 0. 1. rad d1 pos 0. 0. 0. par 9

sil a 0.0 0.1 0.2 0.3 0.4 0.5 0.6 0.7 0.8 0.9 1.0 1.1 1.2 1.3

1.4 1.5 1.6 1.7 1.8 1.9 2.0 2.1 2.2 2.3 2.4 2.5 2.6 2.7

2.8 2.9 3.0 3.1 3.2 3.3 3.4 3.5

sp1 0.00000 0.09992 0.19935 0.29780 0.39478 0.48980 0.58237

0.67200 0.75820 0.84049 0.91837 0.99135 1.05894 1.12065

1.17600 1.22449 1.26563 1.29894 1.32392 1.34008 1.34694

1.34400 1.33078 1.30678 1.27151 1.22449 1.16522 1.09322

1.00800 0.90906 0.79592 0.66808 0.52506 0.36637 0.19151

0.00000

c _____

c Definição dos materiais

c _____

```
m1 82206 0.255 82207 0.221 82208 0.524 nlib=.66c hlib=.24h
```

```
c
```

```
c Definição da tally
```

```
c
```

```
F4:N 1
```

```
SD4 35342.9 $ Volume da célula 1 em  $cm^3$ 
```

```
E4 1-3 3000i 15
```

Os dois primeiros blocos dessa entrada (definição das células e definição das superfícies) são necessários para a construção da geometria do cilindro simulado (Figura 13). O terceiro bloco (cartões de dados) é utilizado para a definição das partículas que serão transportadas (cartão *mode*); da importância que cada uma das partículas terá em cada célula (cartão *imp*); das opções físicas para as partículas simuladas (cartões *phys:n* e *phys:h*); dos modelos físicos de Bertini, ISABEL, CEM, ou INCL4 utilizados (cartão LCA) e do número de prótons provenientes da fonte que serão transportados (cartão *nps*).

Para avaliar os modelos físicos para a descrição das reações de *spallation* presentes no código, foram simuladas cinco opções de modelos físicos e partículas transportadas. Para que se pudesse comparar os diferentes modelos, foi utilizado sempre o mesmo alvo (Pb), todos os parâmetros das simulações foram mantidos constantes, variando-se apenas os modelos físicos. Na simulação 1, cuja entrada foi descrita anteriormente, foram transportados prótons, nêutrons e píons carregados e o modelo de INC utilizado foi o Bertini. Na simulação 2, também se utilizou o modelo Bertini, entretanto, foram também transportados íons leves (deutério, trítio, ^3He e partículas α). Para a alteração das partículas transportadas o cartão *mode* foi alterado para N H / D T S A.

Para a simulação 3, o modelo Bertini foi trocado pelo modelo ISABEL INC. Essa mudança foi feita ajustando o cartão LCA para J J 2 (opção correspondente ao ISABEL) e foram transportados nucleons e píons. A simulação 4 foi feita utilizando o modelo CEM (LCA 8J 1); esse modelo, diferentemente dos demais modelos de INC presentes no MCNPX, utiliza seu próprio modelo de evaporação *Generalize Evaporation Mode* (GEM), também foram transportados nucleons e píons. Na simulação 5, foi utilizado o modelo INCL acoplado ao modelo de evaporação ABLA (LCA 8J 2), sendo que o modelo ABLA é automaticamente selecionado quando se utiliza o INCL. Em todas as simulações foram transportados 20.000 prótons. A Tabela 4 sumariza os modelos utilizados e as partículas transportadas em cada simulação.

Tabela 4 – Modelos físicos simulados.

Caso	Modelo de INC	Partículas Transportadas
Simulação 1	Bertini	N H /
Simulação 2	Bertini	N H / D T S A
Simulação 3	ISABEL	N H /
Simulação 4	CEM	N H /
Simulação 5	INCL e modelo de evaporação ABLA	N H /

O bloco seguinte da entrada foi utilizado na definição da fonte de prótons. Todo problema simulado no MCNPX utiliza uma das quatro fontes disponíveis no código: *General Source Definition* (SDEF), fonte para criticalidade (KCODE), fonte de superfície (SSR), ou uma fonte fornecida pelo usuário. Para simulações de feixes para a geração de reações de *spallation* utiliza-se o cartão SDEF. Para a definição desse cartão são definidas a superfície da qual provém o feixe (SUR), a energia em MeV das partículas do feixe (erg), a direção do feixe (dir e vec), a posição das partículas no feixe (rad e pos) e também é definido o tipo de partícula que compõe o feixe (par).

O feixe definido neste trabalho para as simulações de alvos de *spallation* é formado por prótons com energia de 1 GeV que incidem perpendicularmente à seção transversal do cilindro. O feixe possui um perfil parabólico com um diâmetro inicial de 7 cm (definido utilizando as palavras-chave si1 e sp1), a definição desse perfil foi retirada de [Los Alamos National Laboratory \(2008\)](#). Outro estudo realizado neste trabalho foi a análise de qual a faixa de energia do feixe de prótons é mais eficiente na produção de nêutrons por reações de *spallation*. Para isso, utilizou-se diversas entradas para a simulação de um alvo de chumbo, como a entrada descrita anteriormente, variando-se apenas a energia do feixe (erg).

No bloco de definição dos materiais são descritos todos os isótopos do material simulado e a fração atômica de cada isótopo, também são definidas quais as bibliotecas de seção de choque serão utilizadas. Foram realizadas simulações para diversos tipos de materiais (Li, Be, W, Pb, Bi, Th, U e PbBi), para que se pudesse verificar quais materiais são mais eficientes na geração de nêutrons por *spallation*. Para essas simulações, apenas o bloco de definição dos materiais foi alterado. Os demais parâmetros da simulação foram mantidos idênticos aos descritos na entrada mostrada acima. Todos os materiais foram utilizados em suas composições naturais e com densidades correspondentes ao estado sólido, a biblioteca de seções de choque para nêutrons utilizada foi a *Evaluated Nuclear Data File* (ENDF66) e para os prótons foi utilizada a biblioteca LA150H.

No bloco final da entrada, foi definida a *tally* F4 que fornece fluência de nêutrons na célula (*partículas/cm²*). Essa *tally* foi associada a *tally* E4, essa associação permite a obtenção da fluência de nêutrons na célula para cada valor de energia especificado. Nas entradas utilizadas, definiu-se que o cálculo da fluência fosse feito para energias variando

de 0,001 a 15 MeV. Dentro desse intervalo de energia, foi solicitado a fluência para 3.000 valores de energia.

Vale ressaltar que o MCNPX, para simulações como as descritas anteriormente, gera por padrão em seu arquivo de saída os dados para o cálculo da produção líquida de nêutrons por próton incidente. Essa produção é registrada implicitamente e pode ser obtida através dos resultados impressos pelo código para a produção e perda de nêutrons. O resumo da produção líquida de nêutrons resultante das interações nucleares mostra a produção de nêutrons por todas as partículas transportadas usando INC / Pré-equilíbrio / evaporação e a produção por reações (n, xn) (nêutrons criados devido a interações inelásticas de nêutrons de baixa energia) (Los Alamos National Laboratory, 2008).

O cálculo da produção de nêutrons por próton incidente, de acordo com Los Alamos National Laboratory (2008), é feito somando-se os pesos referentes a perda de nêutrons por escape e a perda de nêutrons por captura. Para exemplificar, encontra-se a seguir a Tabela 5 gerada pelo MCNPX na simulação do alvo de chumbo, cuja entrada foi descrita anteriormente. O código não calcula a incerteza para esses resultados, entretanto, também de acordo com Los Alamos National Laboratory (2008), um limite superior razoável para a incerteza é dado pelo inverso da raiz quadrada do número de partículas incidentes.

O cálculo da produção de nêutrons (a partir dos dados da Tabela 5), é dado por:

escapes + captures:

$$26,140 + 0,089951 = 26,23 \text{ n/p}$$

Tabela 5 – Dados da produção de nêutrons no alvo de chumbo

neutron creation	tracks	weight *	energy	neutron loss	tracks	weight	energy
source	0	0	0.	escape	524747	2.6140E+01	1.4720E+02
nucl. interaction	382426	1.9121E+01	3.8196E+02	energy cutoff	0	0.	0.
particle decay	0	0.	0.	time cutoff	0	0.	0.
weight window	0	0.	0.	weight window	0	0.	0.
cell importance	0	0.	0.	cell importance	0	0.	0.
weight cutoff	0	0.	0.	weight cutoff	0	0.	0.
energy importance	0	0.	0.	energy importance	0	0.	0.
dxtran	0	0.	0.	dxtran	0	0.	0.
forced collisions	0	0.	0.	forced collisions	0	0.	0.
exp. transform	0	0.	0.	exp. transform	0	0.	0.
upscattering	0	0.	0.	downscattering	0	0.	2.9972E+01
photonuclear	0	0.	0.	capture	0	8.9951E-02	2.4485E-01
(n,xn)	206543	1.0314E+01	5.0245E+01	loss to (n,xn)	66352	3.3119E+00	1.2997E+02
prompt fission	0	0.	0.	loss to fission	0	0.	0.
delayed fission	0	0.	0.	nucl. interaction	8272	4.1360E-0	1.2769E+02
tabular boundary	1	5.0000E-05	7.4916E-03	particle decay	0	0.	0.
tabular sampling	10402	5.2010E-01	2.8583E+00	tabular boundary	1	5.0000E-05	7.4916E-03
total	599372	2.9955E+01	4.3507E+02	total	599372	2.9955E+01	4.3507E+02

* per source particle

3.4 Simulações dos combustíveis para ADS

Foram feitas simulações de três combustíveis:

- Combustível 1: $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$;
- Combustível 2: 132 barras de $\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$ e 24 barras de combustível queimado;
- Combustível 3: 120 barras de ThO_2 e 36 barras de combustível reprocessado.

Para as simulações dos combustíveis de ADS foram utilizados os códigos MCNPX, que realiza os cálculos de queima utilizando o código CINDER90, e o Monteburns utilizando o código ORIGEN2.1 para os cálculos de queima. O Monteburns também permite que a queima seja feita utilizando o código CINDER90. Utilizou-se o ORIGEN2.1 por ser o único disponível no departamento.

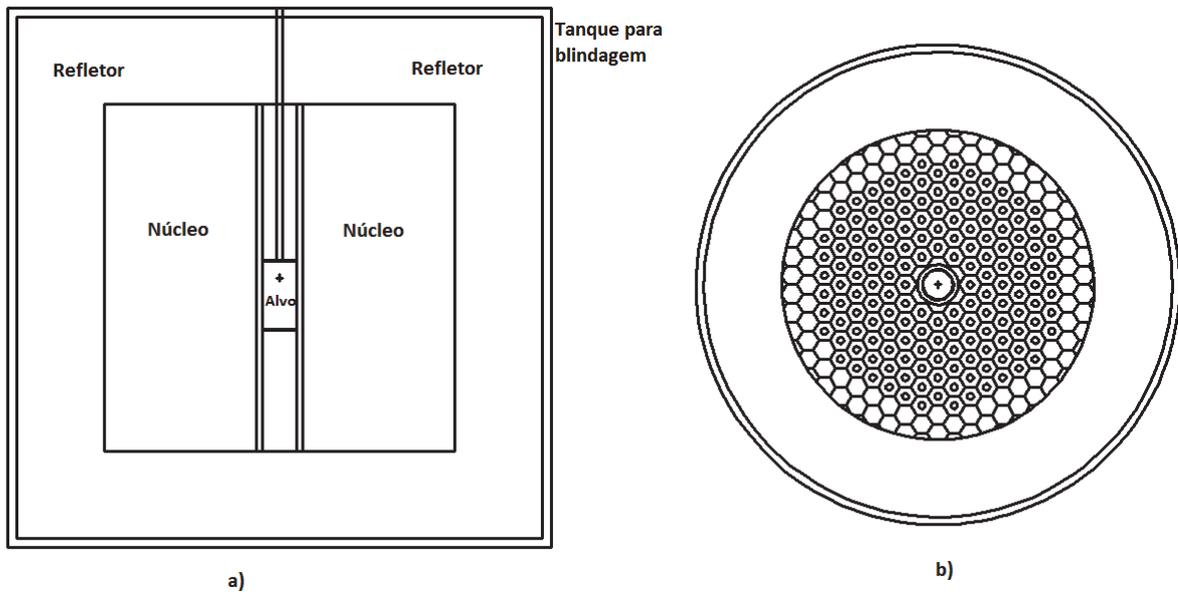
O código MCNPX não permite a simulação simultânea da produção de nêutrons no alvo de *spallation* e o comportamento do combustível no núcleo subcrítico. O processo é, então, simulado em duas etapas distintas. Na primeira etapa, conforme descrito na seção anterior, simula-se a produção de nêutrons no alvo. Dessa primeira simulação é possível obter a distribuição de energias dos nêutrons gerados nas reações de *spallation* (utilizando as *tallies* F4 e E4). Em uma segunda etapa simula-se o combustível nuclear submetido a um fluxo de nêutrons com um perfil de energia condizente com o dos nêutrons gerados em processos de *spallation* simulados na etapa anterior.

Para as simulações dos combustíveis modelou-se simplificadamente um ADS (as barras de combustível, refrigerante, refletores e o alvo de *spallation*). A geometria utilizada foi baseada no projeto de [Rubbia et al. \(1995b\)](#), entretanto, as dimensões foram alteradas para se ajustarem aos combustíveis estudados (para a obtenção da criticalidade adequada). A geometria consiste em quatro cilindros concêntricos, o mais externo representa o tanque de ferro para blindagem, o seguinte representa o refletor composto de chumbo, o próximo cilindro representa o núcleo, preenchido com uma rede hexagonal de barras de combustível e refrigerante (chumbo) e o cilindro mais interno representa o alvo de *spallation* (chumbo). A Figura 14 representa a geometria do ADS simulado.

A opção pelo uso de chumbo como refrigerante e como alvo de *spallation* se deve às características desejáveis desse material para refrigeração (descritas na subseção 2.3.4) e para a geração de nêutrons por *spallation* (subseção 2.3.3). O chumbo também foi utilizado na proposta de [Rubbia et al. \(1995b\)](#). O chumbo e o ferro (do tanque para blindagem) foram utilizados em suas composições naturais e com densidades correspondentes ao estado sólido, a biblioteca de seções de choque utilizada foi a *Recommended Monte Carlo Cross Section* (RMCCS).

Como todos os combustíveis estudados contêm ^{232}Th , optou-se por não utilizar moderador no sistema para reduzir o efeito do protactínio. A configuração e a composição das barras de combustível foram diferentes em cada simulação e serão descritas separadamente nas próximas subseções.

Figura 14 – Geometria do ADS simulado.



Legenda: a) Visão axial b) Visão radial.

Como já foi dito anteriormente, a capacidade de queima de combustível no MCNPX/CINDER90 é limitada a problemas que envolvam cálculos de criticalidade. Sendo assim, para se acompanhar a evolução do combustível é necessário usar o cartão kcode. Quando esse cartão é usado juntamente com o cartão sdef, a fonte descrita pelo cartão sdef funciona como fonte inicial para o cálculo de criticalidade (kcode). Desse modo, no instante de tempo $t=0$, o fluxo de nêutrons no combustível representa o fluxo de nêutrons provenientes do alvo de *spallation* somado ao fluxo gerado pelas reações de fissão. Representando assim, de maneira adequada, o comportamento real de um ADS.

Entretanto, durante a evolução do combustível, o fluxo proveniente do alvo em instantes $t \neq 0$ não é levado em conta. Tal característica tem sido a principal dificuldade para simulações de ADS utilizando a versão disponível do código MCNPX. Os resultados para tempos suficientemente maiores que zero tornam-se uma aproximação do comportamento real em um ADS, mas permitem obter uma ideia da capacidade de produção ^{233}U e de transmutação de rejeitos dos sistemas estudados.

A fonte descrita pelo cartão sdef nas simulações de combustível foi uma fonte de nêutrons cilíndrica, o cartão sdef nessas simulações foi escrito da seguinte forma:

```

c Fonte de nêutrons para simulações dos combustíveis
SDEF POS 0 0 0 ERG=D1 RAD=D2 EXT=D3 AXS 0 0 -1
SP1 -5 1.3
SI2 0. 9. $ Extensão radial de 9 cm (min, max)
SI3 -9 29 $ extensão em Z de 38 cm (min, max)

```

A distribuição de energia dos feixes foi descrita utilizando o cartão *Source Probability* (SP1), o primeiro parâmetro (-5) determina que esta probabilidade é $p(E) \propto E \exp(-E/1,3)$ (espectro de evaporação) e o segundo parâmetro (1,3 MeV) é padrão do código para o espectro de evaporação. O eixo da fonte cilíndrica passa pela origem (POS (0, 0, 0)) e é paralelo ao eixo Z (AXS (0,0,-1)). Os nêutrons são distribuídos uniformemente em um volume equivalente ao de um cilindro com raio de 9 cm (SI2 0. 9.) e 38 cm de altura (SI3 -9 29).

Nas simulações dos alvos de *spallation*, utilizou-se o cartão *sdef* para descrever o feixe de prótons; já nas simulações dos combustíveis, esse cartão foi utilizado para descrever uma fonte de nêutrons. Para verificar se esse perfil de energia dos nêutrons descrito para a simulação dos combustíveis (usando o espectro de evaporação) era condizente com o perfil de energia dos nêutrons gerados na simulação do alvo de chumbo descrito na subseção 3.3 (em que se utilizou um feixe de prótons), plotou-se ambos os espectros.

Os dois espectros, mostrados na Figura 15, foram calculados utilizando as *tallies* F4 e E4. Como pode ser observado na Figura 16, a diferença entre o número de nêutrons por cm^2 para cada valor de energia é bem pequena (diferença média de ≈ 0.004). Sendo assim, o uso do espectro de evaporação parece ser bastante representativo do perfil de energia dos nêutrons gerados no alvo de *spallation*.

Figura 15 – Espectros de energia dos nêutrons para a fonte de prótons e para a fonte de nêutrons.

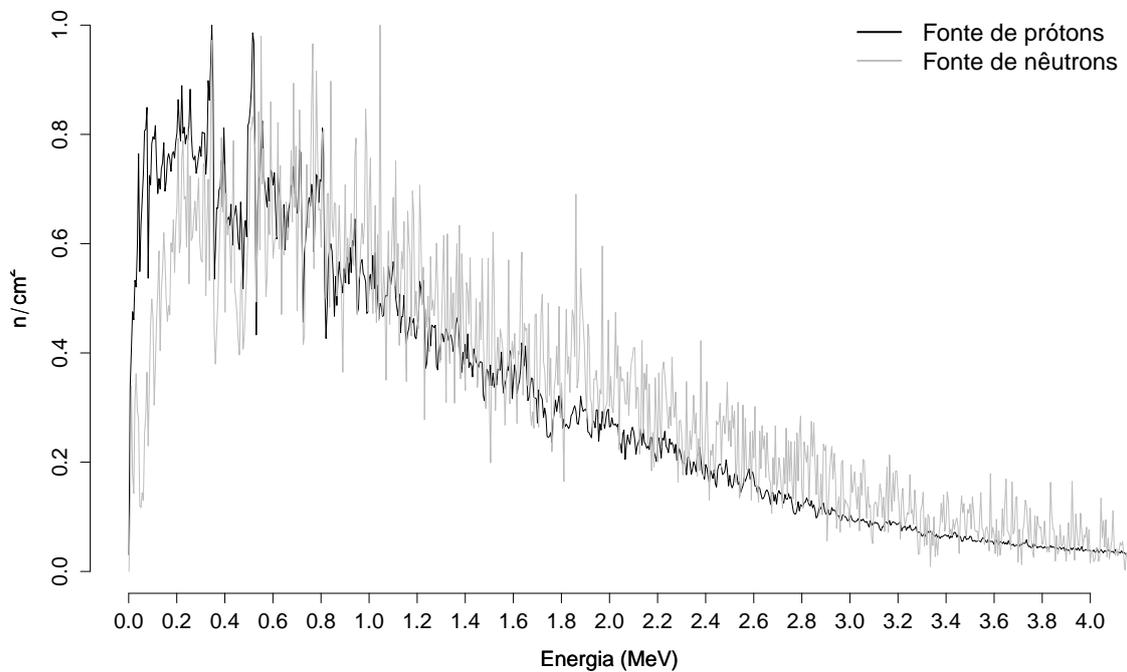
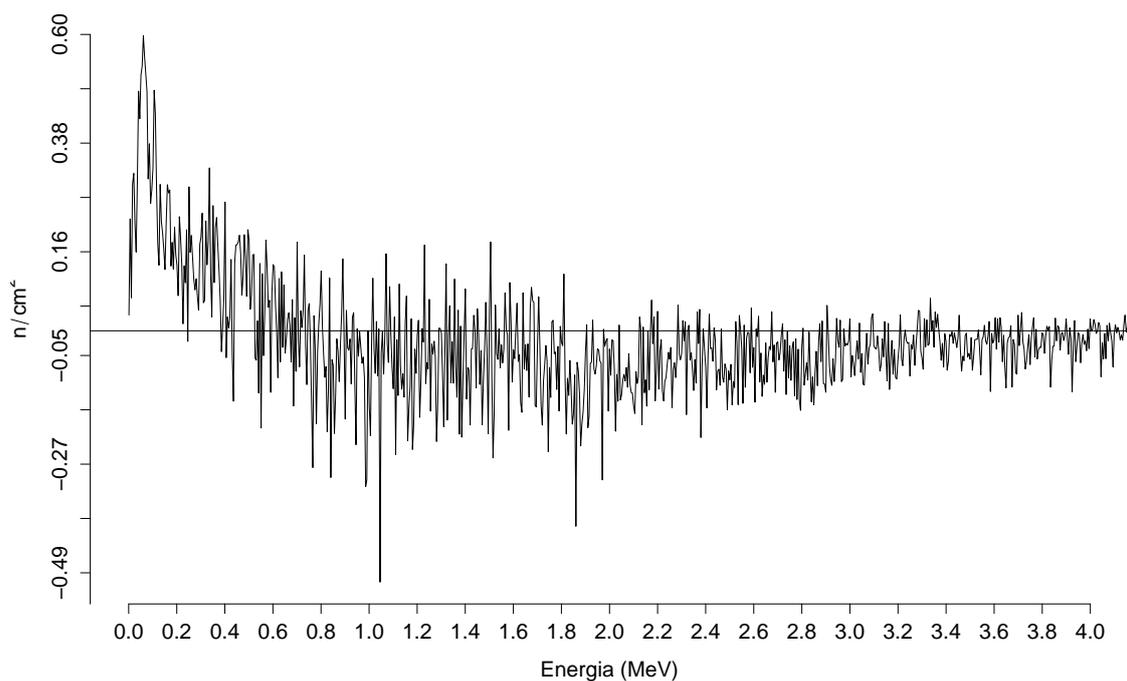


Figura 16 – Diferença entre os espectros gerados pela fonte de prótons e pela fonte de nêutrons.



O cartão kcode foi ajustado para a contagem de 5.000 histórias por ciclo e para a simulação de 515 ciclos. Os espectros de energia dos nêutrons nos combustíveis foram obtidos utilizando as *tallies* F4 e E4, da mesma forma descrita na subseção 3.3.

Para os cálculos de queima de combustível é necessário a descrição do cartão *burn* na entrada do MCNPX. Para a descrição desse cartão é necessário definir os seguintes parâmetros:

BURN TIME= \$ (duração em dias dos intervalos de queima)

MAT= \$ (materiais que serão acompanhados durante a queima)

POWER= \$ (nível de potência)

PFRAC=\$ (fração da potência aplicada a cada intervalo de queima)

OMIT= \$ (isótopos omitidos durante a queima)

BOPT= \$ (opções referentes aos produtos de fissão e impressão dos resultado)

O cartão *burn* começa com a descrição da duração (em dias) dos intervalos de queima. Nas simulações de todos os combustíveis optou-se por utilizar 146 intervalos de queima de 25 dias, correspondendo a um tempo total de queima de 10 anos. Quando o período de queima é muito longo, o tempo total deve ser dividido em vários intervalos a fim de gerar resultados mais precisos. Isso porque ao final de cada intervalo o MCNPX calcula o fluxo e as seções de choque, que são usados pelo CINDER90 para o cálculo da nova composição.

A escolha de intervalos de queima pequenos é ainda mais importante no início da queima, já que esse é o período de maiores mudanças no fluxo e nas taxas de reações. Nas simulações feitas utilizou-se intervalos iguais, isso porque os resultados obtidos com o MCNPX foram comparados com os resultados do código Monteburns. O Monteburns não permite que se simule intervalos distintos quando não se utiliza a entrada *feed*, que é utilizada quando se deseja remover ou adicionar materiais durante a queima. Como não foi feito qualquer tipo de remoção ou adição de material ao sistema, essa entrada não foi utilizada. Sendo assim, utilizou-se intervalos iguais também nas simulações com o MCNPX para tornar mais coerente a comparação dos resultados dos dois códigos.

O próximo parâmetro a ser definido no cartão *burn* é o número referente aos materiais que serão acompanhados durante a queima. Em seguida, é definido o nível de potência (em Mega Watts) em que o sistema opera. Nas simulações feitas utilizou-se a potência de 515 MW, esse valor de potência foi retirado de [David et al. \(2000\)](#) que simula um sistema similar ao deste trabalho. Outro parâmetro definido nesse cartão é a fração da potência total que será aplicada a cada intervalo de queima. Em todos os intervalos foi utilizada a potência total (PFRAC=1.0, que indica que foi utilizado 100% da potência). Também podem ser listados quais os isótopos serão omitidos do cálculo de transporte (OMIT). Como não há seções de choque definidas para todos os isótopos gerados durante

o transporte, é necessário omitir esses isótopos dos cálculos de transporte. Entretanto, a transmutação é contabilizada de maneira indireta pelo CINDER90. Para cada um dos combustíveis simulados foi necessário omitir alguns isótopos.

Finalmente, através da palavra-chave BOPT, definiu-se quais produtos de fissão serão tratados, como e quando os resultados da queima serão impressos no arquivo de saída e a utilização ou não de modelos físicos para altas energias. Para todos os combustíveis simulados, foram tratados os 12 produtos de fissão da primeira geração (Zr-93, Mo-95, Tc-99m, Ru-101, Xe-131, Xe-134, Cs-133, Cs-137, Ba-138, Pr-141, Nd-143, Nd-145). Definiu-se também que o inventário dos núclídeos acompanhados durante a queima seria impresso em ordem crescente do número atômico e que esses resultados seriam impressos apenas ao final da queima.

Os combustíveis simulados no MCNPX também foram simulados utilizando o Monteburns. Para cada um dos combustíveis simulados foram montados dois arquivos de entrada. Um desses arquivos, o arquivo de entrada para MCNP5, foi feito de maneira similar ao arquivo de entrada para o MCNPX. Entretanto, o arquivo usado nas simulações com o Monteburns não apresenta o cartão kcode, já que esse código possibilita a queima no modo fonte externa (sdef). As geometrias, composições e a fonte de nêutrons descrita utilizando o cartão sdef foram iguais às utilizadas nas simulações com o MCNPX. A biblioteca de seção de choque utilizada foi a ENDF/B-VI, assim como nas simulações com o MCNPX.

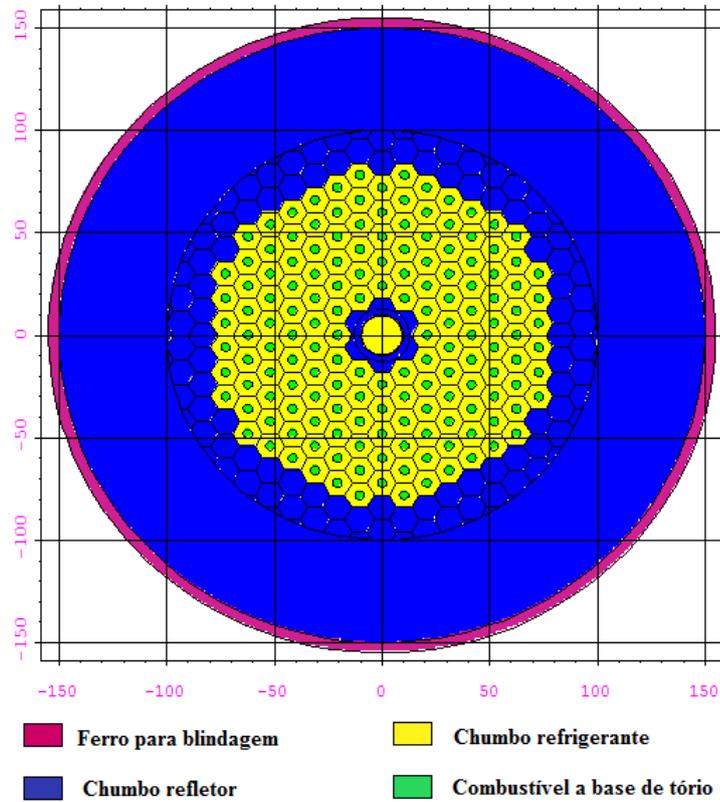
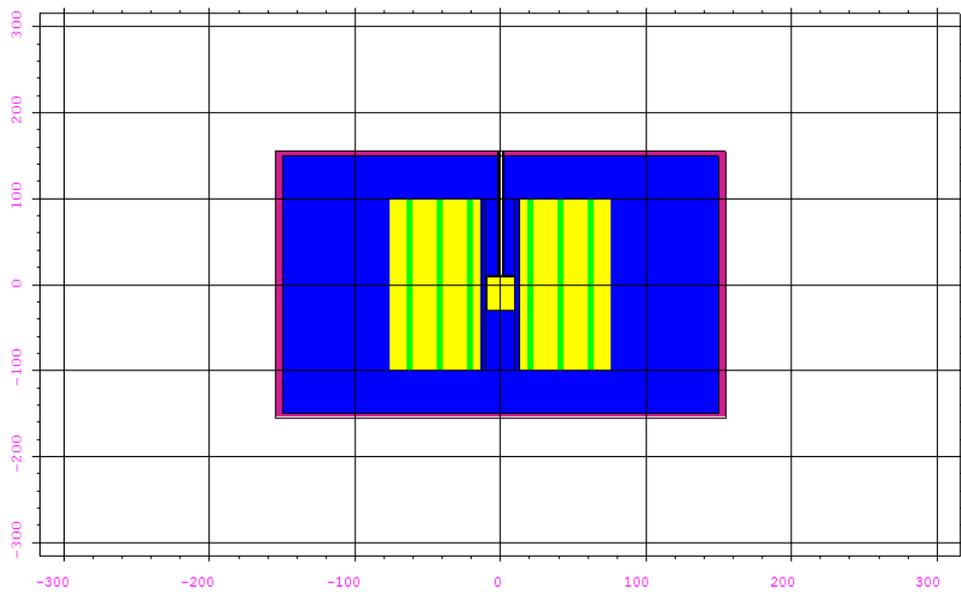
O outro arquivo utilizado foi o de entrada para o Monteburns (.INP). Esse arquivo contém informações sobre os intervalos de queima, a potência e os materiais que serão avaliados durante a queima. Os parâmetros da queima definidos nesse arquivo foram idênticos aos definidos no cartão BURN do MCNPX (intervalos de queima de 25 dias, tempo total de 10 anos e potência 515 MW).

O arquivo de entrada para realimentação (.feed) não foi utilizado, pois a queima foi feita em potência constante e sem nenhum tipo de inserção ou remoção de material. O arquivo MBXS.INP que contém a lista com os identificadores de seções de choque do MCNP foi utilizado com algumas atualizações de dados recentes de seção de choque.

3.4.1 Combustível 1: $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$

O primeiro combustível simulado foi tório com adição de 15% de ^{233}U . O principal objetivo deste trabalho é a queima simultânea de tório e rejeitos nucleares, entretanto, a simulação desse combustível é importante por confirmar a necessidade de adição de ^{233}U ao tório para se obter níveis adequados de criticalidade e para comparar com os outros dois combustíveis estudados. As Figuras 17 e 18 representam a geometria do sistema simulado.

O núcleo simulado foi um cilindro de 6.0 m^3 preenchido por uma rede hexagonal

Figura 17 – Configuração radial do sistema $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% ^{233}\text{UO}_2$.Figura 18 – Configuração axial do sistema $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% ^{233}\text{UO}_2$.

abastecida com $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$. Nas simulações de todos os combustíveis os materiais foram utilizados com densidades correspondentes ao estado sólido, a biblioteca de seções de choque para nêutrons utilizada foi a *Evaluated Nuclear Data File* (ENDF66), que contém dados processados para a temperatura de 293,6K. Assim como nas simulações dos alvos, as bibliotecas de seção de choque utilizadas são correspondentes à temperatura ambiente. Estudos posteriores a este trabalho serão feitos utilizando dados de seções de choques processados para temperaturas maiores, melhorando assim os resultados.

Como dito anteriormente, a geometria utilizada foi baseada no projeto de [Rubbia et al. \(1995b\)](#) e sua descrição foi retirada de [Nifenecker, Meplan e David \(2003\)](#). As frações de volume do refrigerante (55%) e combustível (8%) e o nível de enriquecimento foram ajustados de forma a se obter inicialmente um coeficiente de multiplicação = 0,99. Foram utilizadas 156 barras de combustível com raio interno de 2,15 cm. Na Tabela 6 estão esquematizadas as principais características do núcleo simulado.

Tabela 6 – Parâmetros do sistema para a simulação do combustível 1.

Volume do núcleo	6,0 m^3
Combustível (inicial)	$^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$
Potência térmica	515 MW_t

As entradas utilizadas para a simulação deste combustível no MCNPX e no MonteBurns estão descritas no Apêndice A.

3.4.2 Combustível 2: barras de $\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$ e barras de combustível queimado

O combustível 2 é composto de 132 barras de $\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$ e 24 barras de combustível queimado. O objetivo da simulação deste combustível é verificar o efeito da inserção de combustível queimado em um sistema abastecido com tório (com adição de urânio).

O combustível queimado utilizado possui as características do combustível tipo "C" da Central Nuclear de ANGRA-I, com 3,1% de enriquecimento inicial. A composição desse combustível queimado, retirada de [Cota \(1996\)](#), foi gerada utilizando o código ORIGEN2.1 (*The Oak Ridge National Laboratory Isotope Generation and Depletion Code*) por três ciclos, com queima aproximada de 11.000 MWd/T em cada ciclo, seguindo o histórico de potência real dos ciclos 1, 2 e 3 do reator ANGRA-I. A composição do combustível irradiado após $\approx 33.000 \text{MWd/T}$ de queima está representada na Tabela 7.

Tabela 7 – Composição do combustível de UO_2 , com 3,1% de enriquecimento inicial, após 33.000 MWd/T

actinídeos		Produtos de fissão			
Fração em peso do total=0.9785		Fração em peso do total=0.0215			
Nuclídeo	Fração em peso	Nuclídeo	Fração em peso	Nuclídeo	Fração em peso
U-234	1.55E-04	H	1.53E-06	Ag	2.39E-03
U-235	8.05E-03	Li	5.40E-09	Cd	3.27E-03
U-236	4.11E-03	Be	4.38E-09	In	6.98E-05
U-238	9.78E-01	C	7.71E-10	Sn	2.69E-03
Np-237	4.76E-04	Co	2.67E-17	Sb	8.43E-04
Pu-238	1.85E-04	Ni	9.57E-15	Te	1.41E-02
Pu-239	4.85E-03	Cu	8.46E-14	I	7.04E-03
Pu-240	1.66E-03	Zn	1.19E-09	Xe	1.53E-01
Pu-241	1.56E-03	Ga	6.59E-10	Cs	8.15E-02
Pu-242	5.89E-04	Ge	1.93E-05	Ba	4.29E-02
Am-243	1.13E-04	As	5.90E-06	La	3.57E-02
Outros	1.62E-04	Se	1.64E-03	Ce	7.55E-02
TOTAL= 1.000E+00		Br	6.29E-04	Pr	3.21E-02
OBS.: Outros inclui:		Kr	1.06E-02	Nd	1.12E-01
He-4	1.20E-06	Rb	9.93E-03	Pm	3.34E-03
Th-230	3.41E-09	Sr	2.51E-02	Sm	2.25E-02
U-233	2.07E-09	Y	1.34E-02	Eu	4.78E-03
U-237	5.86E-06	Zr	1.03E-01	Gd	2.58E-03
Np-238	7.80E-07	Nb	6.18E-04	Tb	8.15E-05
Np-239	4.92E-05	Mo	9.60E-02	Dy	4.04E-05
Am-241	8.29E-05	Tc	2.26E-02	Ho	4.37E-06
Am-242	1.53E-07	Ru	6.84E-02	Er	1.72E-06
Cm-242	2.58E-05	Rh	1.28E-02	Tm	1.81E-09
Cm-244	2.96E-05	Pd	3.91E-02	Yb	3.68E-10
Cm-245	1.030E-06	TOTAL= 1.000E+00			

Fonte: (COTA, 1996)

A Tabela 8 mostra as principais características do núcleo utilizado na simulação do combustível 2.

Tabela 8 – Parâmetros do sistema para a simulação do combustível 2.

Volume do núcleo	6,0 m^3
Combustível (inicial)	132 barras de $ThO_2 + 15\% \text{ } ^{233}UO_2$ e 24 barras de combustível queimado
Potência térmica	515 MW_t

O combustível 2 foi construído a partir do combustível 1; a única alteração feita foi a troca de 24 barras de $ThO_2 + 15\% \text{ } ^{233}UO_2$ por barras de combustível queimado. A quantidade de barras compostas por combustível queimado e suas posições no núcleo foram estabelecidas após inúmeras tentativas de se obter um valor de criticalidade inicial não muito baixo. A inserção de combustível queimado no núcleo composto de $^{232}ThO_2 + 15\% \text{ } ^{233}UO_2$ reduz consideravelmente a criticalidade inicial. Isso porque nas barras de tório há um percentual fissil de 15% (^{233}U), já nas barras de combustível o percentual cai para cerca de 1,4% (^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu e ^{241}Pu). Para se obter valores de criticalidade inicial adequados,

foram feitas várias simulações variando o número de barras de combustível queimado e a posição delas no núcleo até se chegar a configuração apresentada nas Figuras 19 e 20. As barras de combustível queimado estão representadas pela cor azul e o combustível baseado em tório pela cor verde.

Figura 19 – Configuração radial do sistema composto de barras com $\text{ThO}_2 + 15\% \text{}^{233}\text{UO}_2$ e barras com combustível queimado.

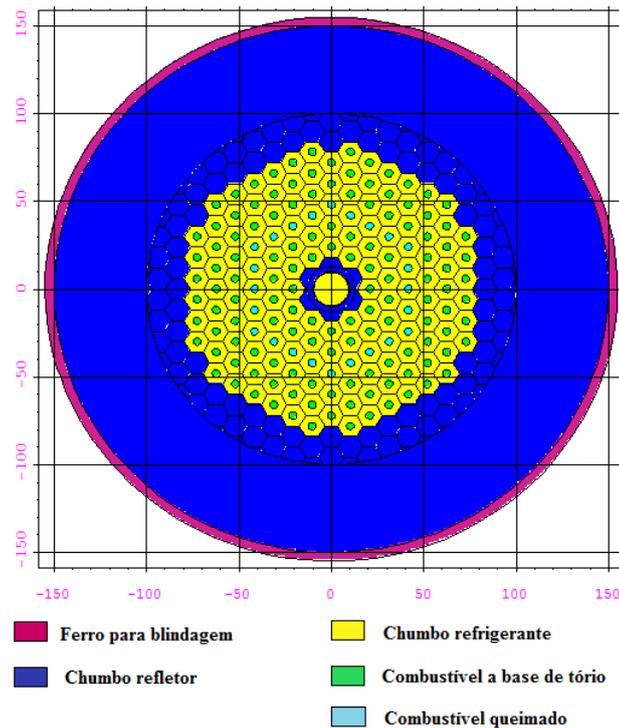
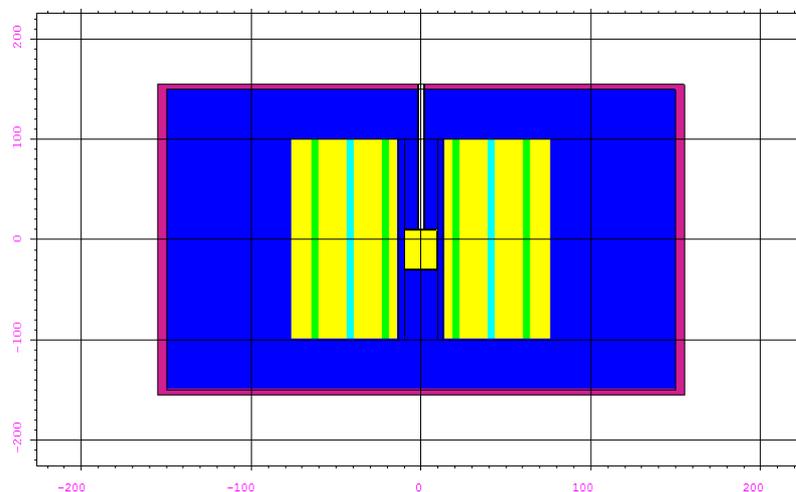


Figura 20 – Configuração axial do sistema composto de barras com $\text{ThO}_2 + 15\% \text{}^{233}\text{UO}_2$ e barras com combustível queimado.



3.4.3 Combustível 3: barras de ThO_2 e barras de combustível reprocessado

Para esta simulação o combustível queimado utilizado na simulação anterior foi submetido ao reprocessamento GANEX, a composição isotópica após o reprocessamento está descrita na Tabela 9. Os percentuais de recuperação desse reprocessamento foram descritos na seção 2.4.2. Os cálculos foram feitos de forma que o plutônio, neptúnio, amerício e o cúrio fossem recuperados juntos com perda de apenas 0,5% de neptúnio e com a contaminação de 5% dos lantanídeos (Nd, Sm e Eu) e de 0,01% do urânio. Dessa forma, mantiveram-se os percentuais descritos na Tabela 7 para o plutônio, amerício e cúrio e reduziu-se o percentual de neptúnio em 0,5%; já os percentuais dos lantanídeos foram reduzidos em 95% e os do urânio em 99,99%. Em seguida, normalizou-se a composição gerada.

Tabela 9 – Composição do combustível (normalizada) após o reprocessamento GANEX.

Nuclídeo	Fração em peso	Nuclídeo	Fração em peso
U-234	1,57E-06	Am-241	8,41E-03
U-235	8,16E-05	Am-242	1,55E-05
U-236	4,17E-05	Cm-242	2,62E-03
U-238	9,92E-03	Cm-244	3,00E-03
U-233	2,10E-11	Cm-245	1,04E-04
U-237	5,94E-08	Np-237	4,80E-02
Pu-238	1,88E-02	Np-238	7,87E-05
Pu-239	4,91E-01	Np-239	4,97E-03
Pu-240	1,68E-01	Nd	1,25E-02
Pu-241	1,58E-01	Sm	2,50E-03
Pu-242	5,97E-02	Eu	5,32E-04
Am-243	1,14E-02		
TOTAL= 1.000E+00			

O uso desse combustível reprocessado sem nenhum tipo de diluição não é viável, pois gera valores de criticalidade excessivamente altos devido a grande quantidade de material físsil. O combustível obtido após reprocessamento GANEX possui percentual físsil de $\approx 65\%$ (^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu e ^{241}Pu). Diante disso, esse combustível foi diluído ora em ThO_2 , ora em UO_2 empobrecido (99,8% de ^{238}U e 0,2% de ^{235}U).

A diluição foi feita para vários percentuais de ThO_2 e para vários percentuais de UO_2 , para cada valor de diluição verificou-se qual o valor de criticalidade inicial. Constatou-se que as diluições em 51%, 52% e 53% de ThO_2 e em 53%, 54% e 55% de UO_2 geram valores iniciais de subcriticalidade adequados (k_{eff} variando de 0,94 a 0,98) ao uso em

um ADS como o simulado. O mesmo percentual de diluição em ThO_2 e em UO_2 leva a valores de criticalidade muito diferentes. Isso porque a diluição em urânio aumenta o percentual físsil do sistema, aumentando assim a criticalidade. Já a diluição em tório não altera a quantidade de isótopos físsis. Além disso, a seção de choque de fissão do ^{238}U é bem maior que a do ^{232}Th , o que faz com que a criticalidade quando se dilui com urânio empobrecido seja maior do que quando se dilui com tório. Por essa razão, não foi possível usar os mesmos percentuais de diluição. As composições utilizadas, após as diluições, são mostradas nas Tabelas 10 e 11.

Tabela 10 – Composição do combustível reprocessado diluído em ThO_2 .

	Diluição em 51% de ThO_2	Diluição em 52% de ThO_2	Diluição em 53% de ThO_2
Nuclídeo	Fração em peso	Fração em peso	Fração em peso
Th-232	4,49E-01	4,58E-01	4,66E-01
U-234	6,76E-07	6,62E-07	6,48E-07
U-235	3,52E-05	3,45E-05	3,37E-05
U-236	1,80E-05	1,76E-05	1,72E-05
U-238	4,28E-03	4,19E-03	4,10E-03
U-233	9,05E-12	8,86E-12	8,68E-12
U-237	2,56E-08	2,51E-08	2,46E-08
Pu-238	8,09E-03	7,93E-03	7,76E-03
Pu-239	2,12E-01	2,08E-01	2,03E-01
Pu-240	7,24E-02	7,10E-02	6,95E-02
Pu-241	6,81E-02	6,67E-02	6,53E-02
Pu-242	2,57E-02	2,52E-02	2,47E-02
Am-243	4,92E-03	4,82E-03	4,72E-03
Am-241	3,63E-03	3,55E-03	3,48E-03
Am-242	6,67E-06	6,53E-06	6,40E-06
Cm-242	1,13E-03	1,11E-03	1,08E-03
Cm-244	1,29E-03	1,27E-03	1,24E-03
Cm-245	4,50E-05	4,41E-05	4,32E-05
Np-237	2,07E-02	2,03E-02	1,99E-02
Np-238	3,39E-05	3,32E-05	3,25E-05
Np-239	2,14E-03	2,10E-03	2,05E-03
Nd	5,38E-03	5,27E-03	5,16E-03
Sm	1,08E-03	1,06E-03	1,03E-03
Eu	2,29E-04	2,25E-04	2,20E-04
O	1,20E-01	1,20E-01	1,20E-01
TOTAL	1,00E+00	1,00E+00	1,00E+00

Tabela 11 – Composição do combustível reprocessado diluído em UO_2 .

	Diluição em 53% de UO_2	Diluição em 54% de UO_2	Diluição em 55% de UO_2
Nuclídeo	Fração de peso	Fração de peso	Fração de peso
U-235	9,68E-04	9,85E-04	1,00E-03
U-238	4,70E-01	4,79E-01	4,88E-01
U-234	6,49E-07	6,35E-07	6,22E-07
U-236	1,73E-05	1,69E-05	1,65E-05
U-233	8,69E-12	8,50E-12	8,32E-12
U-237	2,46E-08	2,41E-08	2,36E-08
Pu-238	7,77E-03	7,61E-03	7,44E-03
Pu-239	2,04E-01	1,99E-01	1,95E-01
Pu-240	6,96E-02	6,81E-02	6,66E-02
Pu-241	6,54E-02	6,40E-02	6,27E-02
Pu-242	2,47E-02	2,42E-02	2,37E-02
Am-243	4,73E-03	4,63E-03	4,53E-03
Am-241	3,48E-03	3,41E-03	3,33E-03
Am-242	6,41E-06	6,27E-06	6,14E-06
Cm-242	1,08E-03	1,06E-03	1,04E-03
Cm-244	1,24E-03	1,22E-03	1,19E-03
Cm-245	4,33E-05	4,23E-05	4,14E-05
Np-237	1,99E-02	1,95E-02	1,90E-02
Np-238	3,26E-05	3,19E-05	3,12E-05
Np-239	2,06E-03	2,01E-03	1,97E-03
Nd	5,17E-03	5,06E-03	4,95E-03
Sm	1,04E-03	1,01E-03	9,92E-04
Eu	2,20E-04	2,16E-04	2,11E-04
O	1,19E-01	1,19E-01	1,19E-01
TOTAL	1,00E+00	1,00E+00	1,00E+00

Nessa simulação o núcleo utilizado foi um cilindro de 12 m^3 preenchido por uma rede hexagonal de 156 barras de combustível com raio interno de 3 cm e 4 metros de comprimento. Dessas 156 barras, 36 foram preenchidas com combustível reprocessado diluído (ora em ThO_2 , ora em UO_2 empobrecido) e as demais barras com ThO_2 sem adição de ^{233}U . As dimensões do núcleo foram alteradas, com relação às simulações anteriores, de forma a maximizar a quantidade de tório no sistema, aumentando assim a regeneração de combustível e, principalmente, de forma que tornasse possível o uso de tório sem adição de ^{233}U .

A Tabela 12 mostra as principais características do núcleo utilizado na simulação do combustível 2.

Tabela 12 – Parâmetros do sistema para a simulação do combustível 3.

Volume do núcleo	12,0 m ³
Combustível (inicial)	120 barras de ThO ₂ e 36 barras de combustível reprocessado diluído
Potência térmica	515 MW _t

A definição das dimensões do núcleo e das posições das barras de combustível reprocessado foi feita levando-se em conta a criticalidade do sistema, de forma que ele se mantivesse subcrítico durante todo o período de operação. Os percentuais de diluição do combustível reprocessado também foram definidos após testes com vários percentuais e suas consequências na criticalidade do sistema. As Figuras 21 e 22 a seguir ilustram a geometria utilizada.

Figura 21 – Configuração radial do sistema abastecido com barras de ThO₂ e barras de combustível reprocessado.

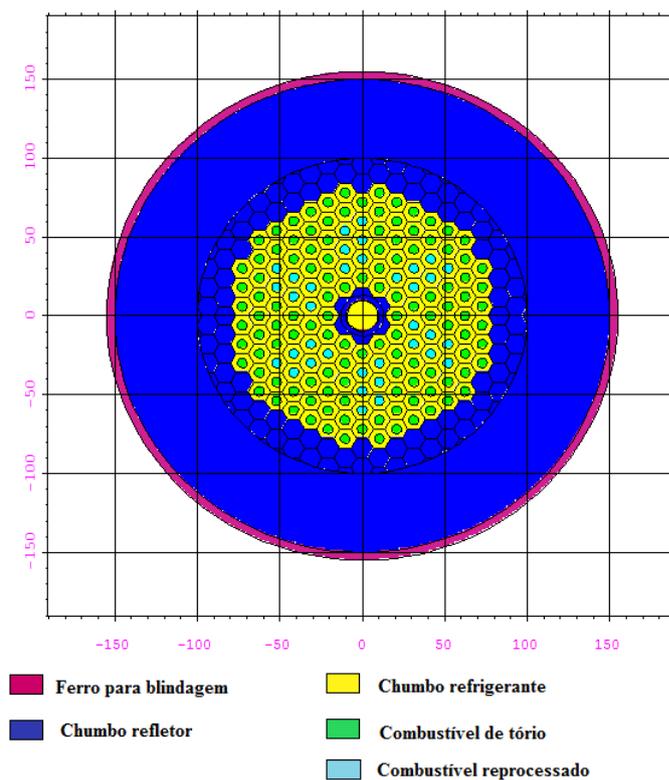
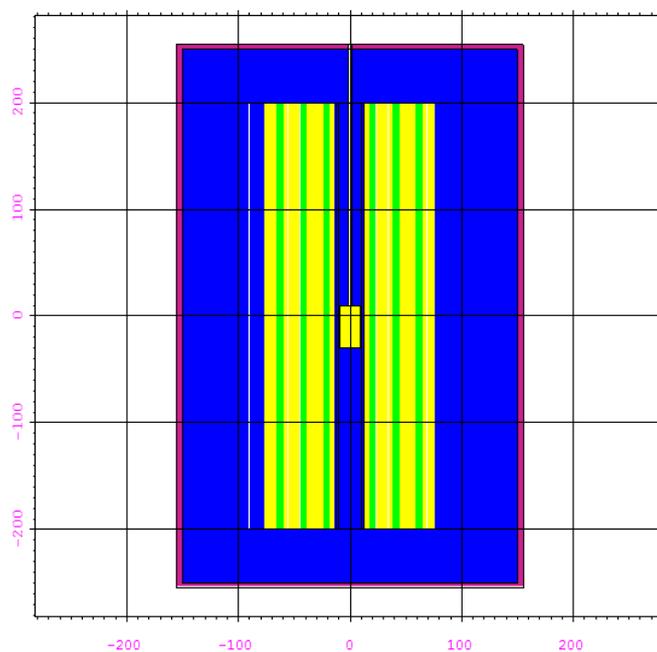


Figura 22 – Configuração axial do sistema abastecido com barras de ThO_2 e barras de combustível reprocessado.



4 Resultados e discussões

Neste capítulo serão apresentados os resultados das simulações feitas no MCNPX de alvos de *spallation*. Será apresentada a avaliação dos modelos físicos para a descrição das reações de *spallation* presentes no código. Também serão apresentados os resultados da produção de nêutrons por próton incidente quando se varia a energia do feixe de prótons e os resultados da produção média de nêutrons por próton incidente para diversos tipos de materiais alvo.

Também serão apresentados os resultados das simulações dos três combustíveis estudados. Os resultados das simulações dos combustíveis com o MCNPX serão mostrados juntamente com os resultados das simulações com o MonteBurns, para possibilitar a comparação dos dois códigos.

4.1 Resultados das simulações de alvos de *spallation*

4.1.1 Avaliação dos modelos físicos para a descrição de reações de *spallation* disponíveis no MCNPX 2.6.0

Conforme descrito na Seção 3.3, o MCNPX 2.6.0 possui alguns modelos para a simulação de reações de *spallation*. Com o intuito de comparar a produção de nêutrons e o tempo computacional gasto para cada modelo, foram feitas simulações da produção de nêutrons em um alvo de chumbo para cada um dos modelos disponíveis. As características do feixe e do cilindro utilizados foram as descritas na seção 3.3 e foram mantidas constantes em todas as simulações.

Quando se compara modelos computacionais, há de se levar em conta as diferenças entre os resultados e também o tempo computacional gasto para cada modelo. A Tabela 13 mostra os resultados obtidos e o tempo computacional gasto em cada simulação. As simulações foram executadas em um computador com processador Intel CORE 2 Quad de 2,33 GHz utilizando a distribuição de LINUX Open SUSE 11.0 em modo sequencial.

Tabela 13 – Resultados obtidos nas simulações de um alvo de chumbo utilizando diversos modelos.

Caso	Modelo de INC	Partículas Transportadas	Tempo Computacional (minutos)	(n/p)
Simulação 1	Bertini	N H /	2,63	26,23
Simulação 2	Bertini	N H / D T S A	5,08	26,34
Simulação 3	ISABEL	N H /	3,24	25,47
Simulação 4	CEM	N H /	2,91	27,08
Simulação 5	INCL	N H /	48,92	24,92

Na simulação 1 foi utilizado o modelo BERTINI INC e foram transportados prótons, nêutrons e píons carregados. Nessa primeira simulação foram produzidos 26,23 nêutrons para cada próton incidente. A simulação 1 foi a que demandou o menor tempo computacional.

Na simulação 2 também foi utilizado o BERTINI, mas houve o transporte também de íons leves (deutério, trítio, ^3He e partículas α), nessa simulação a produção de nêutrons foi de 26,34, ou seja, cerca de 0,4% maior que a produção na simulação 1. Entretanto, a simulação 2 exige quase o dobro do tempo computacional da simulação 1, isso porque os íons leves também são considerados no transporte de partículas. Vê-se, então, que o transporte de íons leves influenciou muito pouco a produção de nêutrons e aumentou muito o tempo computacional gasto, indicando ser desnecessário a inclusão do transporte de íons leves na simulação de alvos de *spallation*.

Para a simulação 3 o modelo BERTINI foi trocado pelo modelo ISABEL INC e, assim como na simulação 1, foram transportados nucleons e píons. O resultado gerado para a produção de nêutrons foi 25,47 nêutrons por próton incidente, valor cerca de 3% menor que o encontrado utilizando o BERTINI INC. Analisando a Tabela 13, constata-se que o tempo computacional gasto ao usar o modelo ISABEL INC é cerca de 23% maior que quando se usa o modelo Bertini para o transporte de nucleons e píons (simulação 1).

A simulação 4 foi feita utilizando o modelo CEM para o transporte de nêutrons, prótons e píons. O modelo CEM (*Cascade-Exciton Model*), ao contrário dos outros modelos de *intranuclear cascade* disponíveis no código, possui seu modelo próprio de evaporação (GEM) ([Los Alamos National Laboratory, 2008](#)). A produção de nêutrons para o modelo CEM foi de 27,08 n/p, cerca de 3,2% acima do valor calculado utilizando o modelo Bertini INC. Entretanto, o tempo computacional gasto na simulação 4 foi 10% maior que o gasto na simulação 1.

Na simulação 5 foi utilizado o modelo INCL acoplado com o modelo de evaporação ABLA. Esse modelo de evaporação é automaticamente escolhido quando o INCL é especificado. A produção de nêutrons nesse caso foi de 24,92 n/p, valor aproximadamente 5% menor que o encontrado na simulação 1. O modelo INCL é o que demanda maior tempo computacional, seu tempo computacional é cerca de 10 vezes superior aos demais modelos.

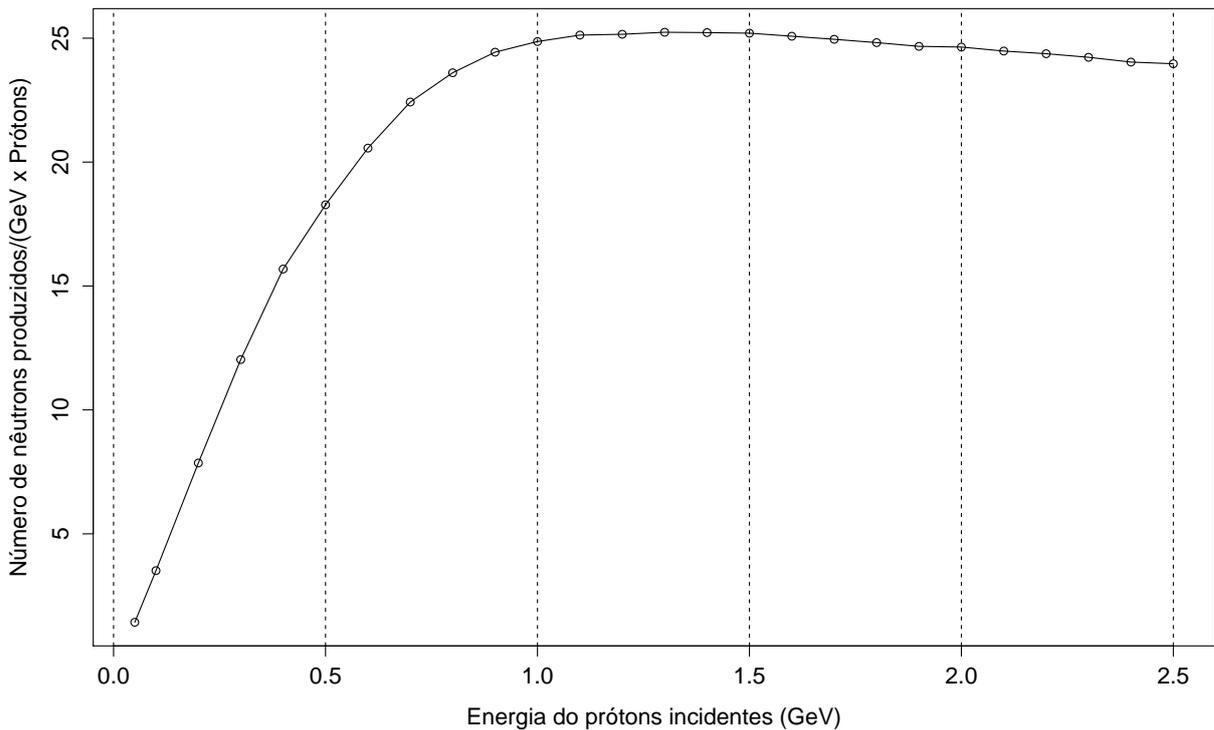
Como a produção de nêutrons foi similar em todos os modelos e o tempo computacional foi significativamente menor na simulação 1, optou-se por utilizar o modelo Bertini INC com o transporte de nucleons e píons nas simulações de alvos descritas a seguir.

4.1.2 Análise da eficiência energética do feixe de prótons

Para avaliar qual a faixa de energia do feixe de prótons produz mais nêutrons, foram feitas diversas simulações de um alvo de chumbo. Em cada uma dessas simulações

variou-se a energia do feixe de prótons e manteve-se os demais parâmetros idênticos aos da entrada descrita na Seção 3.3. A Figura 23 ilustra o número de nêutrons produzidos normalizado por unidade de energia do feixe e por próton incidente para um alvo de chumbo. Esse parâmetro permite visualizar a faixa de energia em que a produção de nêutrons é mais eficiente.

Figura 23 – Produção média de nêutrons por unidade de energia e por partícula incidente.



A partir dessa figura, vê-se que a máxima produção de nêutrons ocorre no intervalo de 1 a 1,5 GeV. Pode-se concluir que nessa faixa de energia se produz uma grande quantidade de nêutrons, considerando a economia na energia do feixe de prótons.

4.1.3 Análise da produção de nêutrons em diversos materiais

Foram simulados alvos compostos por diferentes materiais, de forma a possibilitar uma comparação da eficiência desses materiais na produção de nêutrons. Todos os materiais foram utilizados em suas composições naturais e com densidades correspondentes ao estado sólido. Os parâmetros do feixe e as dimensões do cilindro (já descritos na seção 3.3) foram mantidos constantes para os diversos materiais.

Nessas simulações foram transportados prótons, nêutrons e píons carregados utilizando o modelo BERTINI INC. Em todas as simulações foram transportados 20.000 prótons incidentes. Nesse tipo de simulação o código gera em seu arquivo de saída os dados da produção de nêutrons, conforme descrito na seção 3.3.

O cálculo da produção média de nêutrons por próton incidente foi feito para cada simulação e os valores obtidos para cada alvo e os respectivos limites superiores para a incerteza relativa encontram-se na Tabela 14. O limite superior para a incerteza relativa é dado pelo inverso da raiz quadrada do número de prótons incidentes. Como em todas as simulações foram simulados 20.000 prótons incidentes, o valor de incerteza será de $20.000^{-1/2} \approx 0,7\%$.

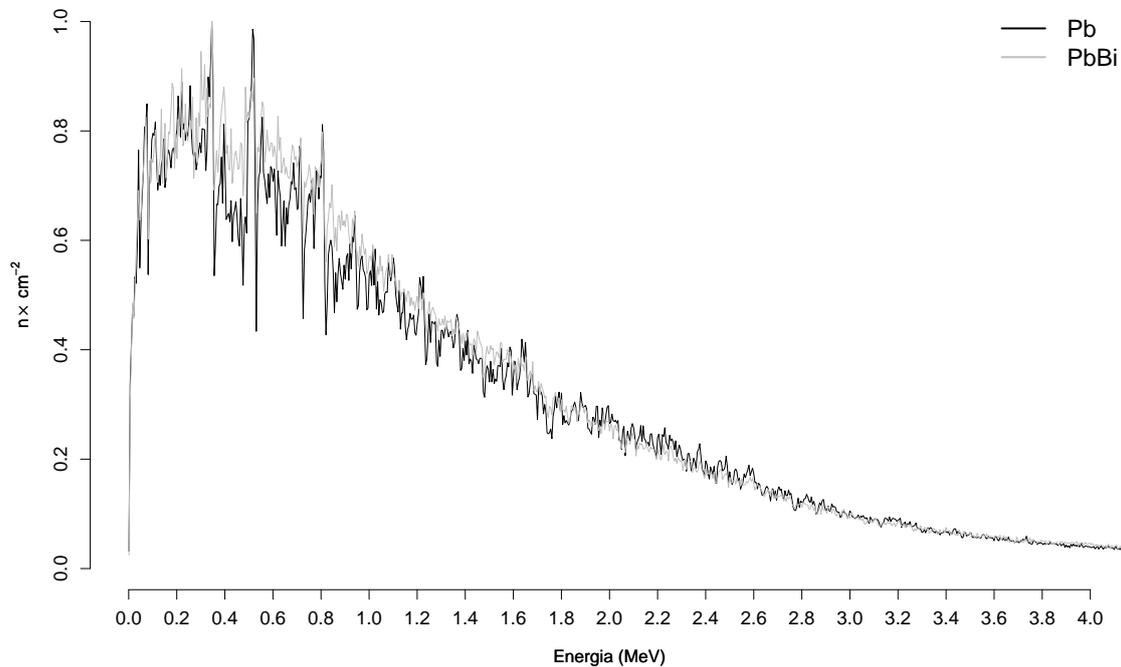
Tabela 14 – Produção de nêutrons para cada próton incidente de 1 GeV.

Material	(n/p)	Incerteza
Li-3	0,98	0,01
Be-4	4,03	0,03
W-74	29,48	0,21
Pb-82	26,23	0,18
Bi-83	24,75	0,17
Th-90	36,46	0,25
U-92	58,13	0,41
Pb-Bi	24,86	0,17

A Tabela 14 demonstra que a produção de nêutrons é maior em alvos de maior número atômico, visto que o alcance nuclear é menor em relação ao alcance eletrônico para núcleos leves, conforme descrito na seção 2.3.3. A Tabela 14 fornece os valores para a produção de nêutrons considerando que os materiais usados como alvo estão em estado sólido. Entretanto, como dito anteriormente a produção de nêutrons é maior quando se utilizam alvos líquidos. Então há que se considerar além da produção de nêutrons também a temperatura de fusão do material alvo. Dentre os alvos simulados, os mais utilizados nas propostas de ADS são o chumbo e a mistura de chumbo-bismuto. Isso porque esses alvos possuem um ponto de fusão relativamente baixo. O uso do urânio, por exemplo, seria inviável, pois seu ponto de fusão é muito alto (cerca de 1405,3 K).

A Figura 24 mostra os espectros de energia, obtidos nas simulações com o MCNPX, dos nêutrons produzidos nos alvo de chumbo e de chumbo-bismuto normalizados ao valor máximo. Vê-se que esses espectros são bastante parecidos, logo a escolha de um ou outro alvo não influenciará significativamente a distribuição de energia dos nêutrons do sistema.

Figura 24 – Espectro de energia dos nêutrons produzidos nos alvos.



4.2 Resultados das simulações dos combustíveis para ADS

Nesta seção serão apresentados os resultados das simulações dos combustíveis para ADS obtidos com os códigos MCNPX/CINDER90 e Monteburns (MCNP5/ORIGEN2.1).

Conforme dito anteriormente, após a simulação do alvo de *spallation* foi simulado o núcleo subcrítico utilizando o modo criticalidade (kcode) presente no código MCNPX. Esse modo para cálculo de criticalidade exige o uso de uma fonte inicial de nêutrons. Para a determinação dessa fonte foi utilizado o perfil de energia característico dos nêutrons gerados por reações de *spallation* (espectro de evaporação). Dessa forma, o perfil inicial do espectro de energia dos nêutrons do sistema simulado foi equivalente ao perfil dos nêutrons provenientes de reações *spallation* e dos nêutrons gerados por fissão no combustível.

As simulações de combustíveis realizadas com o MCNPX também foram realizadas com o código Monteburns, utilizando o modo fonte externa (SDEF) com a descrição da fonte igual a das simulações com o MCNPX (espectro de evaporação). Nesse código o fluxo proveniente da fonte externa é levado em conta durante todo o período de queima.

Foram feitas simulações de três combustíveis:

- Combustível 1: $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$;
- Combustível 2: 132 barras de $\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$ e 24 barras de combustível

queimado;

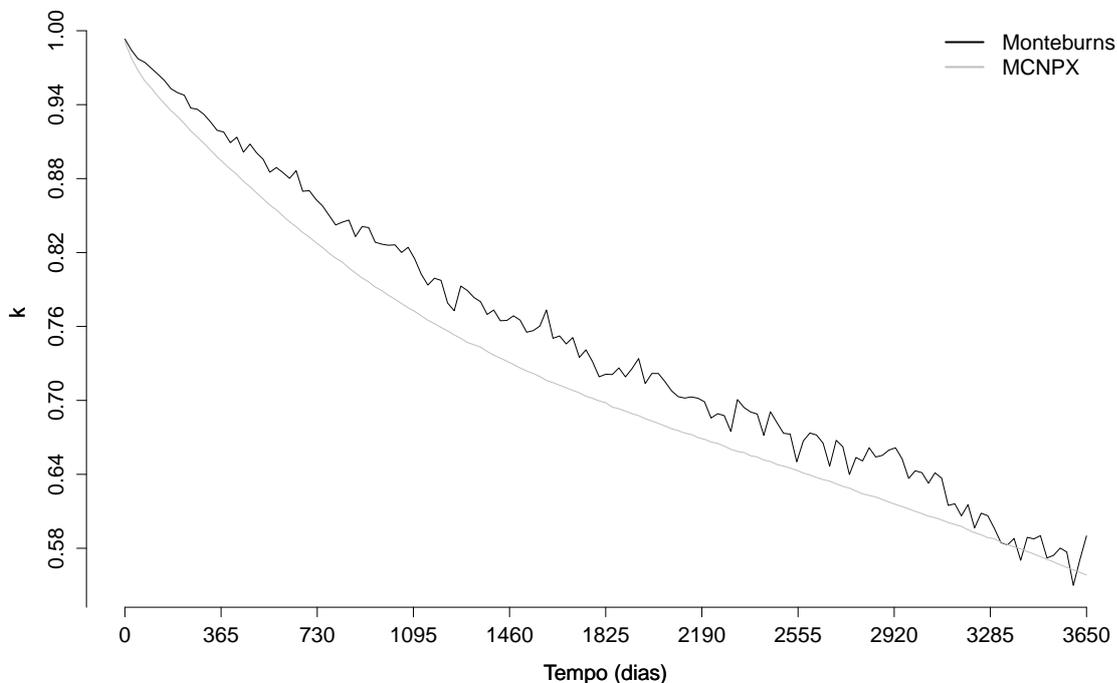
- Combustível 3: 120 barras de ThO_2 e 36 barras de combustível reprocessado.

Os resultados obtidos em cada uma dessas simulações, utilizando os dois códigos, serão apresentados a seguir.

4.2.1 Combustível 1: $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$

A Figura 25 mostra a evolução do fator de multiplicação (k) do sistema, para os dois códigos utilizados, durante os 10 anos de operação com o combustível inicial. Para o código MCNPX os valores plotados são valores de k_{eff} que representam apenas as reações de fissão no combustível, o fluxo proveniente da fonte externa é considerado apenas no início da queima. Já para o Monteburns os valores plotados são de k que representam a multiplicação no sistema (devido às reações de fissão no combustível e ao fluxo da fonte externa durante toda a queima). A queda no valor da criticalidade do sistema se deve ao aumento do envenenamento causado pelo acúmulo de produtos de fissão de alta seção de choque de captura radiativa e a constante geração de energia pelo sistema.

Figura 25 – Evolução do fator de multiplicação para o combustível 1.



A partir da Figura 25, observa-se que os valores de k calculados pelo Monteburns durante a queima apresentam maior oscilação do que os valores obtidos com o MCNPX. Esse comportamento parece ser influenciado pelo fluxo proveniente do alvo de *spallation*.

A Tabela 15 mostra os valores de k_{eff} e do desvio padrão calculados pelo MCNPX, e a Tabela 16 apresenta os valores de k e do desvio padrão obtidos com o MonteBurns.

Tabela 15 – k_{eff} e desvio padrão calculados pelo MCNPX para o combustível 1.

Tempo	k_{eff}	σ	Tempo	k_{eff}	σ	Tempo	k_{eff}	σ
0	0,99129	0,00040	1225	0,75642	0,00031	2450	0,65039	0,00027
25	0,97769	0,00040	1250	0,75314	0,00031	2475	0,64801	0,00027
50	0,96766	0,00038	1275	0,75039	0,00030	2500	0,64668	0,00026
75	0,95938	0,00039	1300	0,74704	0,00031	2525	0,64509	0,00027
100	0,95351	0,00036	1325	0,74516	0,00030	2550	0,64329	0,00027
125	0,94680	0,00035	1350	0,74324	0,00031	2575	0,64104	0,00026
150	0,94087	0,00036	1375	0,73973	0,00029	2600	0,63951	0,00026
175	0,93511	0,00038	1400	0,73673	0,00031	2625	0,63748	0,00028
200	0,93029	0,00036	1425	0,73427	0,00030	2650	0,63572	0,00026
225	0,92477	0,00037	1450	0,73181	0,00031	2675	0,63448	0,00027
250	0,91872	0,00038	1475	0,72918	0,00031	2700	0,63235	0,00026
275	0,91366	0,00037	1500	0,72633	0,00031	2725	0,63027	0,00028
300	0,90860	0,00037	1525	0,72389	0,00032	2750	0,62880	0,00027
325	0,90309	0,00036	1550	0,72186	0,00031	2775	0,62648	0,00026
350	0,89761	0,00038	1575	0,71937	0,00030	2800	0,62415	0,00027
375	0,89259	0,00037	1600	0,71620	0,00029	2825	0,62290	0,00027
400	0,88781	0,00037	1625	0,71440	0,00030	2850	0,62162	0,00028
425	0,88332	0,00035	1650	0,71231	0,00030	2875	0,61959	0,00027
450	0,87779	0,00036	1675	0,71024	0,00030	2900	0,61750	0,00027
475	0,87345	0,00033	1700	0,70815	0,00028	2925	0,61562	0,00027
500	0,86834	0,00036	1725	0,70614	0,00029	2950	0,61386	0,00026
525	0,86352	0,00035	1750	0,70338	0,00028	2975	0,61195	0,00028
550	0,85852	0,00033	1775	0,70167	0,00029	3000	0,60996	0,00027
575	0,85468	0,00034	1800	0,69960	0,00028	3025	0,60813	0,00027
600	0,84967	0,00033	1825	0,69812	0,00030	3050	0,60608	0,00026
625	0,84494	0,00035	1850	0,69454	0,00029	3075	0,60484	0,00026
650	0,84094	0,00034	1875	0,69325	0,00028	3100	0,60300	0,00027
675	0,83626	0,00034	1900	0,69122	0,00029	3125	0,60087	0,00025
700	0,83252	0,00035	1925	0,68926	0,00029	3150	0,59934	0,00027
725	0,82812	0,00033	1950	0,68763	0,00027	3175	0,59776	0,00024
750	0,82407	0,00035	1975	0,68517	0,00030	3200	0,59498	0,00026
775	0,81943	0,00034	2000	0,68329	0,00028	3225	0,59266	0,00026
800	0,81545	0,00034	2025	0,68133	0,00028	3250	0,59094	0,00026
825	0,81225	0,00033	2050	0,67927	0,00031	3275	0,58866	0,00026
850	0,80751	0,00031	2075	0,67699	0,00028	3300	0,58771	0,00027
875	0,80348	0,00032	2100	0,67551	0,00030	3325	0,58511	0,00025
900	0,79942	0,00032	2125	0,67344	0,00030	3350	0,58282	0,00025
925	0,79624	0,00033	2150	0,67232	0,00027	3375	0,58126	0,00024
950	0,79198	0,00032	2175	0,66985	0,00027	3400	0,57956	0,00025
975	0,78914	0,00033	2200	0,66844	0,00029	3425	0,57731	0,00025
1000	0,78532	0,00032	2225	0,66625	0,00028	3450	0,57539	0,00026
1025	0,78212	0,00032	2250	0,66513	0,00028	3475	0,57318	0,00026
1050	0,77864	0,00030	2275	0,66287	0,00026	3500	0,57099	0,00027
1075	0,77522	0,00030	2300	0,66034	0,00028	3525	0,56896	0,00027
1100	0,77221	0,00030	2325	0,65858	0,00028	3550	0,56657	0,00024
1125	0,76865	0,00031	2350	0,65772	0,00027	3575	0,56450	0,00024
1150	0,76505	0,00031	2375	0,65509	0,00027	3600	0,56249	0,00026
1175	0,76227	0,00031	2400	0,65409	0,00028	3625	0,56045	0,00025
1200	0,75925	0,00031	2425	0,65161	0,00027	3650	0,55836	0,00024

Tabela 16 – k e desvio padrão calculados pelo Monteburns para o combustível 1.

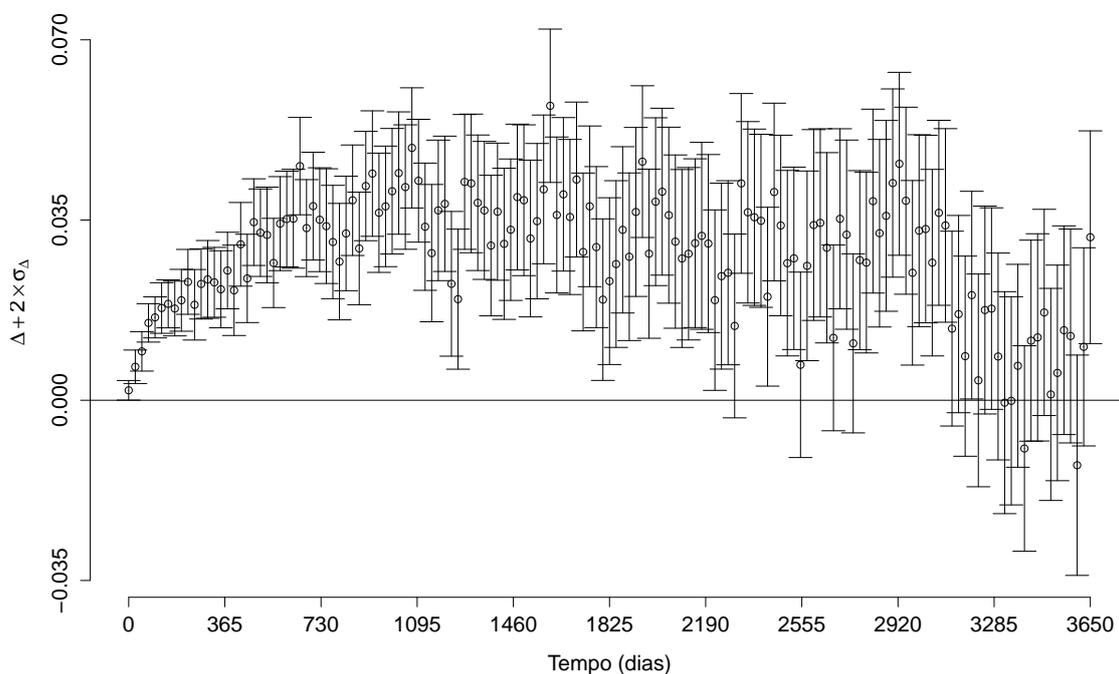
Tempo	k	σ	Tempo	k	σ	Tempo	k	σ
0	0.99322	0.00086	1225	0.77903	0.00702	2450	0.69083	0.00862
25	0.98419	0.00157	1250	0.77277	0.00679	2475	0.68195	0.00876
50	0.97715	0.00188	1275	0.79279	0.00654	2500	0.67330	0.00900
75	0.97440	0.00182	1300	0.78915	0.00672	2525	0.67265	0.00885
100	0.96960	0.00196	1325	0.78351	0.00657	2550	0.65017	0.00900
125	0.96471	0.00243	1350	0.78011	0.00669	2575	0.66714	0.00921
150	0.95959	0.00230	1375	0.76977	0.00682	2600	0.67354	0.00926
175	0.95292	0.00263	1400	0.77335	0.00665	2625	0.67193	0.00913
200	0.94970	0.00298	1425	0.76465	0.00733	2650	0.66533	0.00923
225	0.94776	0.00313	1450	0.76493	0.00686	2675	0.64660	0.00902
250	0.93726	0.00340	1475	0.76864	0.00707	2700	0.66759	0.00874
275	0.93625	0.00339	1500	0.76517	0.00732	2725	0.66243	0.00918
300	0.93207	0.00376	1525	0.75530	0.00761	2750	0.63985	0.00869
325	0.92599	0.00337	1550	0.75664	0.00754	2775	0.65369	0.00869
350	0.91916	0.00372	1575	0.76032	0.00722	2800	0.65088	0.00877
375	0.91778	0.00370	1600	0.77339	0.00744	2825	0.66157	0.00892
400	0.90916	0.00437	1625	0.75038	0.00756	2850	0.65406	0.00910
425	0.91360	0.00405	1650	0.75230	0.00745	2875	0.65540	0.00926
450	0.90145	0.00427	1675	0.74583	0.00753	2900	0.65968	0.00914
475	0.90804	0.00420	1700	0.75101	0.00752	2925	0.66154	0.00888
500	0.90088	0.00423	1725	0.73494	0.00766	2950	0.65261	0.00908
525	0.89562	0.00463	1750	0.74104	0.00780	2975	0.63670	0.00896
550	0.88518	0.00432	1775	0.73141	0.00781	3000	0.64289	0.00932
575	0.88898	0.00455	1800	0.71914	0.00784	3025	0.64138	0.00910
600	0.88487	0.00464	1825	0.72125	0.00809	3050	0.63280	0.00906
625	0.88019	0.00479	1850	0.72099	0.00809	3075	0.64124	0.00898
650	0.88641	0.00472	1875	0.72634	0.00807	3100	0.63695	0.00940
675	0.86969	0.00470	1900	0.71909	0.00813	3125	0.61478	0.00946
700	0.87022	0.00522	1925	0.72583	0.00820	3150	0.61607	0.00957
725	0.86318	0.00503	1950	0.73397	0.00736	3175	0.60632	0.00971
750	0.85788	0.00556	1975	0.71363	0.00821	3200	0.61539	0.01008
775	0.85016	0.00549	2000	0.72185	0.00814	3225	0.59652	0.01033
800	0.84237	0.00564	2025	0.72183	0.00810	3250	0.60846	0.01009
825	0.84464	0.00555	2050	0.71521	0.00854	3275	0.60646	0.00978
850	0.84635	0.00536	2075	0.70780	0.00841	3300	0.59621	0.01004
875	0.83296	0.00546	2100	0.70304	0.00863	3325	0.58464	0.01077
900	0.84102	0.00530	2125	0.70189	0.00837	3350	0.58271	0.01010
925	0.84026	0.00608	2150	0.70282	0.00819	3375	0.58795	0.00985
950	0.82839	0.00578	2175	0.70178	0.00907	3400	0.57019	0.00997
975	0.82679	0.00585	2200	0.69887	0.00864	3425	0.58888	0.00976
1000	0.82591	0.00609	2225	0.68569	0.00876	3450	0.58760	0.01006
1025	0.82624	0.00593	2250	0.68923	0.00902	3475	0.59023	0.01001
1050	0.82004	0.00604	2275	0.68763	0.00893	3500	0.57212	0.01029
1075	0.82423	0.00583	2300	0.67477	0.00892	3525	0.57427	0.01046
1100	0.81484	0.00596	2325	0.70069	0.00872	3550	0.58017	0.01013
1125	0.80235	0.00617	2350	0.69422	0.00880	3575	0.57698	0.01038
1150	0.79362	0.00666	2375	0.69063	0.00856	3600	0.54987	0.01069
1175	0.79914	0.00682	2400	0.68894	0.00840	3625	0.57082	0.00962
1200	0.79740	0.00656	2425	0.67172	0.00868	3650	0.59002	0.01033

Vê-se que, como era esperado, os valores de k obtidos na simulação com o Monteburns são ligeiramente superiores aos valores obtidos com o MCNPX. Isso porque, como dito na seção 3.2, o Monteburns considera o fluxo de nêutrons proveniente das reações de

spallation durante todo o período de queima. Para o Monteburns, os valores de k variaram de $k=0,99$ a $k=0,59$ durante os 10 anos de queima. Já para o MCNPX os valores de k variaram de $0,99$ a $0,55$.

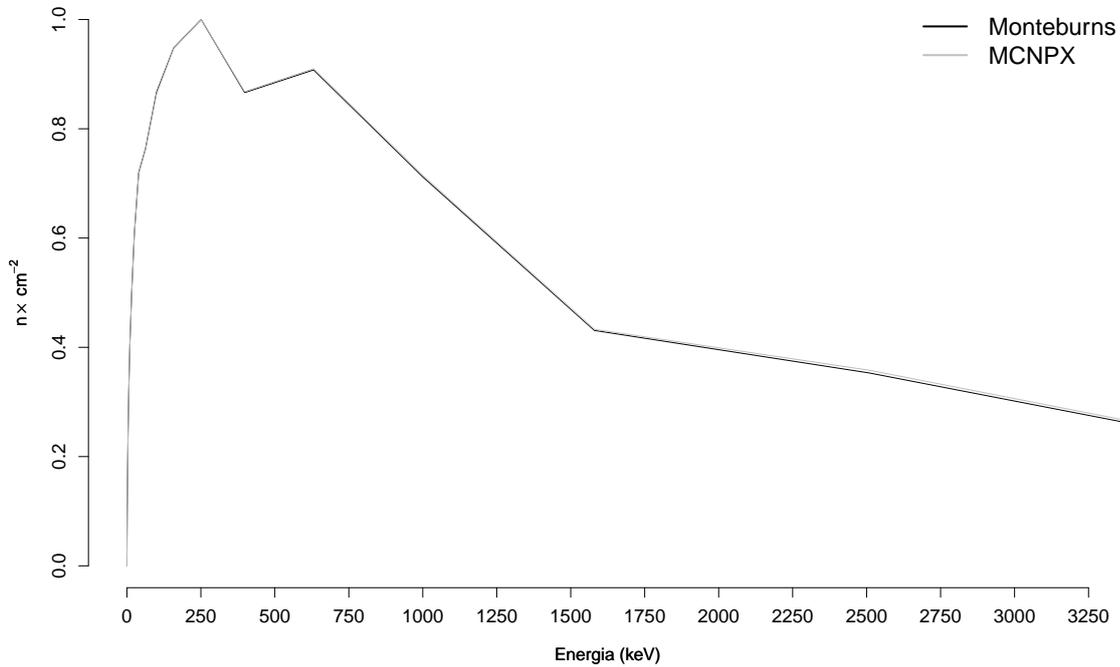
A Figura 26 mostra a diferença entre os valores de k obtidos com os dois códigos (Monteburns - MCNPX) juntamente com o intervalo de confiança de $\approx 95\%$ (2σ). Como o limite superior de todos os intervalos é positivo, pode-se concluir que os valores obtidos com o Monteburns são em geral superiores aos valores gerados pelo MCNPX. A diferença média entre os valores dos coeficientes de multiplicação foi de $0,028$. No início da queima a diferença entre os valores de k calculados pelos dois códigos é bem pequena (cerca de $0,002$). Essa diferença aumenta bastante no decorrer da queima, o que indica que a diferença entre os k calculados pelos códigos se deve principalmente ao fato de o MCNPX não considerar os nêutrons provenientes do alvo durante a queima.

Figura 26 – Diferença entre os valores de k obtidos com o Monteburns e com o MCNPX.



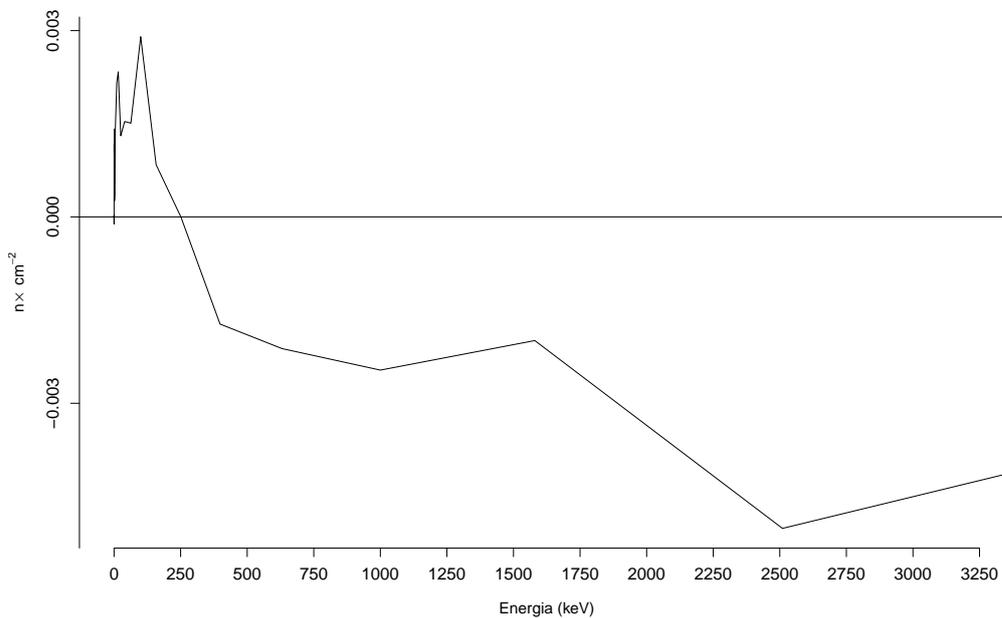
A Figura 27 mostra os espectros de energia dos nêutrons, normalizados ao valor máximo, obtidos no volume correspondente às barras combustível no início da queima utilizando as *tallies* F4 e E4. O valor mais provável de energia dos nêutrons é cerca de 250 keV para os dois códigos, esse valor será utilizado na análise da evolução do combustível.

Figura 27 – Espectro de energia dos nêutrons no combustível 1.



A distribuição de energia dos nêutrons no início da queima é bem similar nos dois códigos. A Figura 28 representa a diferença entre os espectros obtidos com o Monteburns e com o MCNPX.

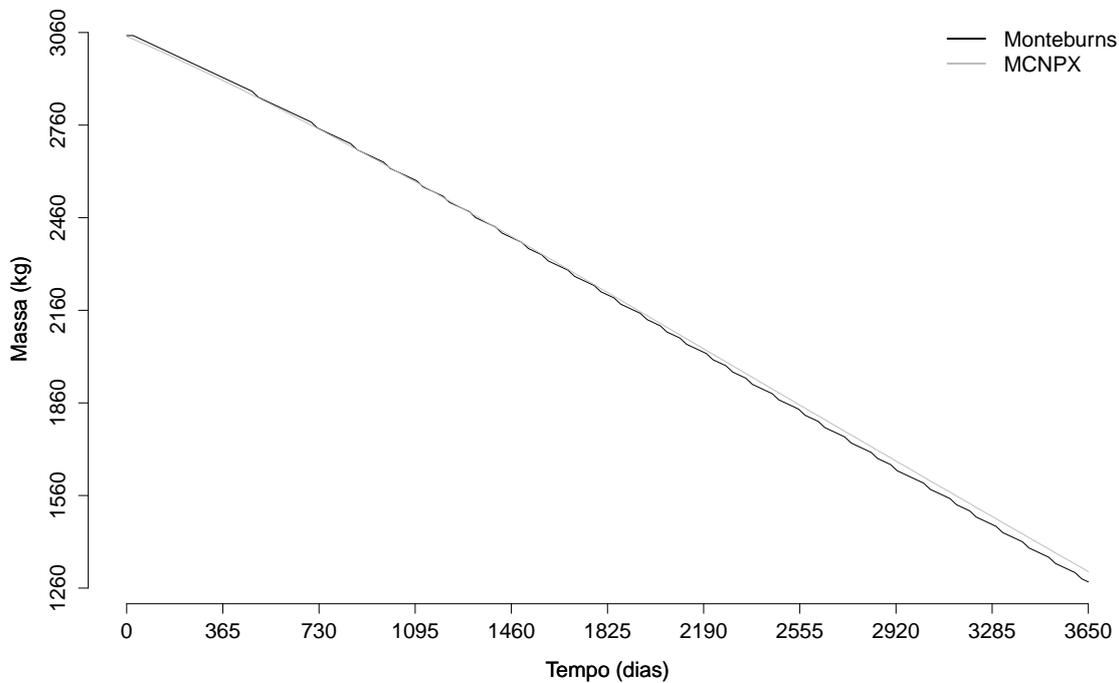
Figura 28 – Diferença entre os espectros de energia obtidos com o Monteburns e com o MCNPX.



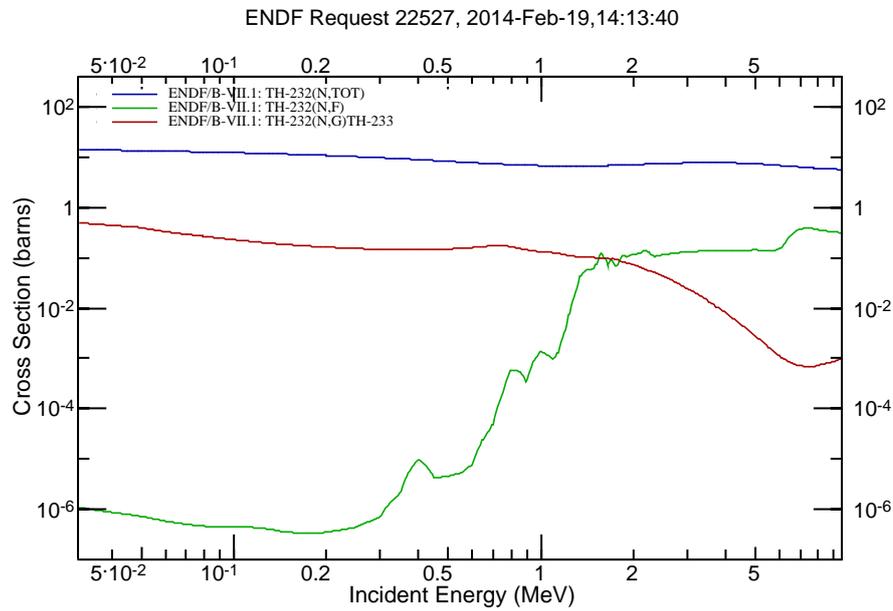
4.2.1.1 Evolução do combustível

A Figura 29 mostra a evolução na quantidade do isótopo ^{232}Th durante o período de operação para os dois códigos utilizados. Observa-se que houve uma redução de $\approx 57\%$ na quantidade desse isótopo, o que representa um consumo de mais de 1700 kg. Essa redução é resultado de sua alta seção de choque de captura radiativa que permite a produção de ^{233}U .

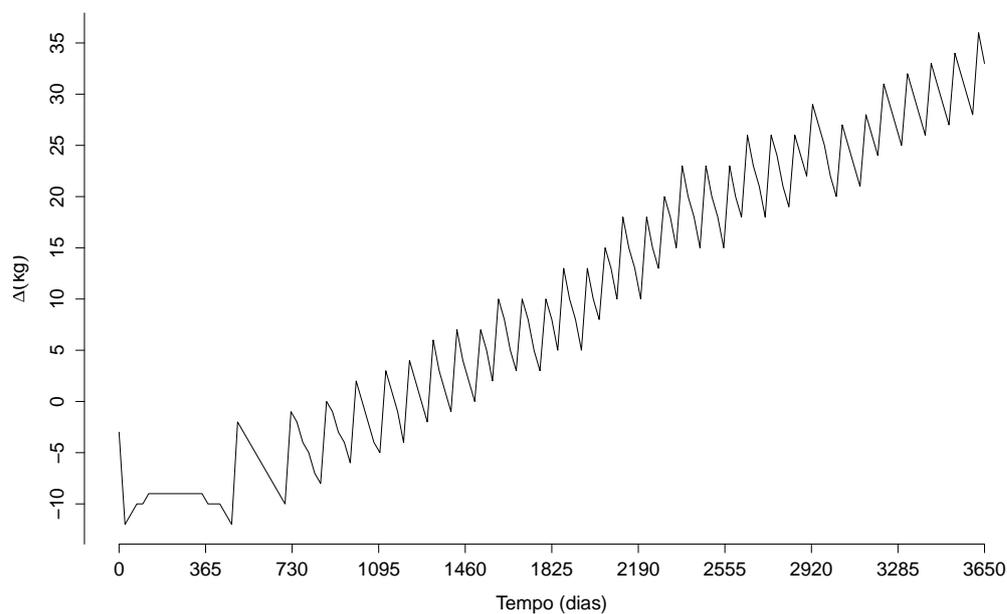
Figura 29 – Variação isotópica do ^{232}Th para os códigos MCNPX e Monteburns.



A Figura 30 ilustra as seções de choque total, fissão e captura radiativa (n,γ) para o ^{232}Th . A partir dessa figura, pode-se ver que, para o valor mais provável de energia dos nêutrons (0,250 MeV), a seção de choque total de absorção é de cerca de 10 barns, enquanto que a seção de choque de captura radiativa é de ≈ 1 barn. Assim, cerca de 10% das interações com esse isótopo irão gerar reações de captura radiativa, que produzirão ^{233}Th que gerará, através de 2 decaimentos β , o ^{233}U . Essa figura também permite visualizar que o ^{232}Th contribuirá pouco para a criticalidade do sistema, uma vez que sua seção de choque de fissão na região de interesse é relativamente baixa ($< 10^{-6}$).

Figura 30 – Seções de choque microscópica para o ^{232}Th .

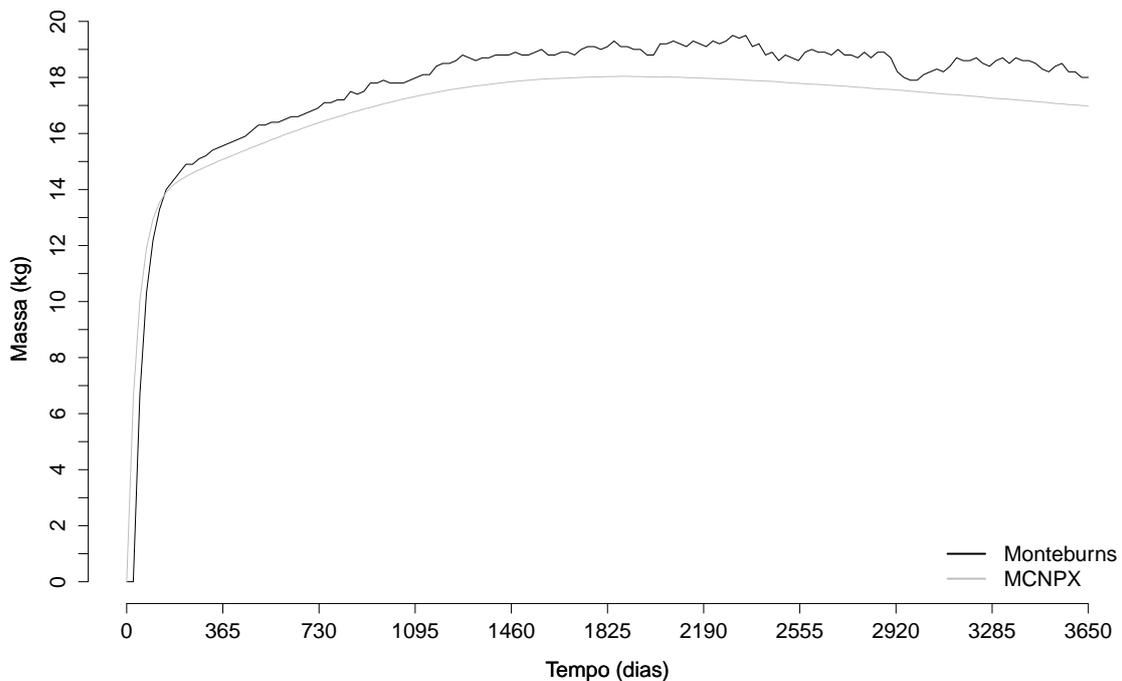
A Figura 31 mostra a diferença entre as massas de ^{232}Th calculadas pelo MCNPX e pelo Monteburns.

Figura 31 – Diferença entre as variações isotópicas do ^{232}Th (MCNPX - Monteburns).

No início da queima a massa de ^{232}Th calculada pelo MCNPX é um pouco menor do que à calculada pelo Monteburns. Entretanto, ao longo da queima, a quantidade desse isótopo calculada pelo MCNPX torna-se superior a calculada pelo Monteburns. A diferença média entre a massa calculada pelos dois códigos é de ≈ 9 kg, sendo que ao final da queima o valor calculado pelo MCNPX é superior ao calculado pelo Monteburns em 36 kg ($\approx 3\%$ da massa calculada pelo MCNPX). Essa diferença é explicada pelo fato de os valores do fator de multiplicação no MCNPX terem sido menores do que os calculados pelo Monteburns. Com uma menor disponibilidade de nêutrons para a regeneração de tório, o consumo desse isótopo será menor na simulação em que os valores de k foram menores.

A Figura 32 mostra a produção de ^{233}Pa para os dois códigos.

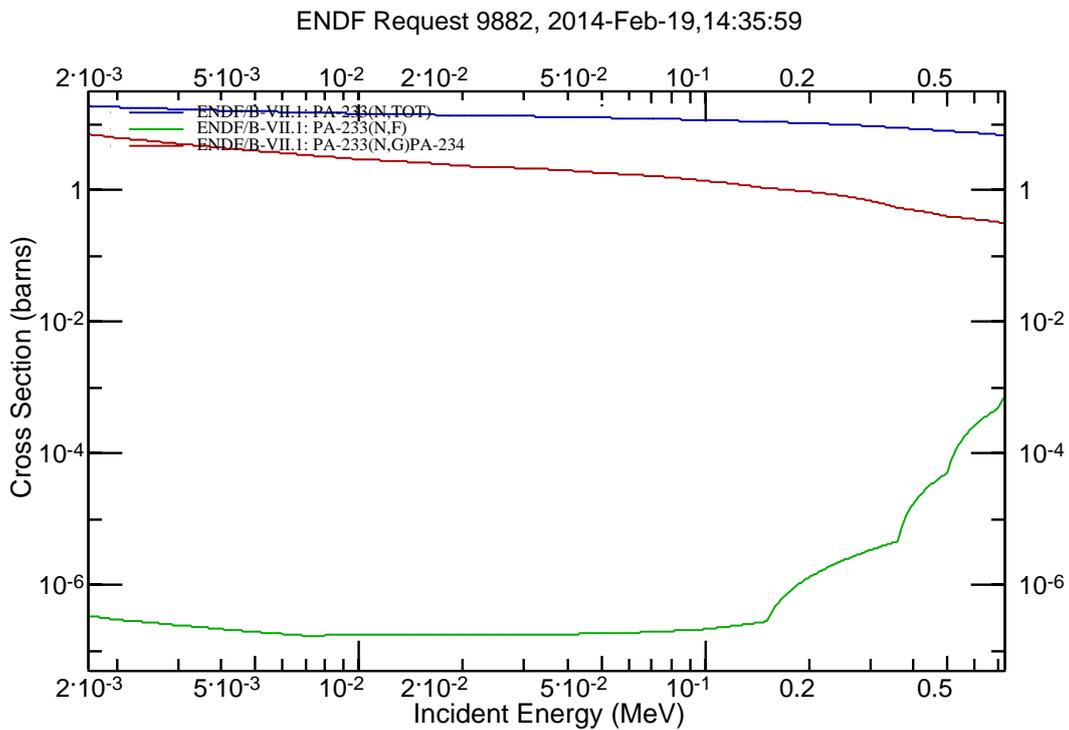
Figura 32 – Variação isotópica do ^{233}Pa para os dois códigos (MCNPX - Monteburns).



Conforme dito na seção 2.3.1, o efeito protactínio é um dos principais problemas do ciclo Th/U. A produção de ^{233}Pa foi relativamente baixa (cerca de 18 kg), indicando a não necessidade da adoção de medidas corretivas através da inserção de reatividade negativa após o desligamento do sistema. Durante o período de operação o efeito protactínio foi reduzido através do uso de nêutrons de alta energia, o que diminui a probabilidade de captura de nêutrons pelo ^{233}Pa e aumenta a probabilidade de que ele decaia em ^{233}U .

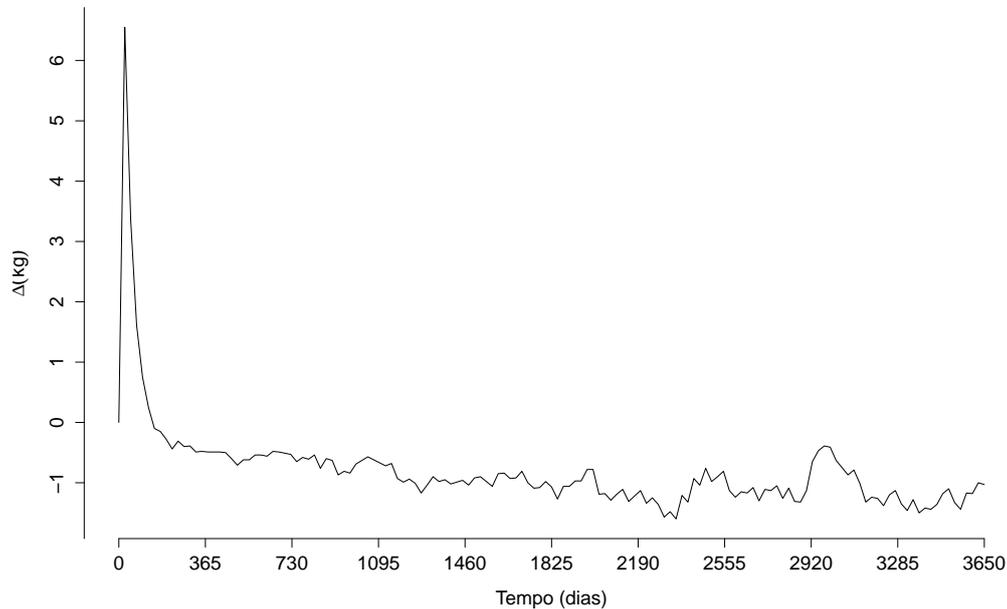
A Figura 33 mostra as seções de choque total, de fissão e de captura radiativa para o ^{233}Pa .

Figura 33 – Seções de choque microscópicas para o ^{233}Pa .

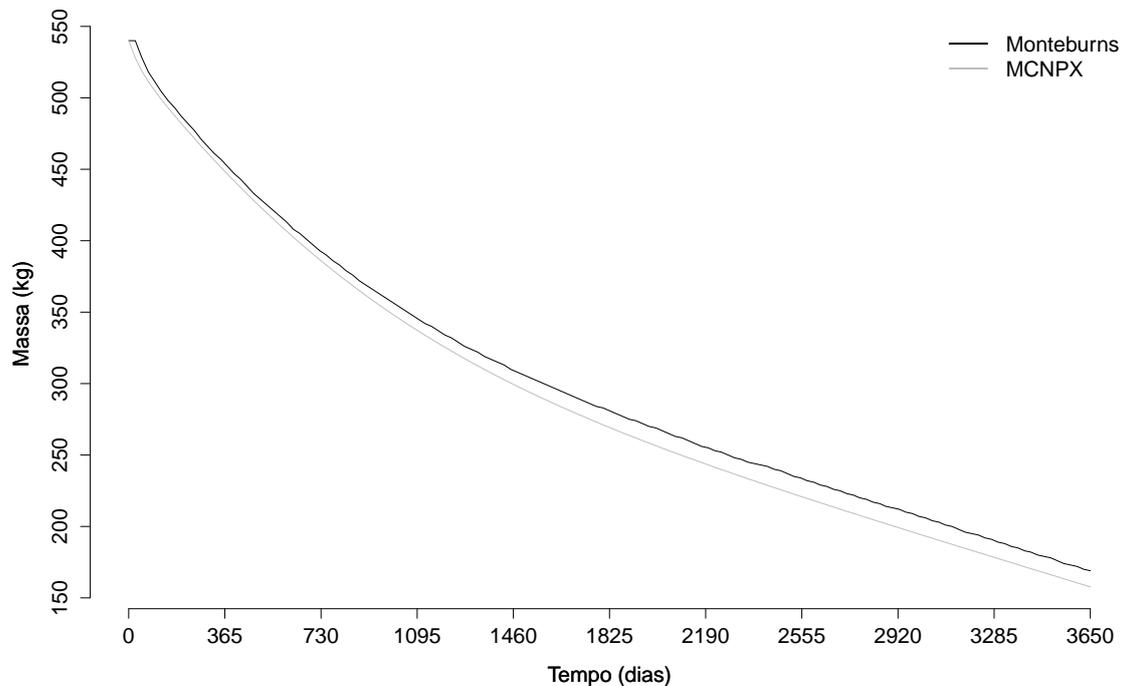


Verifica-se que, para a energia de 0,250 MeV, a seção de choque de captura é muito baixa (cerca de 1 barn), representando 10% da seção de choque total de absorção que também é baixa quando comparada a seção de choque de absorção para energias da faixa térmica. Essa análise permite concluir que se houvesse sido utilizado algum tipo de material moderador, o efeito negativo na reatividade do sistema causado pelo ^{233}Pa teria sido mais pronunciado. Sendo assim, o uso de nêutrons rápidos favorece a manutenção da reatividade do sistema e também a regeneração de combustível, já que haverá maior disponibilidade de ^{233}Pa para decair (através de um decaimento β) em ^{233}U .

Na Figura 34 é mostrada a diferença entre as massas de ^{233}Pa calculadas pelos dois códigos. A massa calculada pelo MCNPX foi em geral inferior aos valores calculados pelo Monteburns; a diferença média foi de -0,8 kg. Como o consumo de ^{232}Th foi menor na simulação com o MCNPX é esperado que a produção de ^{233}Pa também seja menor nesse código.

Figura 34 – Diferença entre as variações isotópicas do ^{233}Pa (MCNPX - MonteBurns).

A Figura 35 mostra a evolução da quantidade de ^{233}U calculada pelos dois códigos.

Figura 35 – Variação isotópica do ^{233}U para os códigos MCNPX e MonteBurns.

Ao se verificar a evolução da quantidade de ^{233}U , observa-se que houve uma diminuição da quantidade desse isótopo ao longo do período de operação apesar de sua

contínua produção através da regeneração do tório. O combustível inicial foi utilizado para a geração de potência ($515 MW_t$) durante 10 anos, o que justifica a redução da quantidade de ^{233}U , uma vez que esse é o principal isótopo físsil do sistema.

Neste ponto, torna-se importante verificar a taxa de *burnup* do sistema simulado. Para isso, é preciso avaliar a taxa de fissões no sistema, que é dada, de acordo com Lamarsh (1983), por:

$$\text{Taxa de fissões} = P_{MW} \times \frac{10^6 J}{MW.s} \times \frac{\text{fissões}}{191 \text{ MeV}} \times \frac{\text{MeV}}{1.60 \times 10^{-13} J} \times \frac{86400s}{\text{dia}}, \quad (4.1)$$

em que P é a potência em MW e 191 MeV é a energia recuperável por fissão para o ^{233}U .

Sendo assim:

$$\text{Taxa de fissões} = 2.83 \times 10^{21} \times P \text{ fissões}/\text{dia}. \quad (4.2)$$

A massa do combustível fissionada (queimada) por unidade de tempo é chamada de taxa de queima ou taxa de *burnup*. Para o ^{233}U essa taxa é dada por:

$$\text{Taxa de burnup} = 2.83 \times 10^{21} \times P \times 233/6.022 \times 10^{23} = 1.09 \times P \text{ g}/\text{dia} \quad (4.3)$$

Contudo, o ^{233}U pode absorver nêutron sem provocar fissão, ele pode sofrer captura radiativa e ser consumido. Então, o ^{233}U é consumido por meio de fissões e capturas radiativas.

O número de absorções é proporcional a σ_a e destas absorções o número de fissões é proporcional a σ_f . Logo, o consumo de combustível será:

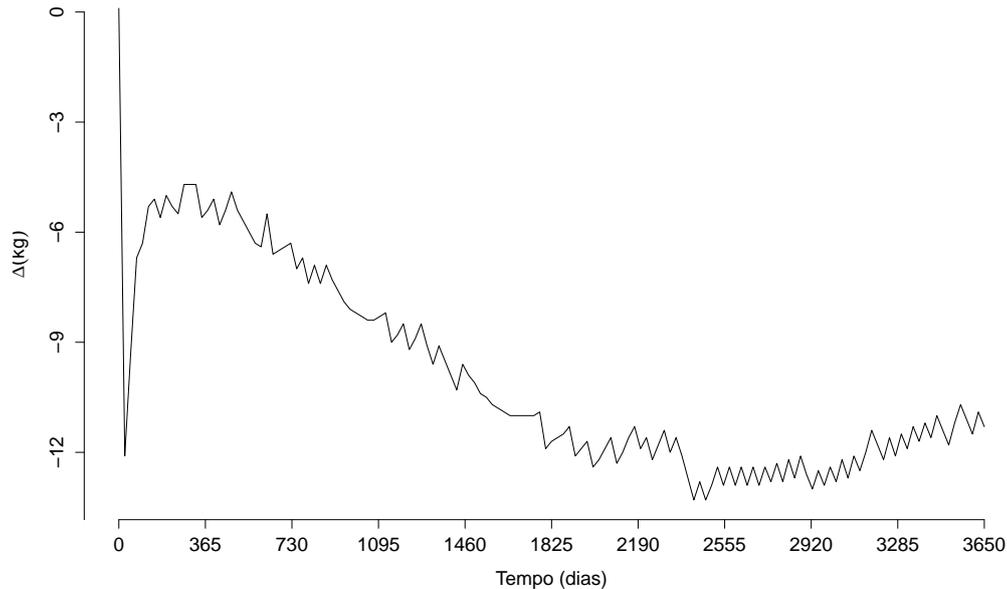
$$\text{Taxa de consumo} = 1.09 \times \frac{\sigma_a}{\sigma_f} P \text{ g}/\text{dia} = 1.09 \times (1 + \alpha) P \text{ g}/\text{dia}, \quad (4.4)$$

em que $\alpha = \frac{\sigma_a}{\sigma_f}$, para o ^{233}U $\alpha = 0,0899$.

Assim, o sistema simulado fissiona cerca de 611,81 g/dia de ^{233}U , já que o sistema opera a uma potência de 515 MW_t . Desse modo, durante os 10 anos de operação ele consome ≈ 2233 kg desse isótopo. Entretanto, a redução na quantidade inicial de ^{233}U foi de ≈ 380 kg durante os 10 anos de operação, indicando que nem todo ^{233}U utilizado na geração de potência provém do carregamento inicial. A maior parte do ^{233}U queimado advém da conversão do ^{232}Th .

A Figura 36 mostra a diferença entre as massas de ^{233}U calculadas pelos dois códigos. Verifica-se que a produção de ^{233}U foi um pouco menor na simulação com o MCNPX, o que pode ser resultado do menor consumo de ^{232}Th nessa simulação. A diferença média entre as massas foi de -9,93 kg.

Figura 36 – Diferença entre as variações isotópicas do ^{233}U (MCNPX - Monteburns).



A Tabela 17 mostra as massas iniciais e finais, calculadas pelo Monteburns, dos isótopos analisados.

Tabela 17 – Variação isotópica no combustível 1.

Isótopo	Massa inicial (kg)	Massa final (kg)
^{232}Th	3050	1280
^{233}Pa	0	19,50
^{233}U	540	169

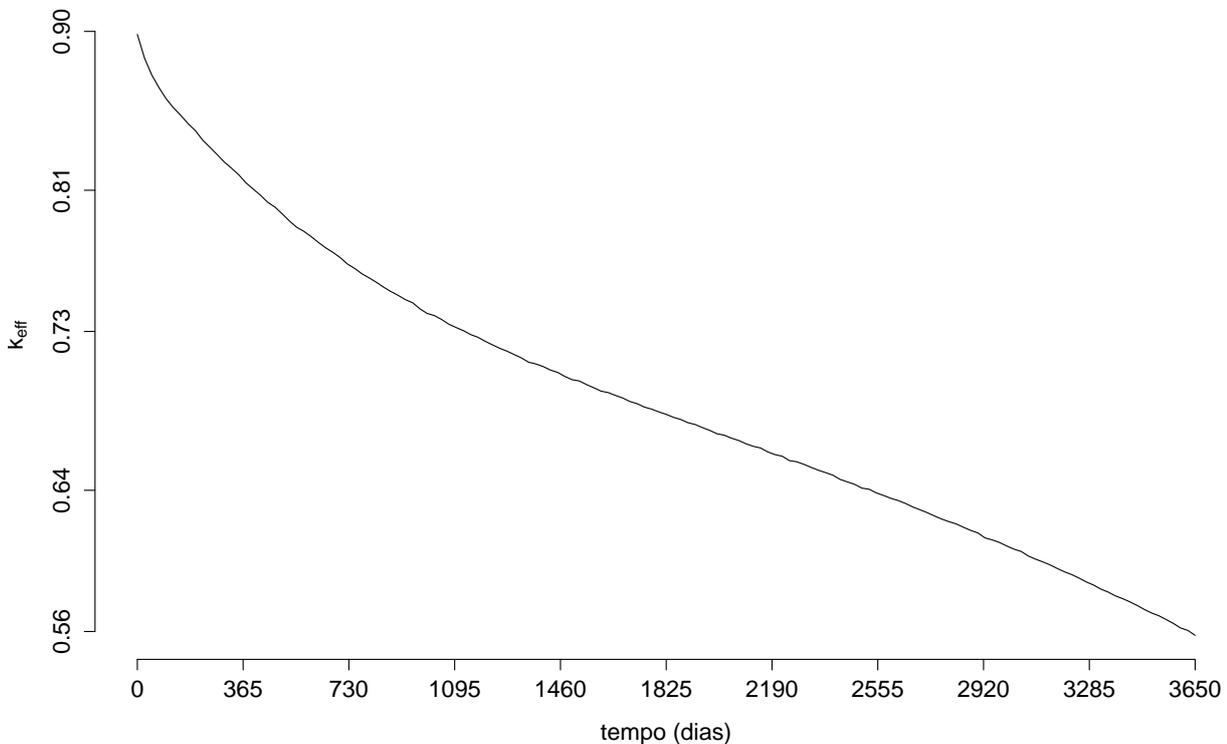
4.2.2 Combustível 2: barras de $\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$ e barras de combustível queimado

Para este combustível somente serão apresentados os resultados obtidos com o código MCNPX, isso porque não foi possível simular no Monteburns a evolução deste combustível durante os 10 anos de operação. No Monteburns só foi possível simular a evolução deste combustível por cerca de 600 dias. A versão do código ORIGEN utilizada não permite armazenar e acompanhar mais que 100 isótopos. Como foi utilizado combustível

queimado, sem nenhum tipo de reprocessamento, a quantidade de isótopos iniciais já é bastante elevada o que faz com que esse armazenamento se esgote logo no início da queima. Como esta limitação no número de isótopos armazenados não ocorre com o CINDER90, foi possível simular este combustível no MCNPX durante os 10 anos. Por isso, serão apresentados apenas os resultados gerados pelo MCNPX.

A Figura 37 mostra a evolução do k_{eff} na simulação do combustível 2 com o código MCNPX.

Figura 37 – Evolução do fator de multiplicação efetivo para o combustível 2.



Os valores de k_{eff} variaram de 0,898 a 0,558. A queda na criticalidade é consequência do envenenamento causado pelo acúmulo de produtos de fissão e também pela constante geração de energia pelo sistema, que implica uma diminuição dos isótopos físeis e consequente diminuição na população de nêutrons do sistema.

A Tabela 18 mostra os valores de k_{eff} e do desvio padrão calculados pelo MCNPX para o combustível 2.

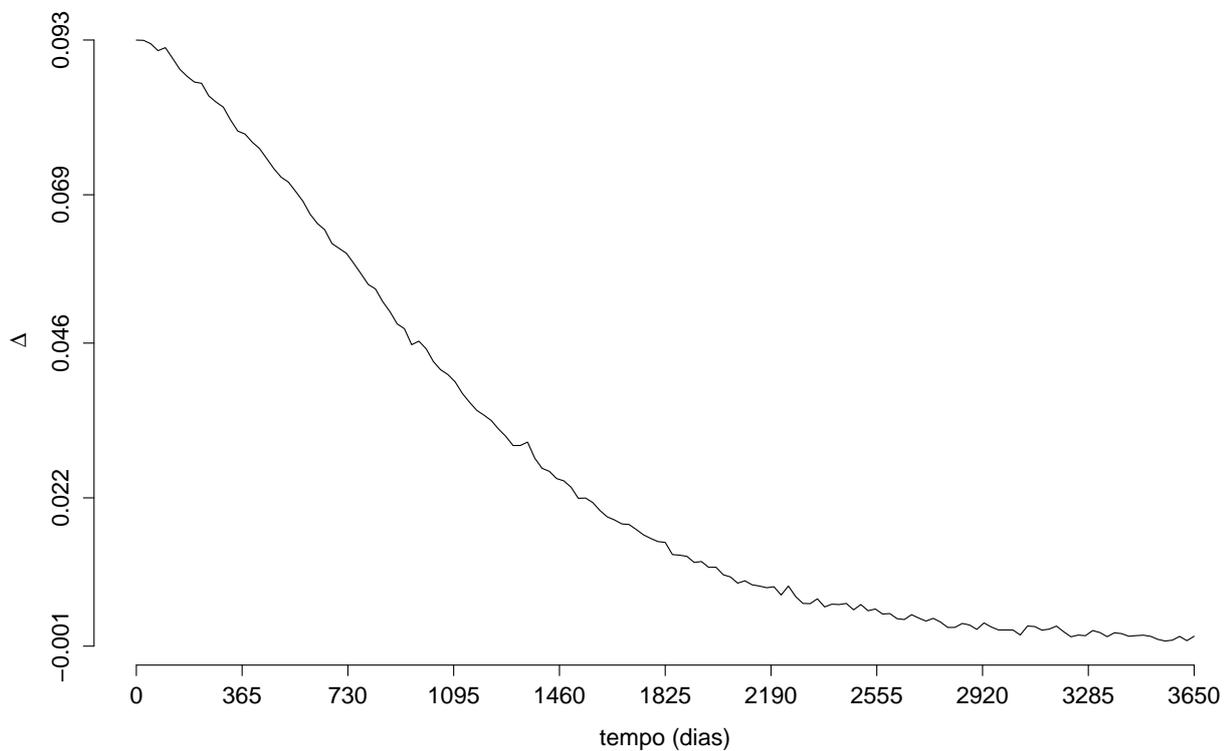
Tabela 18 – k_{eff} e desvio padrão calculados pelo MCNPX para o combustível 2.

Tempo	k_{eff}	σ	Tempo	k_{eff}	σ	Tempo	k_{eff}	σ
0	0,89830	0,00039	1225	0,72244	0,00031	2450	0,64477	0,00026
25	0,88474	0,00037	1250	0,72048	0,00029	2475	0,64338	0,00027
50	0,87524	0,00036	1275	0,71886	0,00028	2500	0,64123	0,00029
75	0,86803	0,00035	1300	0,71693	0,00031	2525	0,64060	0,00027
100	0,86169	0,00035	1325	0,71504	0,00029	2550	0,63853	0,00026
125	0,85663	0,00035	1350	0,71259	0,00029	2575	0,63706	0,00027
150	0,85241	0,00034	1375	0,71159	0,00029	2600	0,63546	0,00025
175	0,84773	0,00035	1400	0,71015	0,00028	2625	0,63422	0,00028
200	0,84380	0,00036	1425	0,70815	0,00030	2650	0,63259	0,00025
225	0,83848	0,00037	1450	0,70682	0,00028	2675	0,63060	0,00027
250	0,83439	0,00035	1475	0,70454	0,00029	2700	0,62900	0,00025
275	0,83028	0,00037	1500	0,70268	0,00029	2725	0,62738	0,00027
300	0,82600	0,00035	1525	0,70196	0,00028	2750	0,62549	0,00027
325	0,82249	0,00034	1550	0,69989	0,00028	2775	0,62375	0,00025
350	0,81873	0,00035	1575	0,69810	0,00030	2800	0,62225	0,00027
375	0,81417	0,00033	1600	0,69618	0,00029	2825	0,62099	0,00025
400	0,81065	0,00033	1625	0,69535	0,00028	2850	0,61910	0,00025
425	0,80715	0,00031	1650	0,69374	0,00029	2875	0,61731	0,00026
450	0,80318	0,00034	1675	0,69228	0,00029	2900	0,61590	0,00027
475	0,80043	0,00032	1700	0,69028	0,00028	2925	0,61302	0,00026
500	0,79662	0,00033	1725	0,68905	0,00028	2950	0,61189	0,00026
525	0,79256	0,00033	1750	0,68712	0,00030	2975	0,61044	0,00026
550	0,78902	0,00031	1775	0,68597	0,00028	3000	0,60845	0,00025
575	0,78669	0,00032	1800	0,68438	0,00028	3025	0,60663	0,00025
600	0,78370	0,00034	1825	0,68303	0,00028	3050	0,60535	0,00027
625	0,78040	0,00032	1850	0,68134	0,00028	3075	0,60272	0,00025
650	0,77736	0,00033	1875	0,68014	0,00027	3100	0,60096	0,00023
675	0,77482	0,00032	1900	0,67830	0,00027	3125	0,59939	0,00024
700	0,77184	0,00032	1925	0,67728	0,00028	3150	0,59770	0,00025
725	0,76820	0,00031	1950	0,67551	0,00028	3175	0,59565	0,00025
750	0,76569	0,00032	1975	0,67395	0,00028	3200	0,59375	0,00026
775	0,76266	0,00030	2000	0,67204	0,00027	3225	0,59221	0,00024
800	0,76035	0,00032	2025	0,67125	0,00028	3250	0,59022	0,00024
825	0,75785	0,00029	2050	0,66954	0,00027	3275	0,58804	0,00025
850	0,75507	0,00032	2075	0,66822	0,00027	3300	0,58629	0,00025
875	0,75260	0,00031	2100	0,66638	0,00028	3325	0,58400	0,00023
900	0,75044	0,00031	2125	0,66493	0,00027	3350	0,58235	0,00025
925	0,74801	0,00029	2150	0,66400	0,00027	3375	0,58019	0,00024
950	0,74623	0,00031	2175	0,66179	0,00028	3400	0,57862	0,00024
975	0,74284	0,00031	2200	0,66023	0,00029	3425	0,57678	0,00023
1000	0,74020	0,00030	2225	0,65932	0,00028	3450	0,57476	0,00023
1025	0,73899	0,00031	2250	0,65681	0,00028	3475	0,57248	0,00025
1050	0,73678	0,00031	2275	0,65618	0,00026	3500	0,57047	0,00025
1075	0,73409	0,00031	2300	0,65471	0,00028	3525	0,56891	0,00025
1100	0,73222	0,00030	2325	0,65299	0,00027	3550	0,56678	0,00024
1125	0,73046	0,00029	2350	0,65138	0,00028	3575	0,56457	0,00025
1150	0,72824	0,00031	2375	0,65001	0,00027	3600	0,56198	0,00024
1175	0,72672	0,00029	2400	0,64858	0,00026	3625	0,56060	0,00023
1200	0,72444	0,00031	2425	0,64616	0,00027	3650	0,55783	0,00024

É possível comparar os resultados obtidos da simulação do combustível 2 com os resultados da simulação do combustível 1. Isso porque o combustível 2 foi montado a partir do combustível 1, houve apenas a substituição do combustível a base de tório de 24

barras por combustível queimado. A Figura 38 mostra a diferença entre os valores de k_{eff} obtidos com o combustível 1 e os valores de k_{eff} obtidos com o combustível 2.

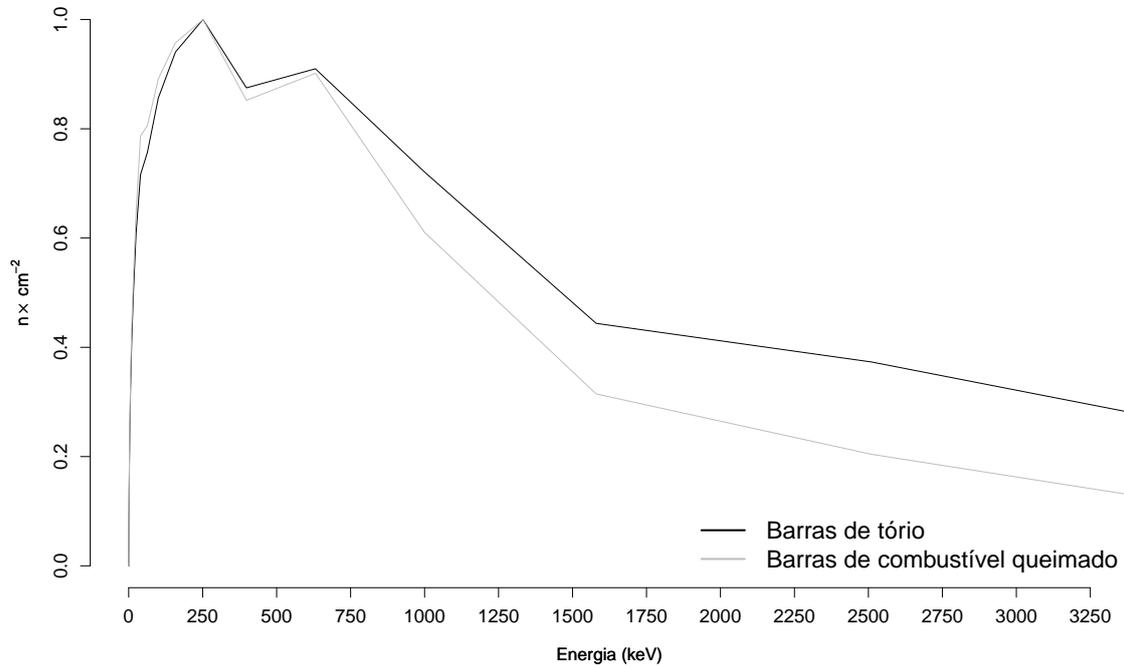
Figura 38 – Diferença entre os valores k_{eff} obtidos com o combustível 1 e com o combustível 2.



Observa-se que os valores de k_{eff} tornam-se menores com a inserção de combustível queimado. Essa diferença se dá porque quando se substitui barras com $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% ^{233}\text{UO}_2$ por barras com combustível queimado reduz-se o percentual de isótopos físeis no sistema. Com o decorrer da queima a diferença se torna menor.

A Figura 39 mostra o espectro de energia dos nêutrons nas barras de combustível a base de tório e nas barras de combustível queimado no início do período de operação *Beginning Of Life* (BOL), os espectros foram normalizados ao valor máximo. Em ambos os espectros o pico se situa próximo aos 250 keV.

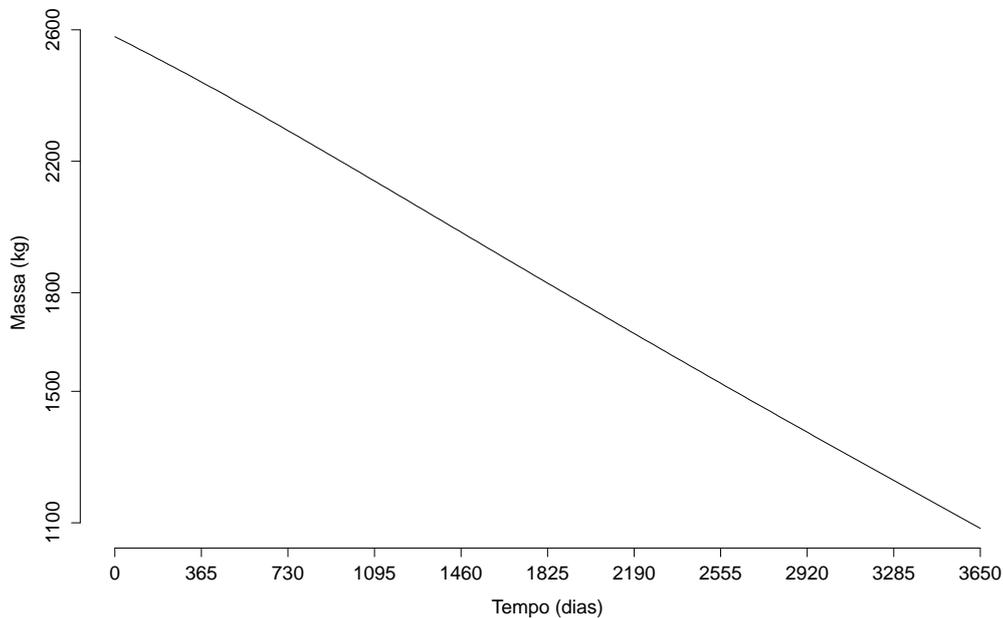
Figura 39 – Espectro de energia dos nêutrons no combustível 2.



4.2.2.1 Evolução do combustível

Barras com $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$:

A Figura 40 descreve a evolução da quantidade de ^{232}Th nas barras de combustível abastecidas com tório.

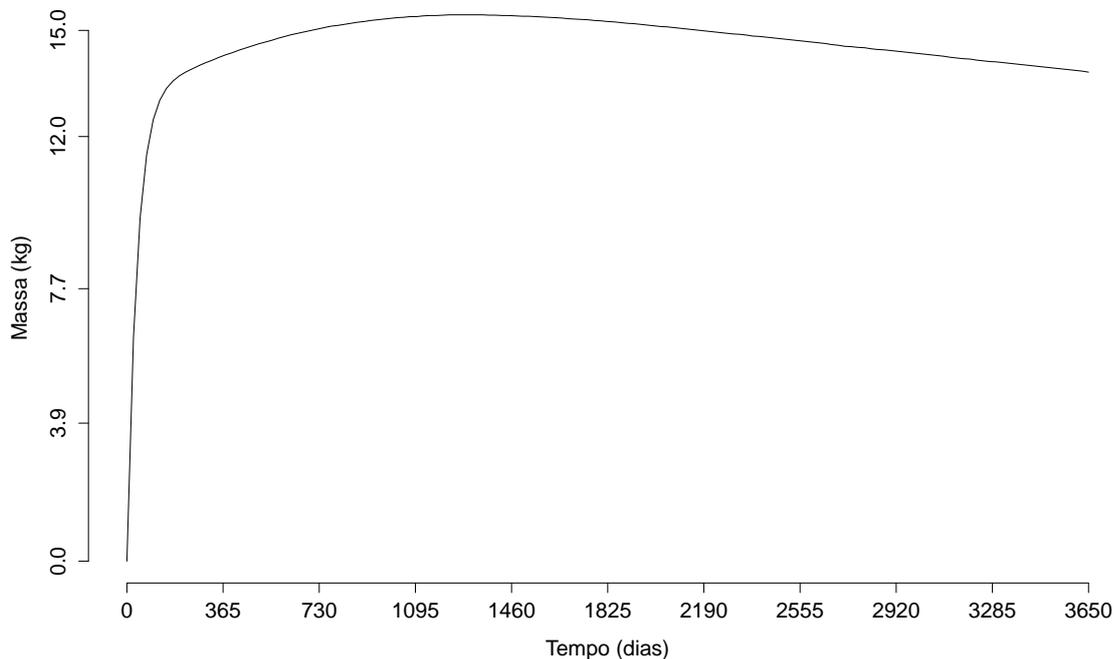
Figura 40 – Variação isotópica do ^{232}Th nas barras de tório.

O consumo de ^{232}Th foi de cerca de 58% de sua massa inicial. No sistema abastecido apenas com $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$ a redução foi de 57%. A pequena diferença no consumo desse isótopo se deve ao fato de que no sistema abastecido também com combustível queimado a disponibilidade de nêutrons rápidos é maior. Como o ^{232}Th possui alta seção de choque de absorção de nêutrons na faixa rápida, a taxa de reações para esse isótopo é maior, o que aumenta seu consumo.

Vale ressaltar que a quantidade inicial desse isótopo quando se utilizou combustível queimado foi cerca de 400 kg menor que quando se utilizou apenas $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$. Assim, o uso de combustível queimado além de permitir a reciclagem de combustível, também diminui o uso das reservas de tório.

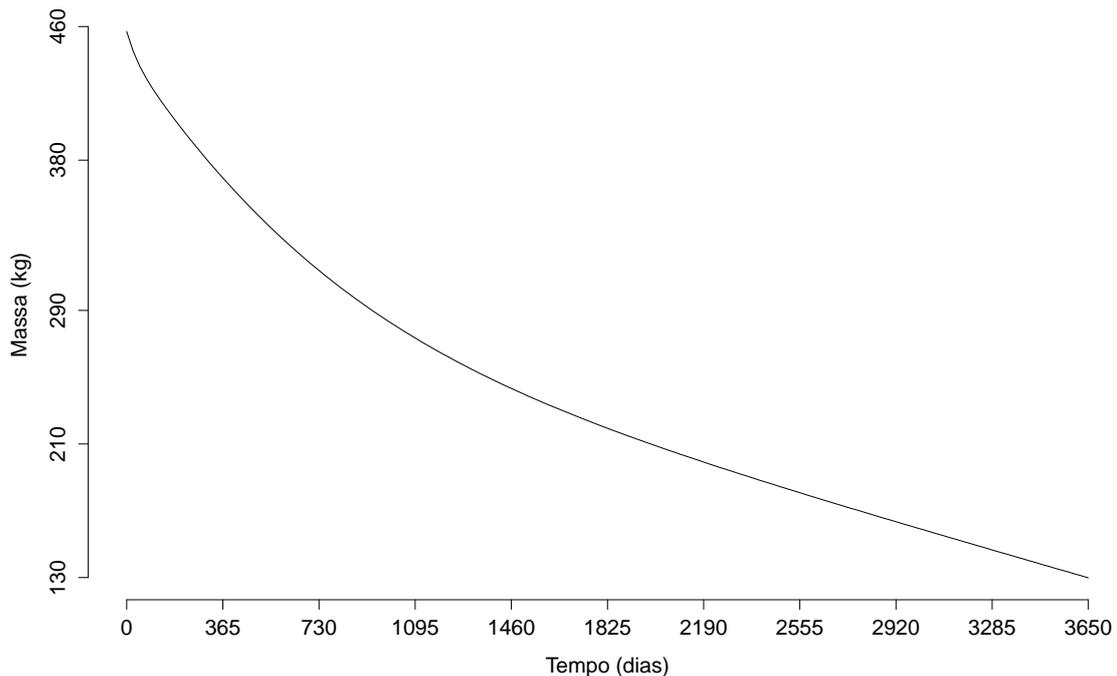
A Figura 41 mostra a produção de ^{233}Pa . A produção desse isótopo foi um pouco menor do que quando se utilizou o combustível 1. Isso é resultado da maior disponibilidade de ^{232}Th no sistema abastecido apenas com $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$.

Figura 41 – Variação isotópica do ^{233}Pa nas barras de tório.



Na Figura 42 é apresentada a evolução na concentração de ^{233}U . A quantidade desse isótopo foi reduzida em 327 kg (71%) durante o período de queima. O consumo desse isótopo foi bem similar ao seu consumo no combustível 1 (70%). O uso de combustível queimado diminuiu a demanda inicial de ^{233}U em cerca de 80 kg, reduzindo assim os custos e os rejeitos gerados pelo reprocessamento.

Figura 42 – Variação isotópica do ^{233}U nas barras de tório.



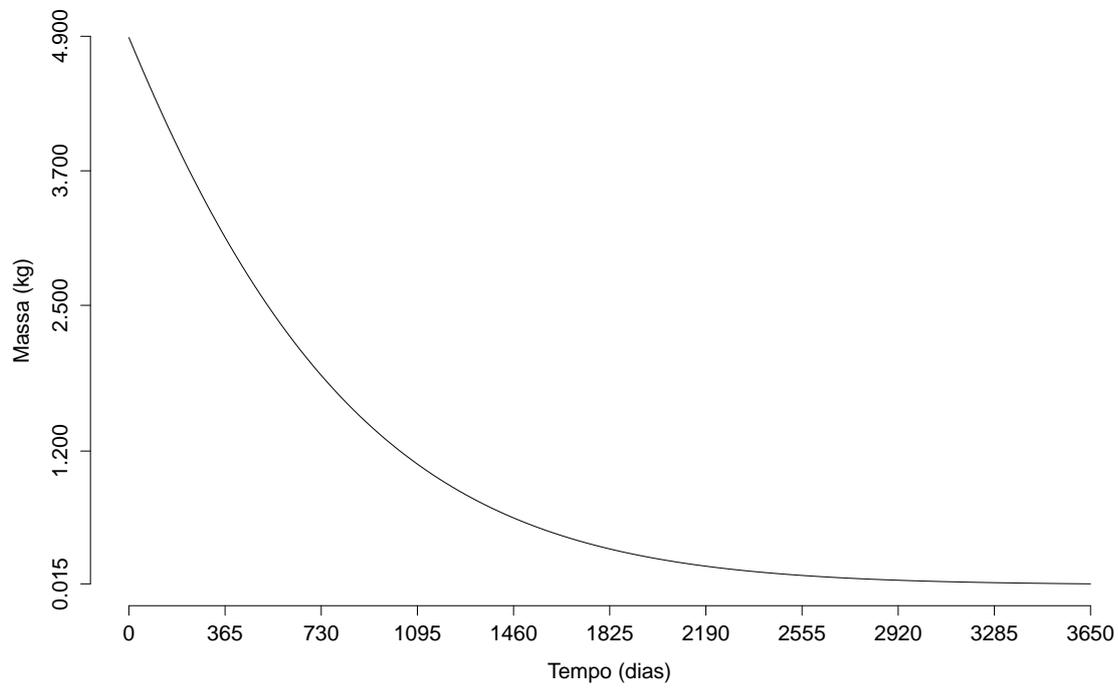
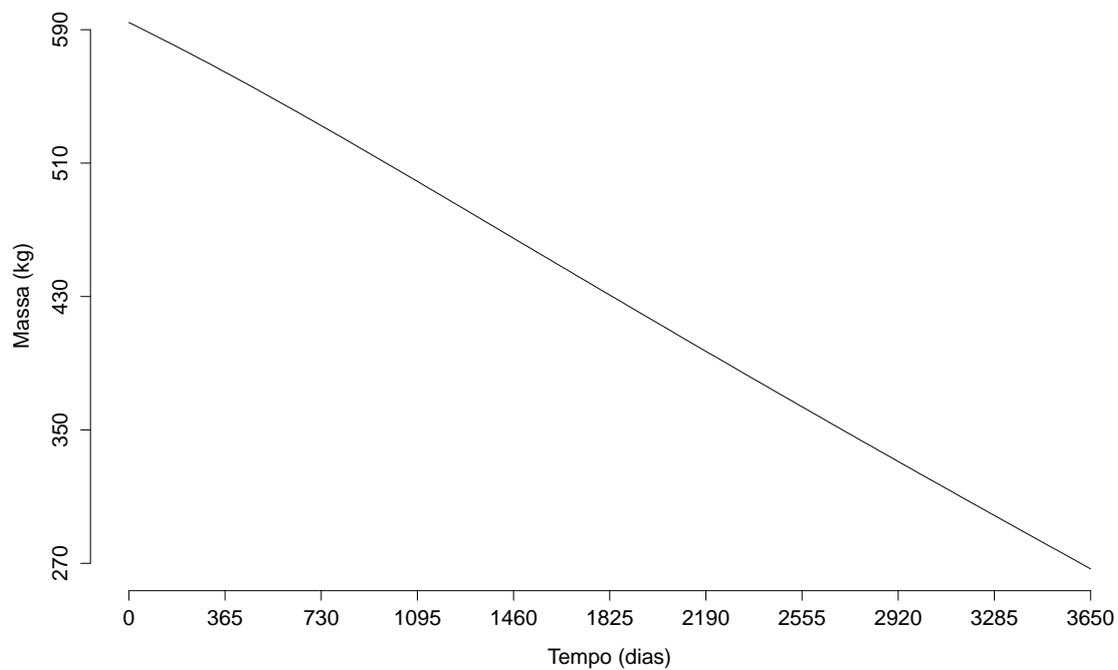
A Tabela 19 mostra as massas iniciais e finais, calculadas pelo MCNPX, dos isótopos analisados.

Tabela 19 – Variação isotópica no combustível 2 - barras de tório.

Isótopo	Massa inicial (kg)	Massa final (kg)
^{232}Th	2580	1080
^{233}Pa	0	15,4
^{233}U	457	130

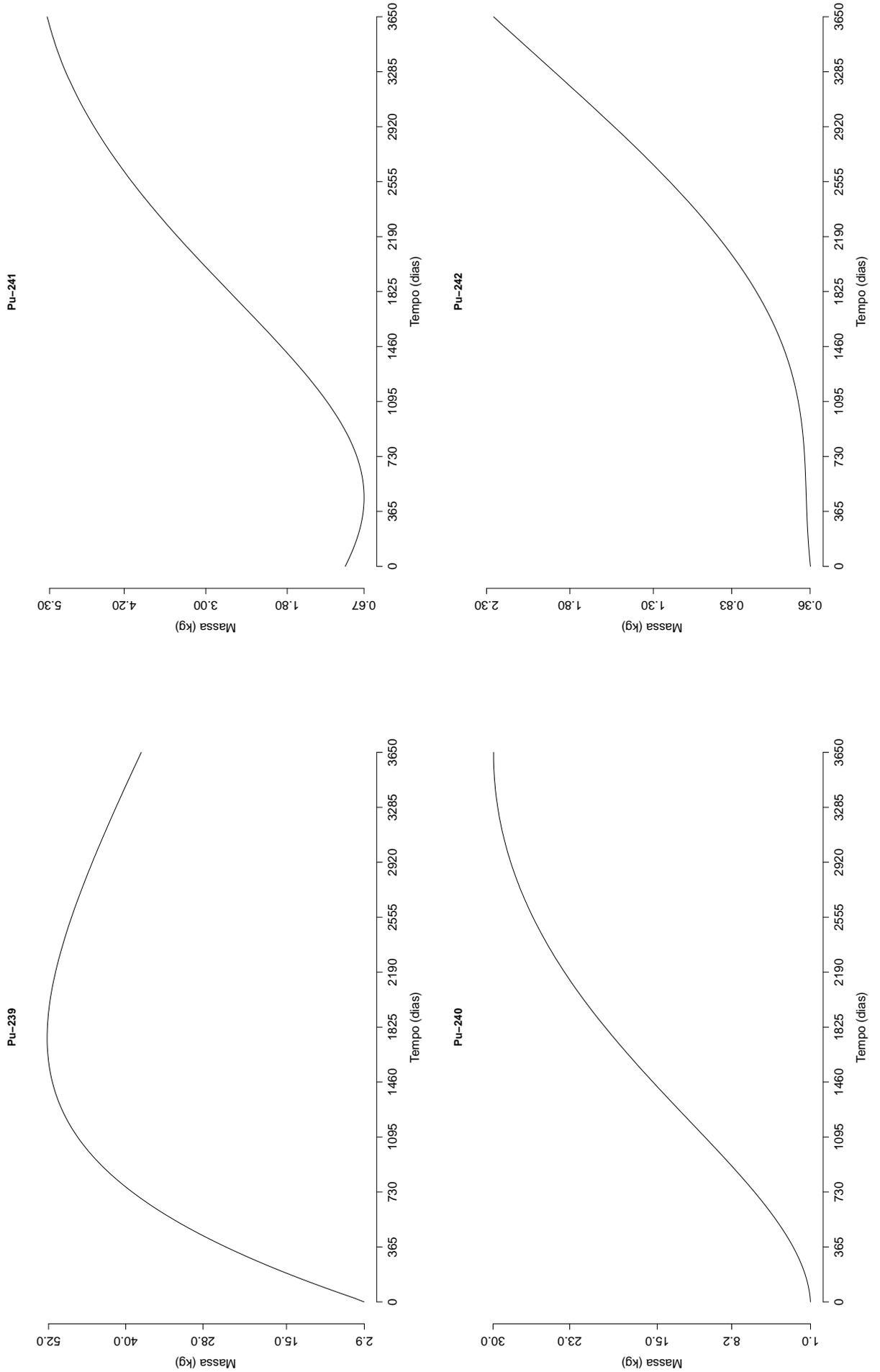
Barras com combustível queimado:

Serão apresentadas as concentrações de alguns isótopos presentes na evolução do combustível queimado presente em 24 barras. As Figuras 43 e 44 mostram a evolução das concentrações de ^{235}U e ^{238}U . A redução na quantidade de ^{235}U se deve principalmente à formação do isótopo de neptúnio (^{237}Np). Já o ^{238}U dá origem aos isótopos do amerício (^{241}Am e ^{243}Am) e do cúrio (^{242}Cm , ^{244}Cm e ^{245}Cm).

Figura 43 – Variação isotópica do ^{235}U nas barras de combustível queimado.Figura 44 – Variação isotópica do ^{238}U nas barras de combustível queimado.

A Figura 45 mostra a evolução dos isótopos do plutônio. A produção de plutônio se deve ao decaimento do ^{238}U .

Figura 45 – Variação isotópica do plutônio nas barras de combustível queimado



A Tabela 20 mostra as massas iniciais e finais, calculadas pelo MCNPX, dos isótopos analisados.

Tabela 20 – Variação isotópica no combustível 2 - barras de combustível queimado.

Isótopo	Massa inicial (kg)	Massa final (kg)
^{235}U	4,89	0,0154
^{238}U	594	276
^{239}Pu	2,94	37,58
^{240}Pu	1,01	30
^{241}Pu	0,95	5,34
^{242}Pu	0,36	2,26

4.2.3 Combustível 3: barras de ThO_2 e barras de combustível reprocessado

Conforme descrito na seção 3.4.3, foram simuladas seis configurações de núcleos de ADS compostos de barras com ThO_2 e barras com combustível reprocessado pelo método GANEX. Em três dessas configurações o combustível reprocessado foi diluído em tório com os percentuais de: 51% de ThO_2 , 52% de ThO_2 e 53% de ThO_2 . Nas outras três configurações o combustível reprocessado foi diluído em 53% de UO_2 , 54% de UO_2 e 55% de UO_2 . Essas diluições foram necessárias para reduzir o percentual de isótopos físeis e conseqüentemente diminuir a criticalidade inicial do sistema.

As Tabelas 21 e 22 mostram os valores iniciais dos fatores de multiplicação para cada um dos percentuais de diluição simulados.

Tabela 21 – Fatores de multiplicação efetivos para cada diluição calculados pelo MCNPX.

Diluição em tório	k_{eff} inicial	Diluição em urânio	k_{eff} inicial
51%	0,96611	53%	0,98355
52%	0,95240	54%	0,97075
53%	0,93889	55%	0,95756

Tabela 22 – Fatores de multiplicação para cada diluição calculados pelo Monteburns.

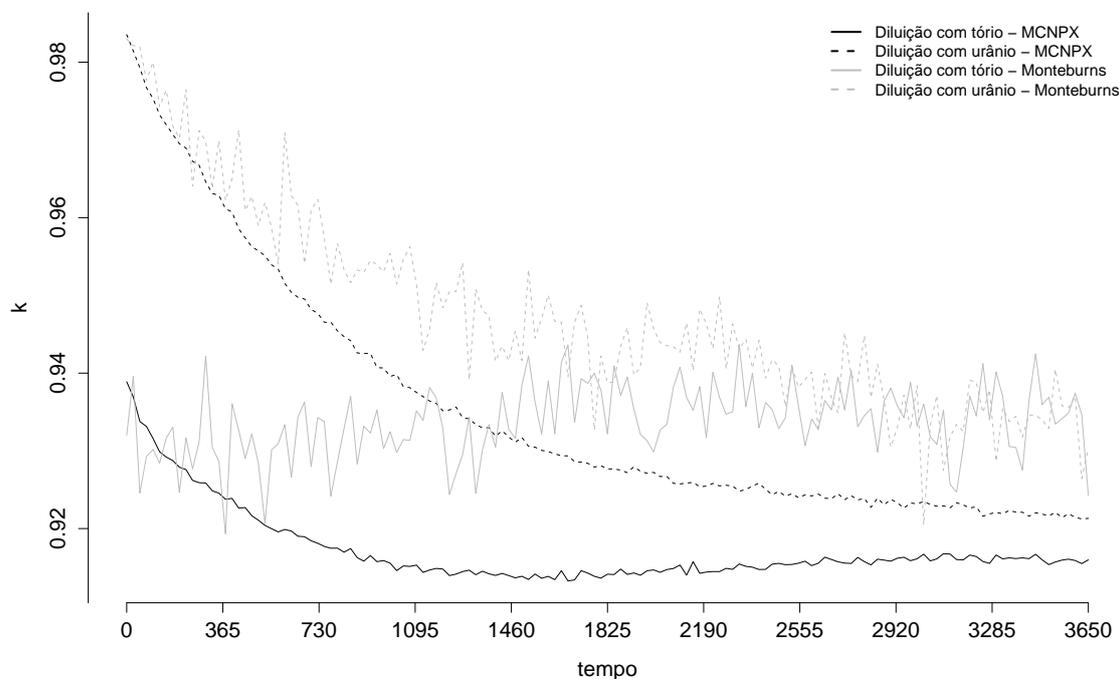
Diluição em tório	k inicial	Diluição em urânio	k inicial
51%	0,96747	53%	0,98298
52%	0,95407	54%	0,97170
53%	0,93201	55%	0,95735

Como se vê nessas tabelas, o mesmo percentual de diluição (53%) em tório e urânio gera valores de fatores de multiplicação diferentes. Isso porque a diluição em urânio aumenta o percentual fissil do sistema, aumentando assim a criticalidade. Já a diluição em tório não altera a quantidade de isótopos físeis. Os percentuais de diluição em tório e urânio não puderam ser todos coincidentes, já que as diluições em 51% e 52% em urânio levam a valores de criticalidade muito altos e as diluições em 54% e 55% em tório levam a valores de fatores de multiplicação muito baixos.

As análises pormenorizadas serão feitas para as diluições em 53% de tório e em 53% de urânio empobrecido por serem os únicos valores coincidentes. Isso facilitará a comparação da evolução dos combustíveis, já que a quantidade de combustível reprocessado (47%) será a mesma.

A Figura 46 mostra a evolução dos fatores de multiplicação para as diluições em 53% de tório e em 53% de urânio obtidos com os códigos MCNPX e MonteBurns. Vale ressaltar que para o código MCNPX os valores são de k_{eff} , enquanto que para o MonteBurns os valores são de k .

Figura 46 – Evolução dos fatores de multiplicação para as diluições em 53% de tório e em 53% de urânio.



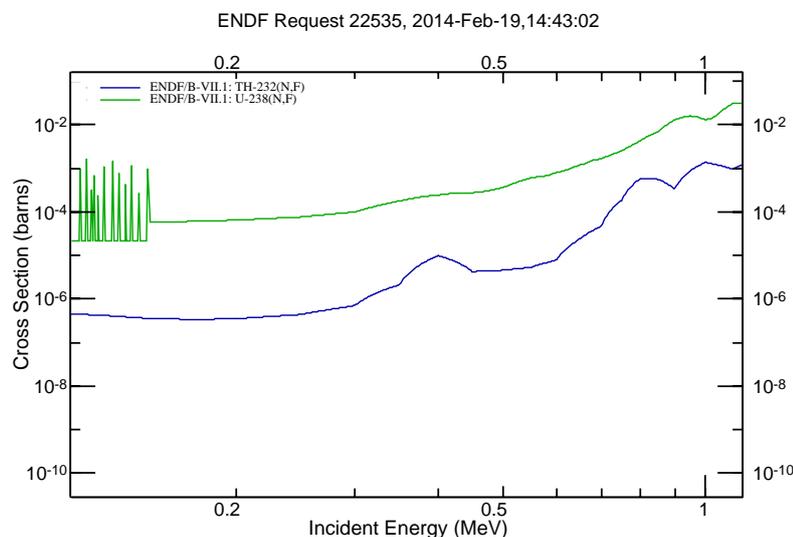
A Tabela 23 mostra os valores iniciais e finais de fatores de multiplicação obtidos com os dois códigos e também a diferença média entre os valores calculados pelos dois códigos (MonteBurns - MCNPX) para cada diluição.

Tabela 23 – Resumo dos valores de k obtidos para as diluições em 53%.

	Diluição em tório	Diluição em urânio
k_{eff} inicial - MCNPX	0,93889	0,98355
k_{eff} final - MCNPX	0,91597	0,92131
k inicial - MonteBurns	0,93201	0,98298
k final - MonteBurns	0,92425	0,93035
Diferença média entre os dois códigos	0,01906	0,01212

A análise da Figura 46 e da Tabela 23 permite verificar que o fator de multiplicação para a diluição em urânio foi significativamente maior do que quando a diluição foi feita com tório. Para o código MCNPX, a diferença média entre os valores de k durante a queima para a diluição com urânio e os valores de k para a diluição com tório foi de 0,018 e a diferença máxima foi 0,045 (no início da queima). A diferença média foi de 0,013 e a diferença máxima foi de 0,057 nos cálculos com o MonteBurns.

A diluição com urânio gera maiores valores de k devido ao fato de que, como dito anteriormente, a diluição com urânio aumenta o percentual físsil do sistema por meio da inserção de ^{235}U . Outra explicação para os maiores valores de k na diluição com urânio é o fato de a seção de choque de fissão para o ^{238}U ser maior que a seção de choque de fissão para o ^{232}Th , como ilustra a Figura 47.

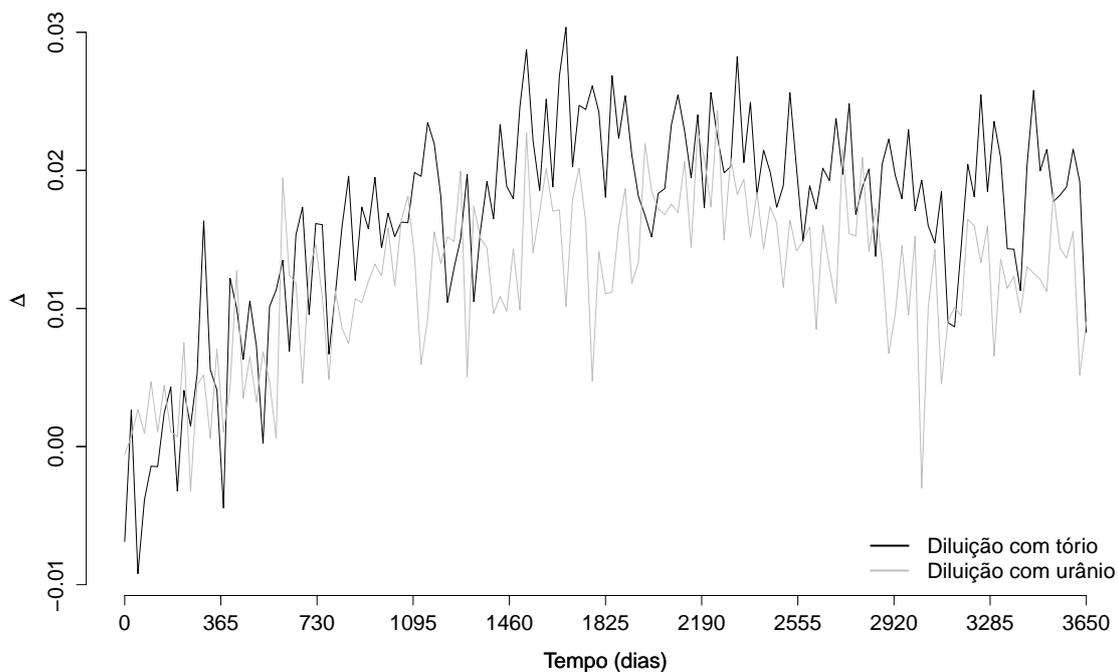
Figura 47 – Seções de choque microscópicas de fissão para o ^{232}Th e para o ^{238}U .

Assim como na simulação do combustível 1, os valores de k calculados durante a queima pelo Monteburns oscilam mais do que os calculados pelo MCNPX. O fato de o Monteburns considerar o fluxo da fonte externa durante a queima influencia nesse comportamento.

Outro ponto a ser observado na Figura 46 é que a queda nos valores de criticalidade foi menos acentuada quando a diluição do combustível reprocessado foi feita utilizando tório. Como será visto mais adiante, a diluição com tório levou a produção de ^{233}U nas barras de combustível reprocessado. O ^{233}U produzido durante a queima proporciona um acréscimo na criticalidade. Tal comportamento é vantajoso, já que permite a extensão na queima e uma maior taxa de regeneração/transmutação no sistema.

Na Figura 48 são mostradas as diferenças entre os valores de k obtidos com os dois códigos (Monteburns - MCNPX) para cada uma das diluições. A diferença média foi de 0.016 para a diluição com tório e de 0.012 para a diluição com urânio. No início da queima a diferença entre os valores de k calculados pelos dois códigos é bem pequena. Essa diferença aumenta no decorrer da queima, o que pode indicar que a diferença entre os k calculados pelos códigos se deve principalmente ao fato de o MCNPX não considerar os nêutrons provenientes do alvo durante a queima.

Figura 48 – Diferença entre os fatores de multiplicação obtidos com o Monteburns e com o MCNPX.



As Tabelas 24 e 25 mostram os valores de k_{eff} e do desvio padrão calculados pelo MCNPX para as diluições em 53% de tório e 53% de urânio, e as Tabelas 26 e 27

apresentam os valores de k e do desvio padrão obtidos com o MonteBurns.

Tabela 24 – k_{eff} e desvio padrão calculados pelo MCNPX para a diluição em 53% de tório.

Tempo	k_{eff}	σ	Tempo	k_{eff}	σ	Tempo	k_{eff}	σ
0	0,93889	0,00033	1225	0,91395	0,00031	2450	0,91542	0,00031
25	0,93694	0,00034	1250	0,91414	0,00029	2475	0,91552	0,00028
50	0,93377	0,00034	1275	0,91446	0,00030	2500	0,91535	0,00029
75	0,93314	0,00033	1300	0,91465	0,00030	2525	0,91538	0,00028
100	0,93159	0,00033	1325	0,91406	0,00030	2550	0,91554	0,00029
125	0,92987	0,00033	1350	0,91451	0,00030	2575	0,91580	0,00028
150	0,92920	0,00033	1375	0,91418	0,00028	2600	0,91523	0,00029
175	0,92874	0,00033	1400	0,91397	0,00029	2625	0,91554	0,00029
200	0,92789	0,00033	1425	0,91423	0,00031	2650	0,91632	0,00028
225	0,92759	0,00031	1450	0,91395	0,00030	2675	0,91602	0,00028
250	0,92620	0,00032	1475	0,91366	0,00029	2700	0,91572	0,00028
275	0,92590	0,00033	1500	0,91386	0,00030	2725	0,91556	0,00028
300	0,92586	0,00033	1525	0,91345	0,00029	2750	0,91551	0,00029
325	0,92486	0,00032	1550	0,91415	0,00029	2775	0,91629	0,00028
350	0,92455	0,00032	1575	0,91360	0,00031	2800	0,91574	0,00028
375	0,92377	0,00030	1600	0,91385	0,00029	2825	0,91533	0,00028
400	0,92388	0,00031	1625	0,91342	0,00030	2850	0,91606	0,00029
425	0,92264	0,00031	1650	0,91458	0,00028	2875	0,91594	0,00029
450	0,92270	0,00033	1675	0,91326	0,00029	2900	0,91580	0,00028
475	0,92165	0,00032	1700	0,91340	0,00029	2925	0,91618	0,00028
500	0,92107	0,00033	1725	0,91458	0,00030	2950	0,91631	0,00029
525	0,92040	0,00031	1750	0,91427	0,00029	2975	0,91586	0,00030
550	0,91998	0,00033	1775	0,91386	0,00030	3000	0,91611	0,00028
575	0,91957	0,00031	1800	0,91362	0,00028	3025	0,91671	0,00029
600	0,91988	0,00031	1825	0,91413	0,00030	3050	0,91584	0,00029
625	0,91968	0,00031	1850	0,91408	0,00030	3075	0,91610	0,00027
650	0,91901	0,00031	1875	0,91479	0,00028	3100	0,91676	0,00029
675	0,91895	0,00031	1900	0,91410	0,00028	3125	0,91672	0,00029
700	0,91843	0,00032	1925	0,91429	0,00029	3150	0,91601	0,00029
725	0,91811	0,00031	1950	0,91399	0,00029	3175	0,91597	0,00029
750	0,91770	0,00031	1975	0,91457	0,00027	3200	0,91659	0,00027
775	0,91747	0,00031	2000	0,91468	0,00029	3225	0,91640	0,00029
800	0,91748	0,00029	2025	0,91437	0,00029	3250	0,91576	0,00027
825	0,91696	0,00032	2050	0,91472	0,00029	3275	0,91552	0,00029
850	0,91743	0,00031	2075	0,91486	0,00029	3300	0,91660	0,00029
875	0,91626	0,00030	2100	0,91531	0,00028	3325	0,91610	0,00028
900	0,91581	0,00030	2125	0,91401	0,00030	3350	0,91623	0,00029
925	0,91652	0,00029	2150	0,91573	0,00030	3375	0,91614	0,00028
950	0,91574	0,00030	2175	0,91424	0,00027	3400	0,91623	0,00029
975	0,91588	0,00029	2200	0,91440	0,00029	3425	0,91613	0,00027
1000	0,91555	0,00032	2225	0,91447	0,00027	3450	0,91669	0,00029
1025	0,91459	0,00030	2250	0,91446	0,00030	3475	0,91597	0,00029
1050	0,91519	0,00031	2275	0,91488	0,00029	3500	0,91536	0,00027
1075	0,91513	0,00031	2300	0,91475	0,00029	3525	0,91570	0,00028
1100	0,91530	0,00028	2325	0,91544	0,00031	3550	0,91594	0,00027
1125	0,91436	0,00031	2350	0,91514	0,00029	3575	0,91606	0,00028
1150	0,91467	0,00031	2375	0,91503	0,00028	3600	0,91589	0,00029
1175	0,91487	0,00030	2400	0,91473	0,00029	3625	0,91549	0,00027
1200	0,91479	0,00031	2425	0,91475	0,00030	3650	0,91597	0,00029

Tabela 25 – k_{eff} e desvio padrão calculados pelo MCNPX para a diluição em 53% de urânio.

Tempo	k_{eff}	σ	Tempo	k_{eff}	σ	Tempo	k_{eff}	σ
0	0,98355	0,00035	1225	0,93525	0,00031	2450	0,92435	0,00028
25	0,98144	0,00032	1250	0,93564	0,00031	2475	0,92477	0,00029
50	0,97928	0,00035	1275	0,93426	0,00029	2500	0,92418	0,00028
75	0,97672	0,00035	1300	0,93412	0,00031	2525	0,92447	0,00029
100	0,97532	0,00033	1325	0,93338	0,00030	2550	0,92397	0,00029
125	0,97323	0,00034	1350	0,93297	0,00031	2575	0,92434	0,00028
150	0,97196	0,00036	1375	0,93298	0,00028	2600	0,92420	0,00029
175	0,97072	0,00034	1400	0,93187	0,00030	2625	0,92444	0,00028
200	0,96951	0,00035	1425	0,93258	0,00029	2650	0,92391	0,00028
225	0,96895	0,00033	1450	0,93179	0,00030	2675	0,92383	0,00028
250	0,96726	0,00032	1475	0,93110	0,00029	2700	0,92448	0,00028
275	0,96674	0,00032	1500	0,93173	0,00030	2725	0,92371	0,00029
300	0,96461	0,00032	1525	0,93058	0,00030	2750	0,92423	0,00030
325	0,96311	0,00032	1550	0,93047	0,00030	2775	0,92368	0,00028
350	0,96288	0,00034	1575	0,93006	0,00031	2800	0,92388	0,00030
375	0,96115	0,00031	1600	0,92991	0,00031	2825	0,92273	0,00029
400	0,96073	0,00033	1625	0,92961	0,00030	2850	0,92393	0,00028
425	0,95857	0,00032	1650	0,92937	0,00031	2875	0,92305	0,00030
450	0,95740	0,00032	1675	0,92935	0,00031	2900	0,92376	0,00028
475	0,95626	0,00032	1700	0,92862	0,00029	2925	0,92333	0,00027
500	0,95572	0,00031	1725	0,92854	0,00031	2950	0,92262	0,00030
525	0,95511	0,00031	1750	0,92840	0,00031	2975	0,92330	0,00029
550	0,95393	0,00032	1775	0,92791	0,00031	3000	0,92317	0,00030
575	0,95338	0,00032	1800	0,92808	0,00030	3025	0,92348	0,00027
600	0,95154	0,00033	1825	0,92768	0,00030	3050	0,92311	0,00030
625	0,95040	0,00033	1850	0,92766	0,00030	3075	0,92287	0,00030
650	0,94975	0,00032	1875	0,92753	0,00031	3100	0,92292	0,00029
675	0,94953	0,00033	1900	0,92719	0,00031	3125	0,92267	0,00029
700	0,94819	0,00031	1925	0,92795	0,00030	3150	0,92333	0,00028
725	0,94770	0,00033	1950	0,92737	0,00030	3175	0,92304	0,00028
750	0,94654	0,00032	1975	0,92711	0,00030	3200	0,92265	0,00028
775	0,94655	0,00030	2000	0,92723	0,00031	3225	0,92280	0,00029
800	0,94543	0,00032	2025	0,92669	0,00030	3250	0,92158	0,00029
825	0,94470	0,00032	2050	0,92672	0,00030	3275	0,92188	0,00028
850	0,94417	0,00031	2075	0,92582	0,00030	3300	0,92208	0,00029
875	0,94259	0,00032	2100	0,92574	0,00030	3325	0,92190	0,00027
900	0,94252	0,00033	2125	0,92585	0,00031	3350	0,92233	0,00028
925	0,94255	0,00030	2150	0,92594	0,00029	3375	0,92211	0,00029
950	0,94071	0,00031	2175	0,92538	0,00029	3400	0,92210	0,00029
975	0,94066	0,00032	2200	0,92546	0,00030	3425	0,92159	0,00028
1000	0,93958	0,00033	2225	0,92580	0,00028	3450	0,92203	0,00029
1025	0,93982	0,00030	2250	0,92549	0,00028	3475	0,92186	0,00027
1050	0,93827	0,00032	2275	0,92557	0,00030	3500	0,92163	0,00030
1075	0,93813	0,00032	2300	0,92547	0,00028	3525	0,92209	0,00028
1100	0,93751	0,00031	2325	0,92481	0,00030	3550	0,92141	0,00027
1125	0,93698	0,00033	2350	0,92501	0,00030	3575	0,92190	0,00028
1150	0,93640	0,00032	2375	0,92548	0,00030	3600	0,92145	0,00028
1175	0,93610	0,00031	2400	0,92583	0,00029	3625	0,92124	0,00028
1200	0,93515	0,00030	2425	0,92506	0,00030	3650	0,92131	0,00029

Tabela 26 – k e desvio padrão calculados pelo MonteBurns para a diluição em 53% de tório.

Tempo	k	σ	Tempo	k	σ	Tempo	k	σ
0	0,93201	0,00579	1225	0,92439	0,00434	2450	0,93531	0,00374
25	0,93958	0,00458	1250	0,92706	0,00498	2475	0,93285	0,00384
50	0,92457	0,00592	1275	0,92950	0,00451	2500	0,93425	0,00382
75	0,92929	0,00584	1300	0,93436	0,00432	2525	0,94101	0,00359
100	0,93017	0,00520	1325	0,92455	0,00454	2550	0,93572	0,00372
125	0,92842	0,00513	1350	0,93008	0,00394	2575	0,93067	0,00359
150	0,93163	0,00470	1375	0,93337	0,00423	2600	0,93411	0,00363
175	0,93305	0,00488	1400	0,93047	0,00422	2625	0,93275	0,00399
200	0,92466	0,00581	1425	0,93755	0,00363	2650	0,93648	0,00340
225	0,93166	0,00512	1450	0,93280	0,00413	2675	0,93528	0,00354
250	0,92768	0,00581	1475	0,93160	0,00445	2700	0,93948	0,00367
275	0,93114	0,00517	1500	0,93845	0,00404	2725	0,93527	0,00371
300	0,94220	0,00500	1525	0,94220	0,00387	2750	0,94033	0,00340
325	0,93043	0,00521	1550	0,93629	0,00411	2775	0,93310	0,00401
350	0,92865	0,00560	1575	0,93215	0,00408	2800	0,93453	0,00386
375	0,91933	0,00596	1600	0,93901	0,00338	2825	0,93543	0,00394
400	0,93606	0,00465	1625	0,93222	0,00392	2850	0,92984	0,00398
425	0,93267	0,00503	1650	0,94142	0,00364	2875	0,93639	0,00365
450	0,92902	0,00514	1675	0,94362	0,00382	2900	0,93807	0,00339
475	0,93219	0,00524	1700	0,93365	0,00423	2925	0,93581	0,00372
500	0,92836	0,00581	1725	0,93929	0,00407	2950	0,93426	0,00362
525	0,92063	0,00597	1750	0,93868	0,00349	2975	0,93881	0,00380
550	0,93013	0,00506	1775	0,93998	0,00407	3000	0,93319	0,00392
575	0,93091	0,00467	1800	0,93783	0,00360	3025	0,93601	0,00366
600	0,93337	0,00513	1825	0,93218	0,00385	3050	0,93182	0,00370
625	0,92659	0,00486	1850	0,94093	0,00355	3075	0,93084	0,00357
650	0,93435	0,00434	1875	0,93711	0,00386	3100	0,93523	0,00378
675	0,93628	0,00497	1900	0,93950	0,00386	3125	0,92570	0,00413
700	0,92798	0,00484	1925	0,93539	0,00369	3150	0,92468	0,00398
725	0,93426	0,00462	1950	0,93211	0,00419	3175	0,93043	0,00385
750	0,93377	0,00419	1975	0,93131	0,00417	3200	0,93704	0,00357
775	0,92417	0,00530	2000	0,92986	0,00408	3225	0,93448	0,00319
800	0,92862	0,00483	2025	0,93270	0,00417	3250	0,94123	0,00374
825	0,93290	0,00386	2050	0,93340	0,00378	3275	0,93399	0,00361
850	0,93701	0,00461	2075	0,93816	0,00386	3300	0,94015	0,00364
875	0,92830	0,00446	2100	0,94077	0,00380	3325	0,93701	0,00344
900	0,93316	0,00438	2125	0,93688	0,00404	3350	0,93056	0,00362
925	0,93229	0,00419	2150	0,93520	0,00440	3375	0,93044	0,00377
950	0,93523	0,00420	2175	0,93826	0,00364	3400	0,92753	0,00389
975	0,93028	0,00423	2200	0,93169	0,00416	3425	0,93649	0,00367
1000	0,93245	0,00429	2225	0,94011	0,00351	3450	0,94248	0,00350
1025	0,92979	0,00440	2250	0,93686	0,00352	3475	0,93594	0,00331
1050	0,93145	0,00487	2275	0,93471	0,00381	3500	0,93688	0,00372
1075	0,93134	0,00420	2300	0,93502	0,00374	3525	0,93345	0,00367
1100	0,93515	0,00475	2325	0,94369	0,00360	3550	0,93414	0,00349
1125	0,93393	0,00403	2350	0,93571	0,00355	3575	0,93487	0,00357
1150	0,93814	0,00433	2375	0,93996	0,00363	3600	0,93743	0,00322
1175	0,93680	0,00413	2400	0,93296	0,00415	3625	0,93468	0,00327
1200	0,93289	0,00486	2425	0,93622	0,00411	3650	0,92425	0,00383

Tabela 27 – k e desvio padrão calculados pelo Monteburns para a diluição em 53% de urânio.

Tempo	k	σ	Tempo	k	σ	Tempo	k	σ
0	0,98298	0,00224	1225	0,95045	0,00337	2450	0,94172	0,00374
25	0,98216	0,00202	1250	0,95050	0,00354	2475	0,94094	0,00390
50	0,98196	0,00300	1275	0,95421	0,00391	2500	0,93571	0,00372
75	0,97767	0,00237	1300	0,93917	0,00389	2525	0,94087	0,00351
100	0,98002	0,00254	1325	0,95081	0,00344	2550	0,93815	0,00376
125	0,97427	0,00279	1350	0,94806	0,00336	2575	0,93920	0,00389
150	0,97640	0,00269	1375	0,94738	0,00366	2600	0,94012	0,00385
175	0,97180	0,00283	1400	0,94152	0,00381	2625	0,93292	0,00401
200	0,97022	0,00285	1425	0,94346	0,00432	2650	0,93995	0,00390
225	0,97648	0,00284	1450	0,94160	0,00413	2675	0,93681	0,00380
250	0,96403	0,00291	1475	0,94542	0,00322	2700	0,93485	0,00376
275	0,97121	0,00348	1500	0,94163	0,00384	2725	0,94520	0,00393
300	0,96979	0,00351	1525	0,95330	0,00337	2750	0,93966	0,00360
325	0,96372	0,00313	1550	0,94450	0,00349	2775	0,93893	0,00409
350	0,96994	0,00331	1575	0,94707	0,00349	2800	0,94484	0,00325
375	0,96221	0,00348	1600	0,95007	0,00325	2825	0,93684	0,00393
400	0,96501	0,00338	1625	0,94665	0,00376	2850	0,94115	0,00365
425	0,97130	0,00277	1650	0,94652	0,00368	2875	0,93646	0,00377
450	0,96090	0,00329	1675	0,93950	0,00414	2900	0,93050	0,00428
475	0,96276	0,00401	1700	0,94653	0,00341	2925	0,93297	0,00452
500	0,95896	0,00371	1725	0,94871	0,00340	2950	0,93717	0,00383
525	0,96198	0,00309	1750	0,94465	0,00328	2975	0,93284	0,00401
550	0,95866	0,00345	1775	0,93267	0,00391	3000	0,93840	0,00389
575	0,95398	0,00408	1800	0,94220	0,00376	3025	0,92047	0,00461
600	0,97096	0,00293	1825	0,93874	0,00411	3050	0,93324	0,00399
625	0,96282	0,00370	1850	0,93887	0,00394	3075	0,93713	0,00356
650	0,96158	0,00313	1875	0,94342	0,00390	3100	0,92747	0,00399
675	0,95411	0,00389	1900	0,94587	0,00375	3125	0,93177	0,00390
700	0,96097	0,00376	1925	0,93977	0,00393	3150	0,93340	0,00412
725	0,96233	0,00317	1950	0,94070	0,00408	3175	0,93251	0,00374
750	0,95737	0,00333	1975	0,94907	0,00346	3200	0,93911	0,00373
775	0,95142	0,00393	2000	0,94573	0,00367	3225	0,93878	0,00393
800	0,95670	0,00387	2025	0,94392	0,00345	3250	0,93490	0,00376
825	0,95327	0,00411	2050	0,94352	0,00353	3275	0,93786	0,00375
850	0,95164	0,00384	2075	0,94339	0,00360	3300	0,92864	0,00411
875	0,95328	0,00365	2100	0,94269	0,00367	3325	0,93547	0,00381
900	0,95295	0,00367	2125	0,94649	0,00356	3350	0,93379	0,00383
925	0,95451	0,00450	2150	0,94034	0,00377	3375	0,93444	0,00393
950	0,95393	0,00369	2175	0,94826	0,00306	3400	0,93177	0,00380
975	0,95303	0,00346	2200	0,94637	0,00340	3425	0,93462	0,00399
1000	0,95540	0,00345	2225	0,94316	0,00373	3450	0,93458	0,00367
1025	0,95146	0,00328	2250	0,94982	0,00314	3475	0,93398	0,00387
1050	0,95464	0,00322	2275	0,94053	0,00387	3500	0,93287	0,00392
1075	0,95627	0,00321	2300	0,94633	0,00334	3525	0,94048	0,00391
1100	0,95135	0,00369	2325	0,94307	0,00378	3550	0,93579	0,00397
1125	0,94293	0,00357	2350	0,94436	0,00348	3575	0,93555	0,00359
1150	0,94568	0,00397	2375	0,94062	0,00381	3600	0,93702	0,00363
1175	0,95165	0,00356	2400	0,94423	0,00362	3625	0,92641	0,00381
1200	0,94840	0,00368	2425	0,93936	0,00374	3650	0,93035	0,00407

Nas Figuras 49 e 50 são mostrados os espectros de energia, normalizados ao valor máximo, obtidos com o MCNPX no volume correspondente às barras combustível de tório e no volume das barras de combustível reprocessado no início da queima utilizando as *tallies* F4 e E4. O pico nos dois casos ocorre para energias em torno de 150 keV nas barras de tório e 250 keV nas barras de combustível reprocessado. O espectro no combustível reprocessado é mais endurecido devido a presença do plutônio.

Figura 49 – Espectro de energia dos nêutrons no combustível 3 para a diluição com tório.

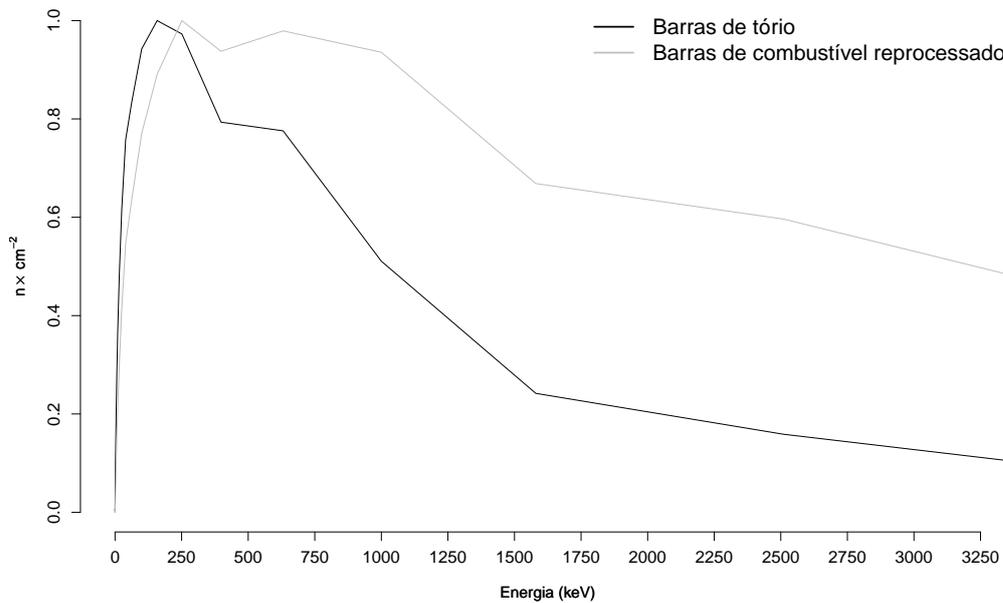
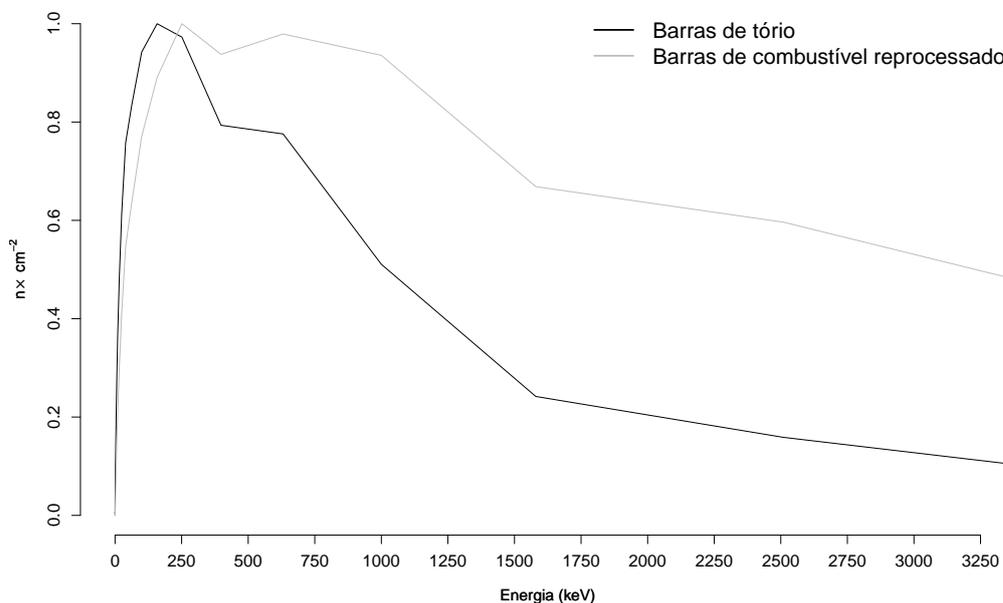


Figura 50 – Espectro de energia dos nêutrons no combustível 3 para a diluição com urânio.

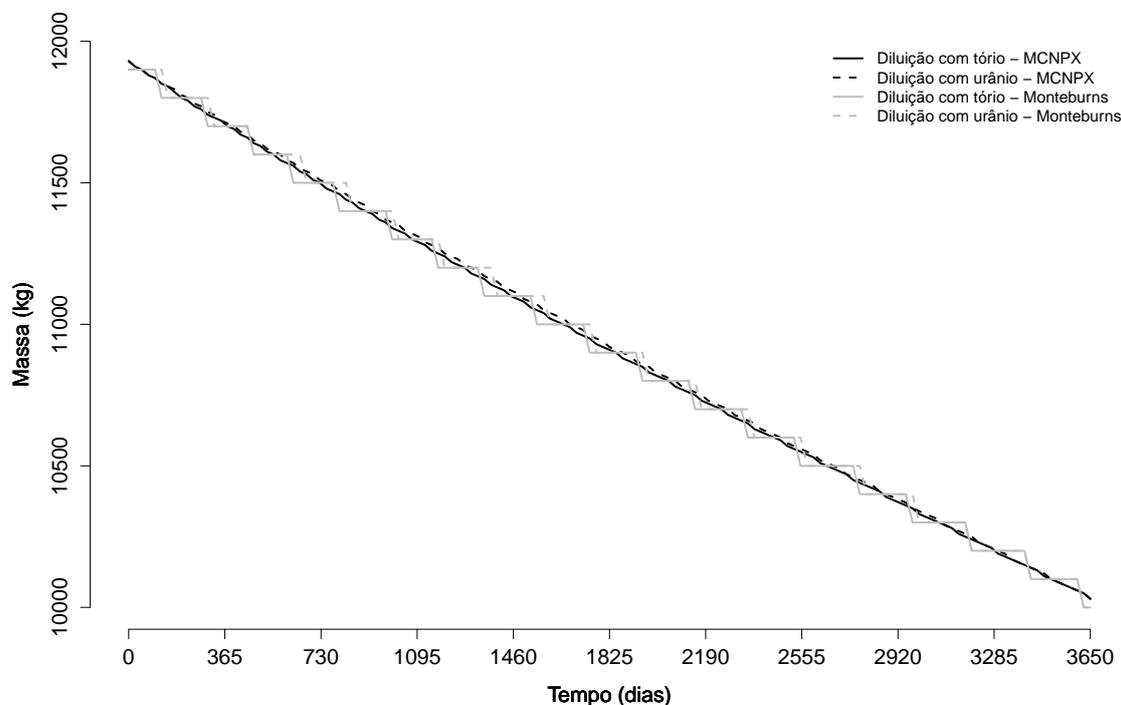


4.2.3.1 Evolução do combustível

Barras com tório

A Figura 51 descreve a evolução da quantidade de ^{232}Th nas barras de combustível abastecidas com tório para os dois códigos utilizados. Verifica-se que a quantidade do isótopo ^{232}Th foi reduzida em $\approx 16\%$ (1900 kg). Grande parte dessa quantidade de ^{232}Th dá origem ao ^{233}U . A diferença na evolução desse isótopo para cada uma das diluições é pequena, isso porque a diluição ocorreu apenas no combustível das barras de combustível reprocessado influenciando pouco a evolução do combustível das barras de tório.

Figura 51 – Variação isotópica do ^{232}Th nas barras de tório para os códigos MCNPX e Monteburns.

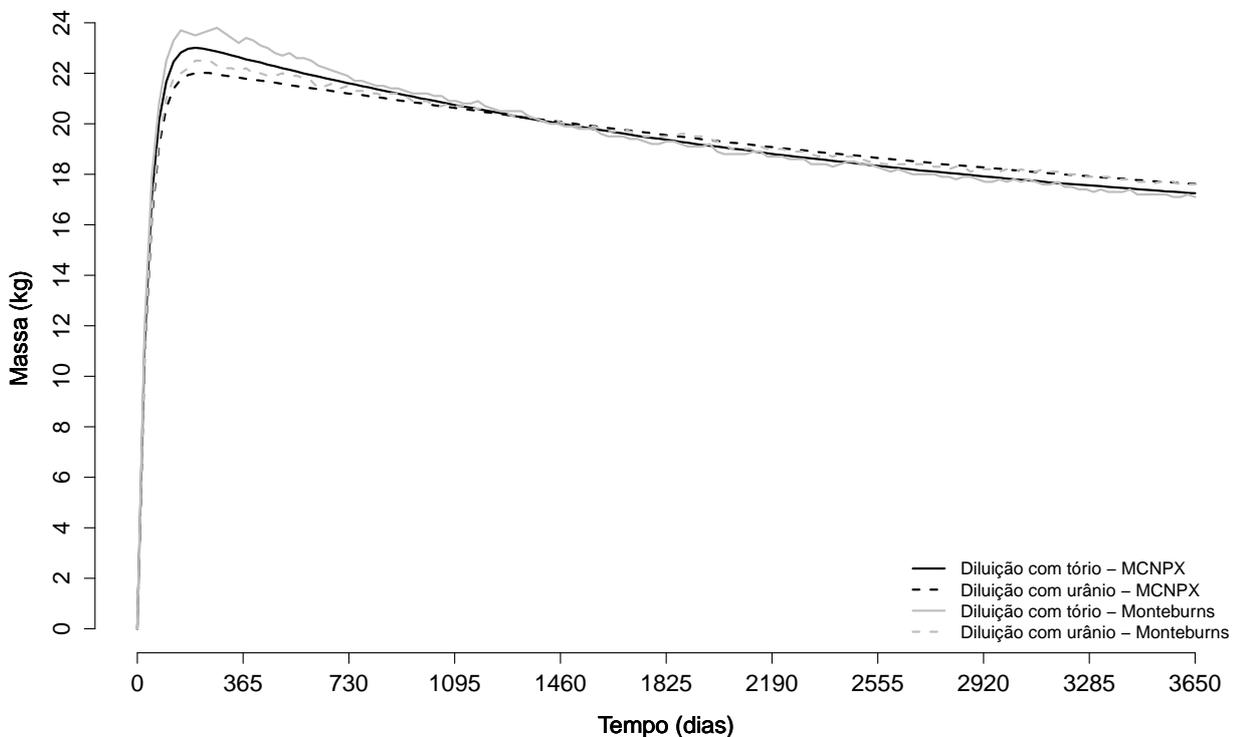


Quanto à diferença entre os resultados dos dois códigos, a diferença máxima entre a quantidade de ^{232}Th calculadas pelo MCNPX e a quantidade calculada pelo Monteburns foi de 60 kg para a diluição com tório e 50 Kg para a diluição com urânio. Essa diferença é explicada pelo fato de os valores de k_{eff} no MCNPX terem sido menores do que os valores de k calculados pelo Monteburns. Com uma menor disponibilidade de nêutrons para a regeneração de tório, o consumo desse isótopo será menor na simulação com o MCNPX.

A Figura 52 mostra a evolução da quantidade de ^{233}Pa para os dois códigos. O ^{233}Pa foi produzido em pequena quantidade, e seu efeito negativo na reatividade foi atenuado pelo uso de nêutrons rápidos. A diferença na produção desse isótopo para as duas diluições também foi pequena. A diferença máxima entre os valores obtidos com o MCNPX e com o

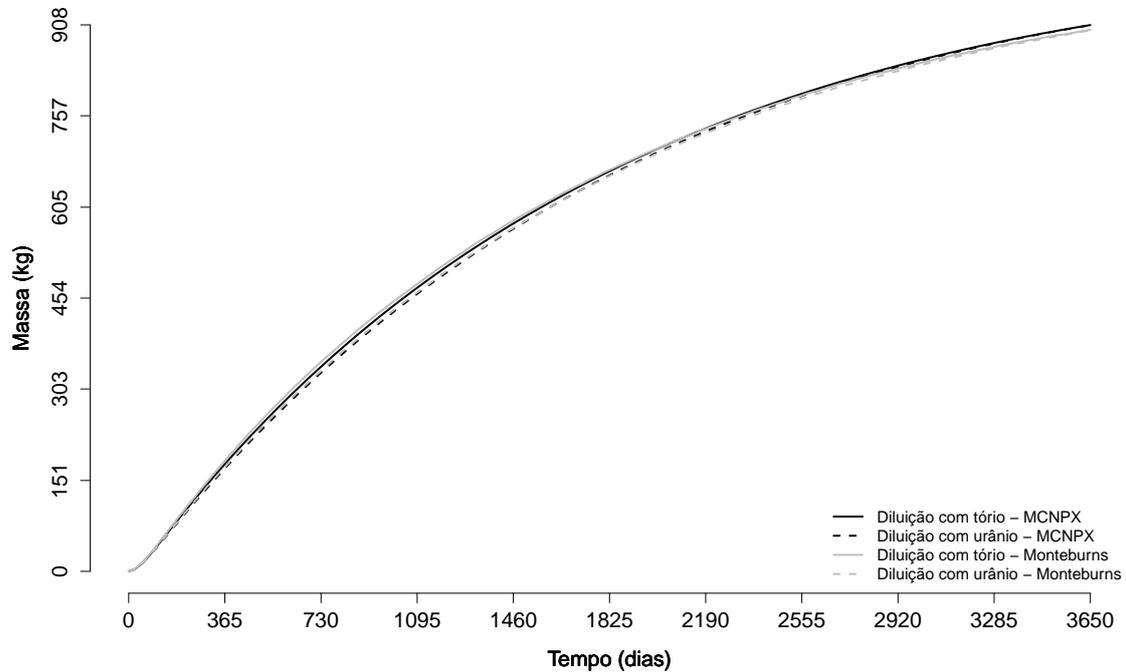
Monteburns foi de $\approx 0,2$ para as duas diluições. A diferença média entre a produção desse isótopo nos dois códigos, foi de $-0,08$ para a diluição com tório e $-0,04$ para a diluição com urânio. Em geral, a produção de ^{233}Pa foi menor no MCNPX, isso porque o consumo de ^{232}Th foi menor nesse código.

Figura 52 – Variação isotópica do ^{233}Pa nas barras de tório para os códigos MCNPX e Monteburns.



Na Figura 53 é mostrada a produção de ^{233}U . O ^{233}U foi formado em grande escala (≈ 900 kg). É importante salientar que o combustível inicial das barras de tório usado nessas simulações não apresenta nenhum isótopo de urânio, logo todo o ^{233}U provém da regeneração do ^{232}Th . Sendo assim, o uso de tório simultâneo ao uso de combustível reprocessado, para os dois tipos de diluição, se mostra eficiente para a regeneração de combustível. A diferença máxima entre as quantidades desse isótopo calculadas pelo MCNPX e pelo Monteburns foi ≈ 9 kg.

Figura 53 – Variação isotópica do ^{233}U nas barras de tório para os códigos MCNPX e Monteburns.



Barras com combustível reprocessado:

O alto nível de radiotoxicidade do combustível nuclear queimado é associado aos transurânicos (TRU), principalmente ao plutônio e aos actinídeos menores (MA): Am, Cm e Np. Esses isótopos contribuem significativamente para radiotoxicidade a longo prazo dos resíduos nucleares. A seguir serão avaliadas as evoluções desses isótopos nas barras de combustível reprocessado.

Nas Figuras 54 e 55 são apresentadas as evoluções das quantidades dos isótopos ^{235}U e ^{238}U . As quantidades iniciais desses isótopos para a diluição com tório é pequena e aumenta pouco durante a queima ($^{235}\text{U} \approx 2 \text{ kg}$ e $^{238}\text{U} \approx 3 \text{ kg}$). Já para a diluição com urânio, ambos os isótopos têm suas quantidades reduzidas. A redução na quantidade de ^{235}U se deve principalmente à formação do isótopo de neptúnio (^{237}Np). Já o ^{238}U dá origem aos isótopos do amerício (^{241}Am e ^{243}Am) e do cúrio (^{242}Cm , ^{244}Cm e ^{245}Cm).

Figura 54 – Variação isotópica do ^{235}U nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.

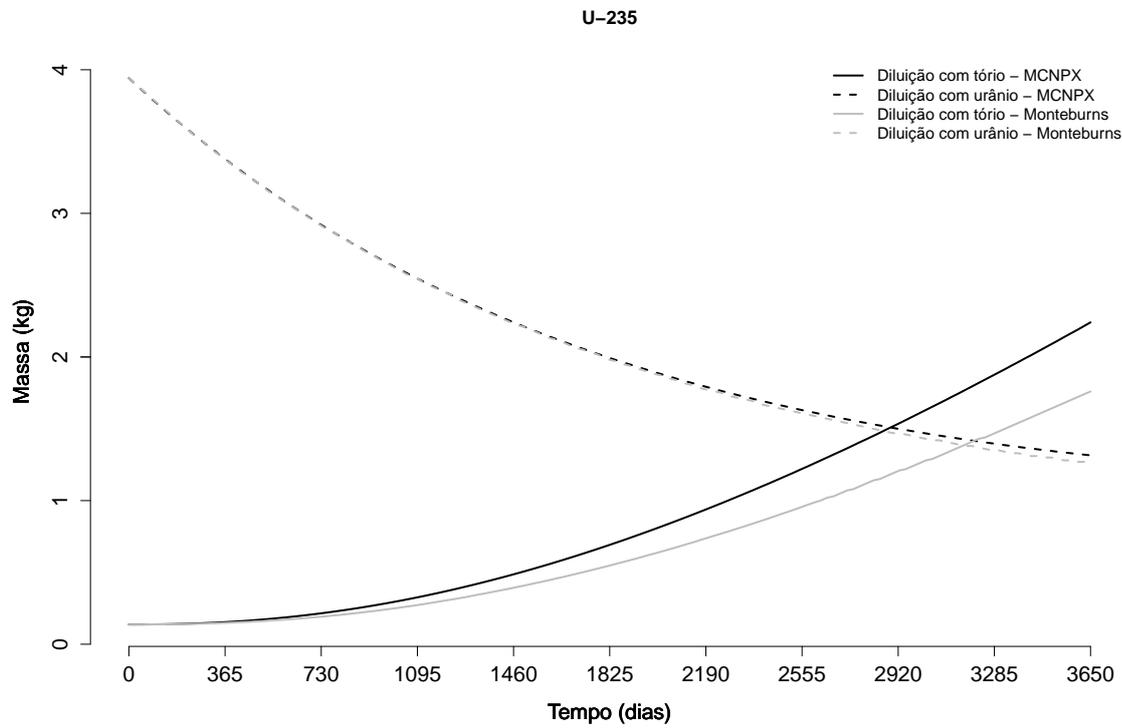
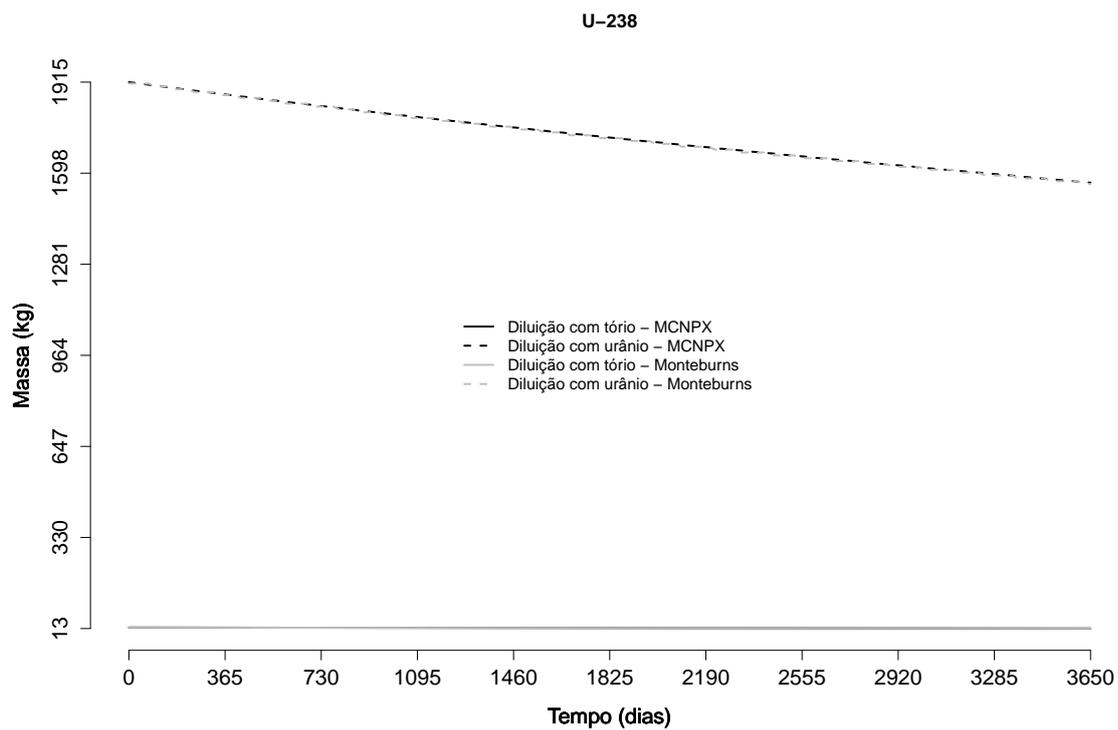


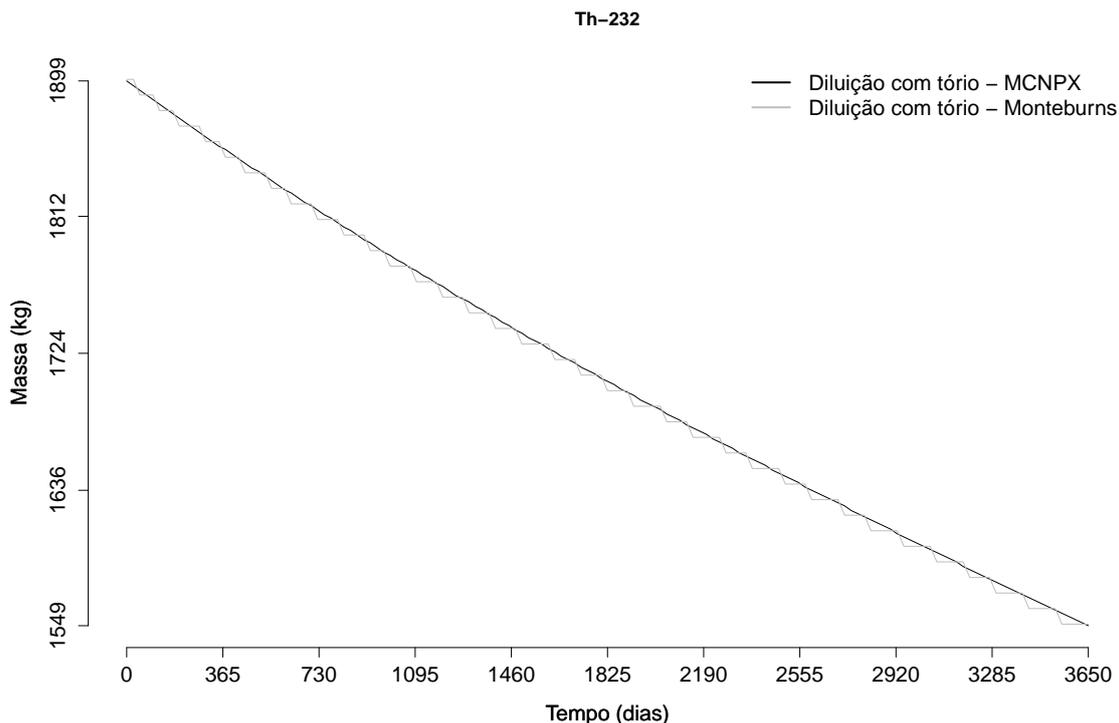
Figura 55 – Variação isotópica do ^{238}U nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.



As quantidades de ^{235}U e ^{238}U calculadas pelos dois códigos foram similares. Para o ^{235}U a diferença máxima (MCNPX - Monteburns) foi de 0,5 kg para a diluição com tório e de 0,06 para a diluição com urânio. Já para o ^{238}U , a diferença foi de -0,09 kg para a diluição com tório e 8 kg para a diluição com urânio.

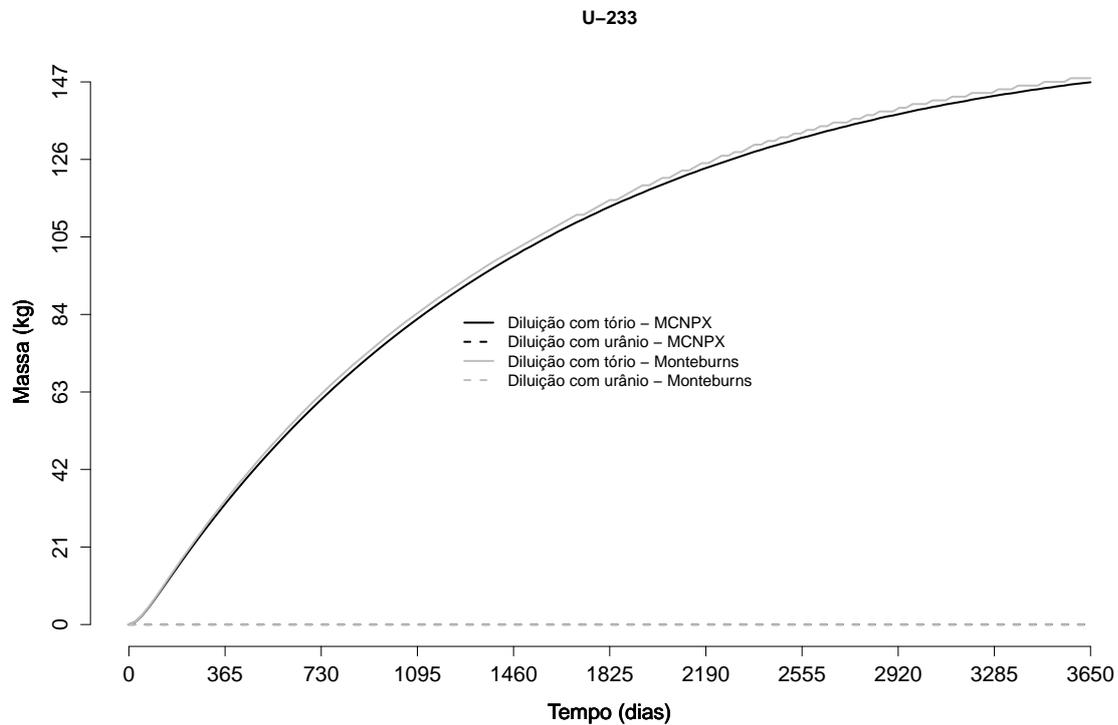
A Figura 56 mostra a redução da quantidade de ^{232}Th apenas para a diluição com tório, já que esse isótopo não está presente no combustível diluído com urânio. O consumo desse isótopo foi de cerca de 350 kg; sendo que grande parte desse consumo se deve à formação de ^{233}U . Os valores calculados pelos dois códigos foram bem próximos; a maior diferença entre a massa calculada pelo MCNPX e a calculada pelo Monteburns foi de 7 kg.

Figura 56 – Variação isotópica do ^{232}Th nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.

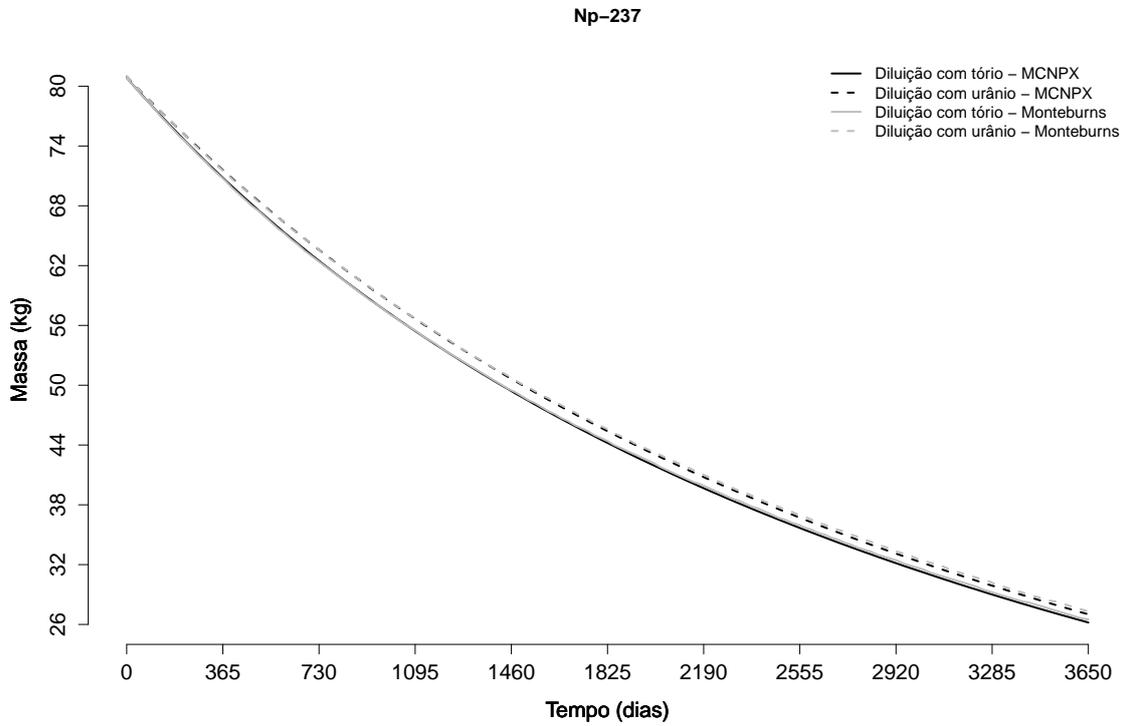
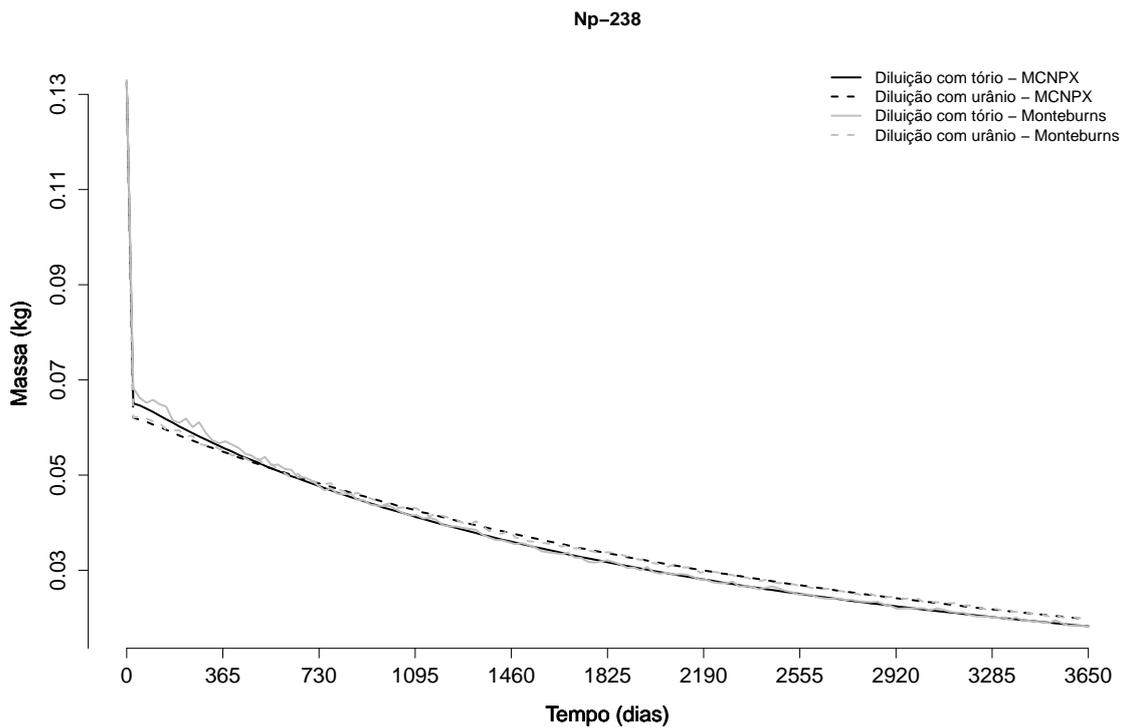


A formação de ^{233}U é mostrada na Figura 57. Foram produzidos ≈ 147 kg desse isótopo quando a diluição foi feita com tório. A quantidade desse isótopo quando a diluição é feita com urânio é quase nula. A produção de ^{233}U calculada pelo dois códigos foi bastante similar e a diferença foi desprezível.

Figura 57 – Variação isotópica do ^{233}U nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e MonteBurns.



As Figuras 58 e 59 mostram o consumo de ^{237}Np e ^{238}Np durante o período de queima. O neptúnio é produzido após duas reações (n, γ) e um decaimento β do ^{235}U , por reação ($n, 2n$) do ^{238}U e por decaimento α do ^{241}Am . O isótopo do neptúnio mais importante, do ponto de vista de radiotoxicidade gerada, é o ^{237}Np (com meia-vida de $2,14 \times 10^6$ anos).

Figura 58 – Variação isotópica do ^{237}Np nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.Figura 59 – Variação isotópica do ^{238}Np nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.

O decréscimo na quantidade de ^{237}Np se deve principalmente à produção de ^{238}Np por captura neutrônica. Já a pequena quantidade de ^{238}Np se justifica pelo fato de que ele decai rapidamente (2,117 dias) para o ^{238}Pu por meio de decaimento β . Novamente, não se observaram diferenças significativas na evolução desses isótopos para as duas diluições.

Os valores calculados pelo MCNPX também foram bem próximos aos calculados pelo Monteburns. A diferença máxima para o ^{237}Np foi de $\approx -0,54$ kg para a diluição com tório e 0,09 para a diluição com urânio. Para o ^{238}Np , as diferenças foram quase nulas.

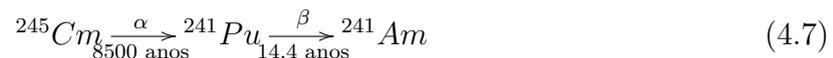
Como apontado por [Gerasimov et al. \(2000\)](#), o cúrio apresenta a maior radiotoxicidade dentre os actinídeos menores, com emissão de nêutrons e partículas α . Os isótopos do cúrio produzidos são: ^{242}Cm , ^{244}Cm e ^{245}Cm . O decaimento radioativo do ^{242}Cm pode ser esquematizado da seguinte forma:



O mais abundante de seus isótopos é o ^{244}Cm , que decai da seguinte forma:



Já o ^{245}Cm decai de acordo com a seguinte equação:



As Figuras 60, 61 e 62 mostram a variação isotópica do cúrio durante a queima. O isótopo ^{242}Cm possui uma meia-vida relativamente curta o que justifica sua diminuição. Já o pequeno aumento nas quantidades de ^{244}Cm e ^{245}Cm se justifica pelo fato de serem produzidos a partir do ^{238}U .

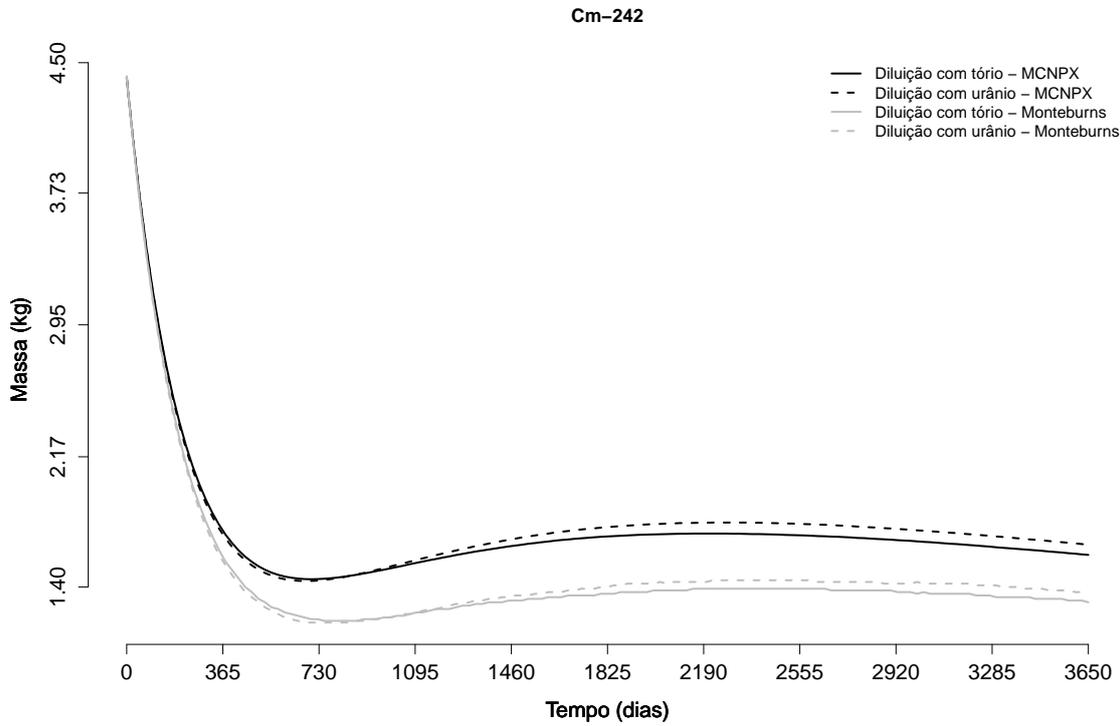
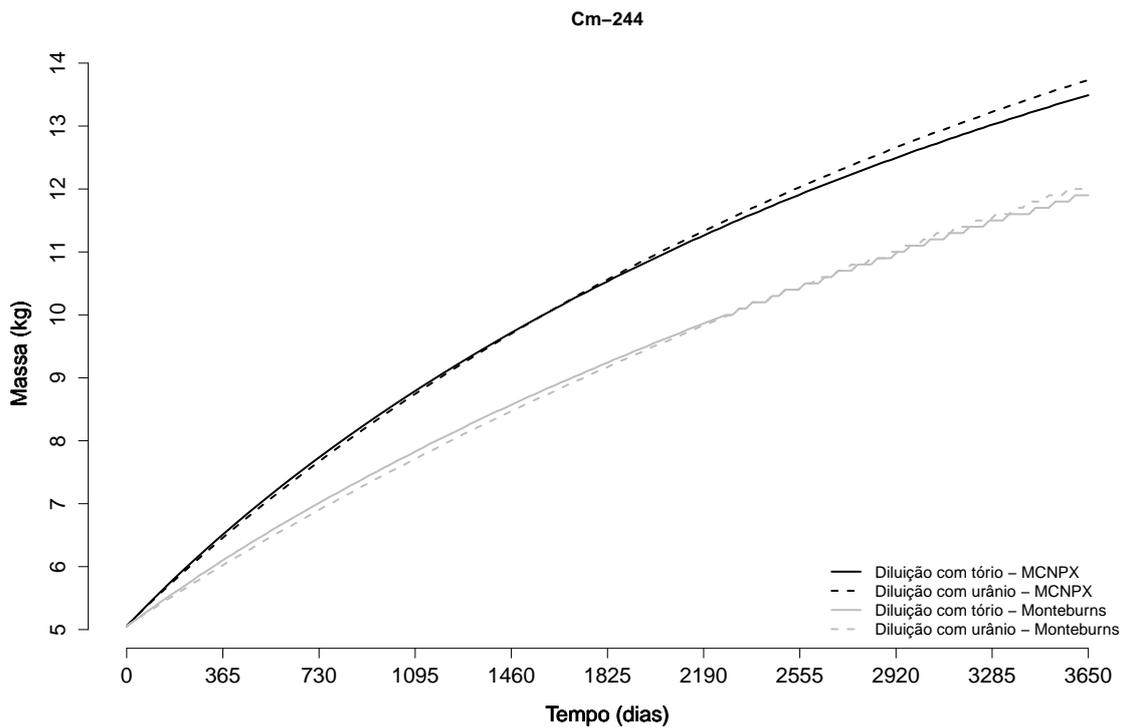
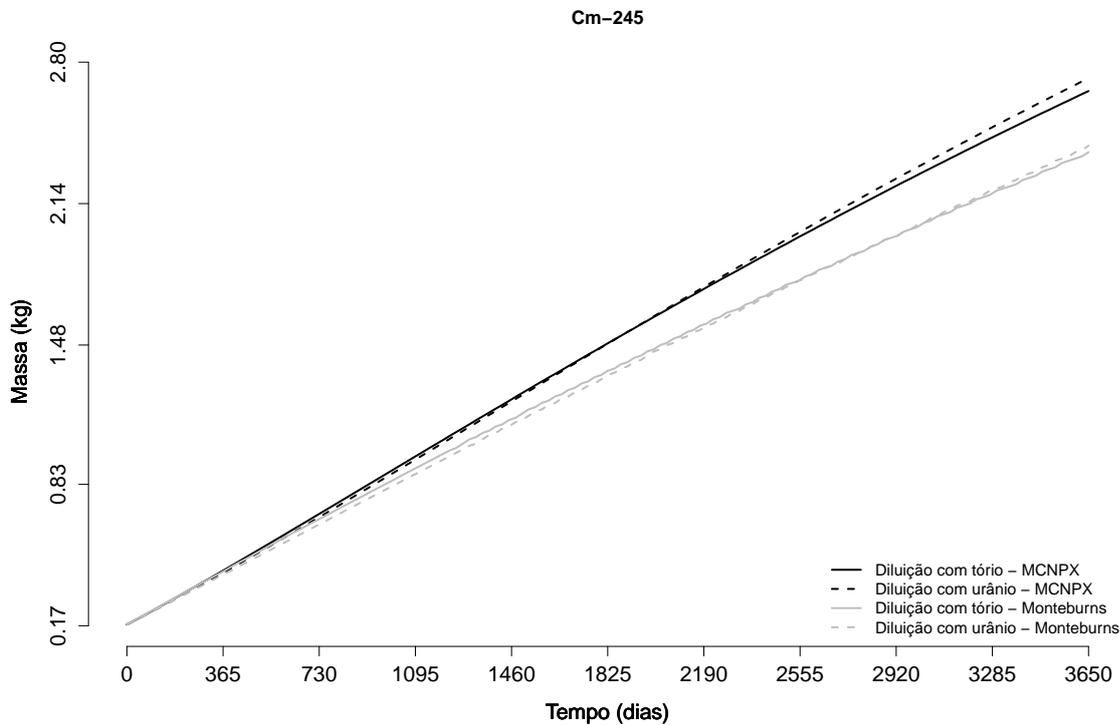
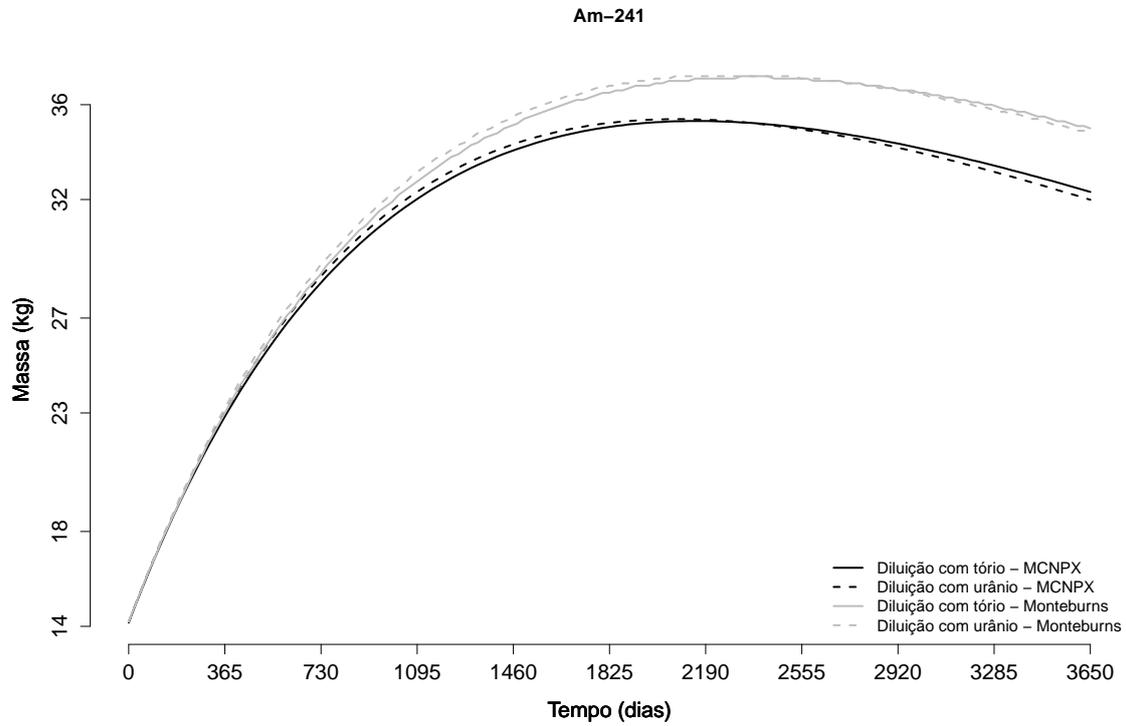
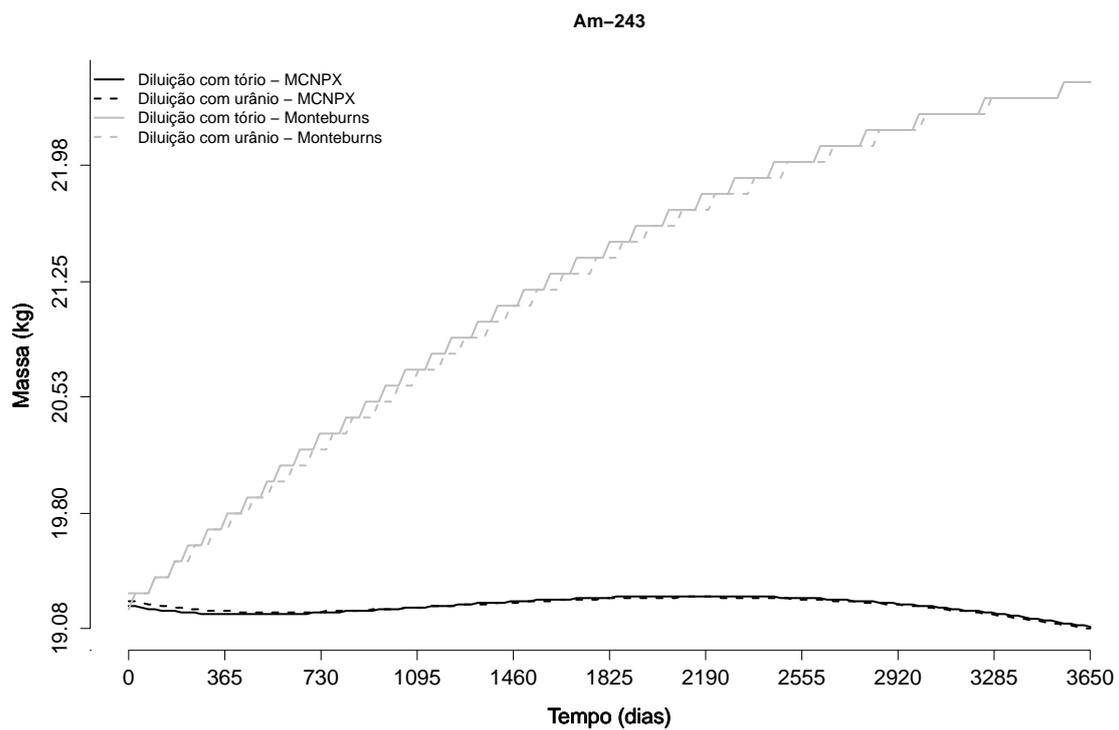
Figura 60 – Variação isotópica do ^{242}Cm nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.Figura 61 – Variação isotópica do ^{244}Cm nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.

Figura 62 – Variação isotópica do ^{245}Cm nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e MonteBurns.



Novamente, verificou-se que a evolução da concentração dos isótopos de cúrio foi similar nas duas diluições. Quanto à diferença entre os resultados gerados pelos dois códigos, nota-se que o MCNPX superestima as quantidades dos isótopos de cúrio. Já foi demonstrado por [Bomboni et al. \(2010\)](#), que o MCNPX quando comparado ao MonteBurns (utilizando o ORIGEN2 para os cálculos de queima) superestima a concentração de isótopos do cúrio. Isso se deve a diferenças nas cadeias de decaimento do ^{241}Pu seguidas por cada código.

As Figuras 63 e 64 mostram a evolução das concentrações dos isótopos de amerício. A concentração desses isótopos aumenta durante a queima, já que são formados a partir do ^{238}U . Quando se compara as duas diluições, vê-se que a evolução foi bem similar para os dois isótopos. Por outro lado, quando se compara os resultados dos dois códigos, verifica-se que o MCNPX subestima as concentrações desses isótopos. Esses resultados também estão de acordo com o previsto por [Bomboni et al. \(2010\)](#).

Figura 63 – Variação isotópica do ^{241}Am nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.Figura 64 – Variação isotópica do ^{243}Am nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.

As Figuras 65 a 69 mostram a evolução da quantidade dos isótopos do plutônio. O Plutônio contribui com a maior parcela da radiotoxicidade além de contribuir com a maior parcela em massa do combustível queimado, conforme apontado por [Delpech et al. \(1998\)](#).

Figura 65 – Variação isotópica do ^{238}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.

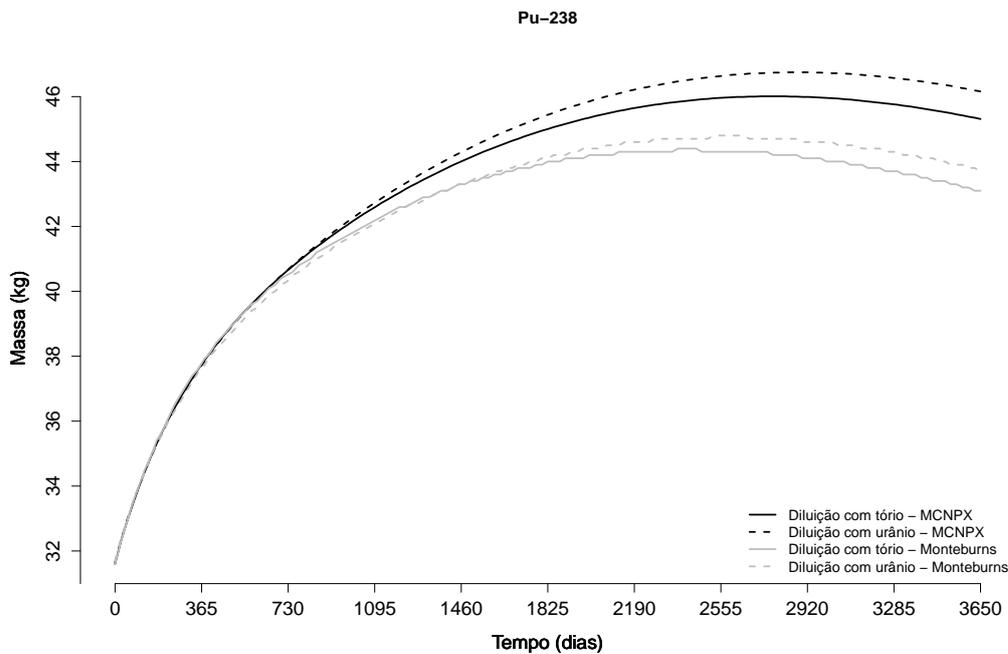


Figura 66 – Variação isotópica do ^{239}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.

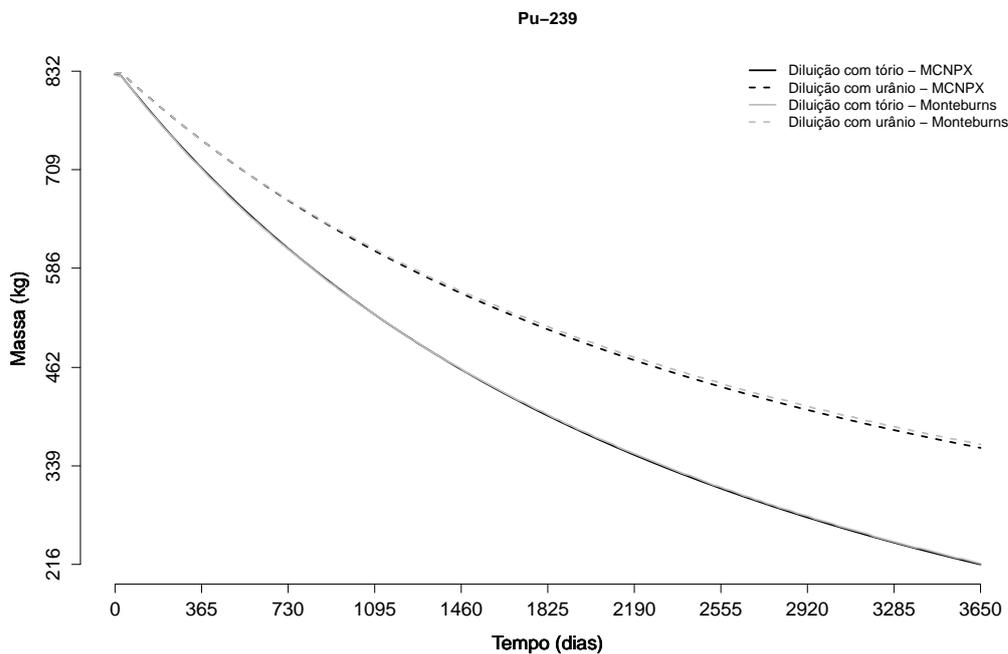


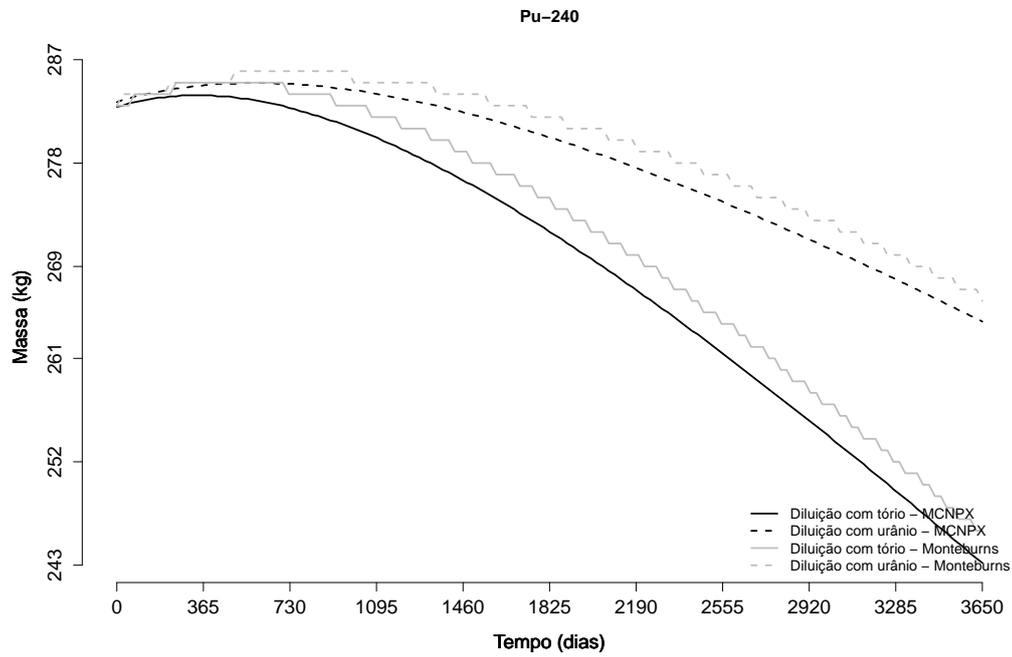
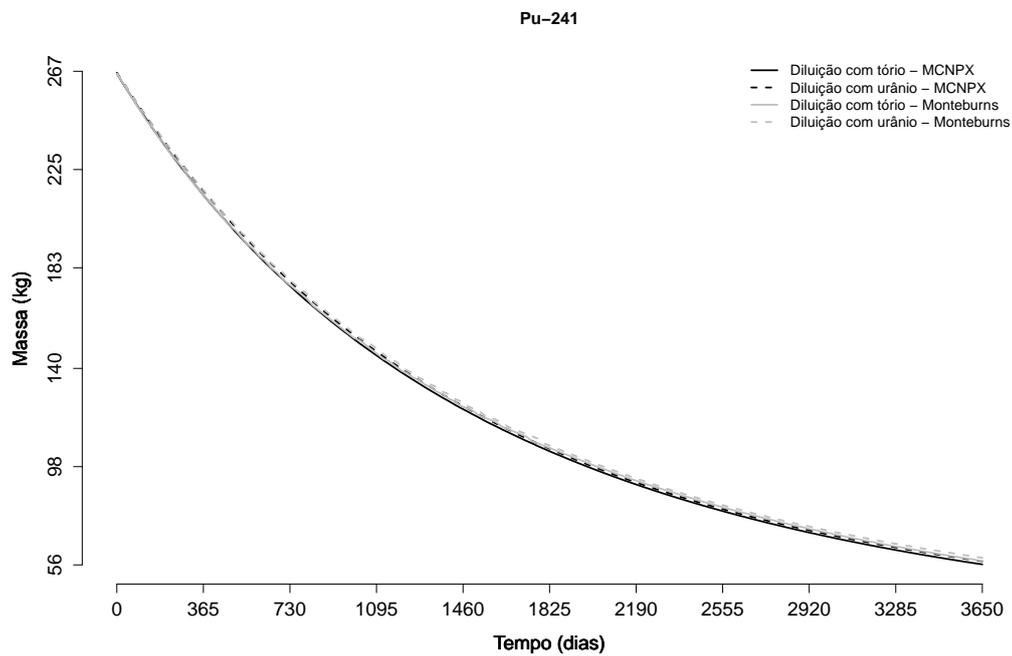
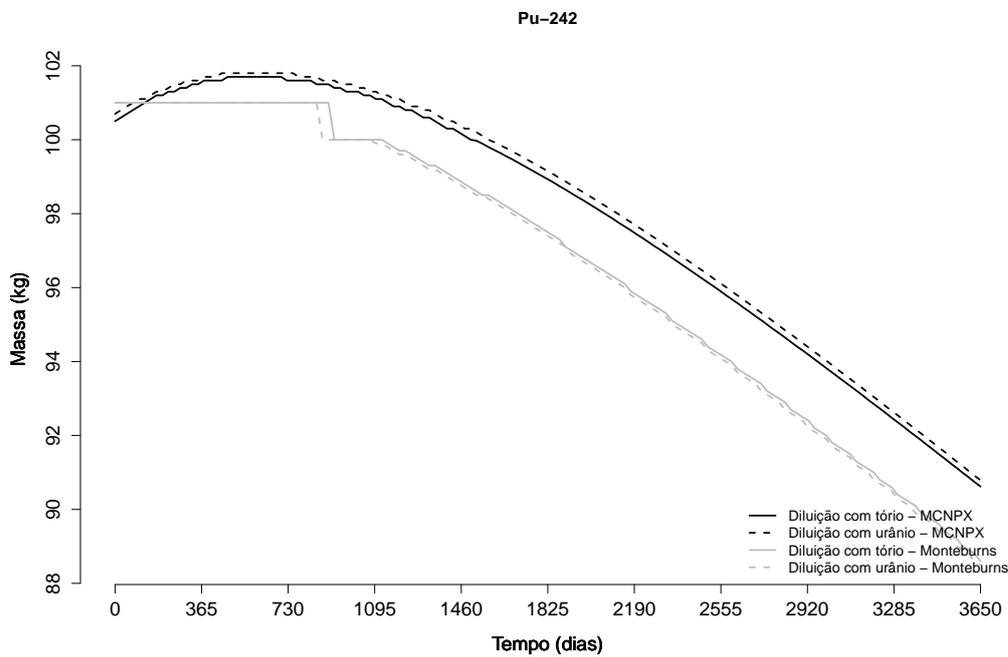
Figura 67 – Variação isotópica do ^{240}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e MonteBurns.Figura 68 – Variação isotópica do ^{241}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e MonteBurns.

Figura 69 – Variação isotópica do ^{242}Pu nas barras de combustível reprocessado para os códigos MCNPX e Monteburns.



O ^{238}Pu , que é formado a partir do ^{237}Np , teve sua concentração aumentada nas duas diluições. O aumento foi ligeiramente superior na diluição feita com urânio, já que nesse caso haverá maior disponibilidade de urânio para produção de ^{237}Np e conseqüentemente de ^{238}Pu . Já as quantidades de ^{239}Pu e ^{241}Pu foram reduzidas, principalmente devido a reações de fissão.

O ^{240}Pu dá origem ao ^{241}Pu por captura neutrônica, o que justifica a redução de sua concentração. A redução da quantidade de ^{242}Pu se dá principalmente devido à formação de ^{243}Am .

Quanto às diferenças entre as concentrações dos isótopos de plutônio calculadas pelos dois códigos, cabe ressaltar que, também de acordo com [Bomboni et al. \(2010\)](#), a quantidade de ^{238}Pu é superestimada pelo MCNPX. Isso porque esse isótopo é formado por decaimento alfa do ^{242}Cm , que também tem sua massa superestimada pelo MCNPX.

Parte III

Conclusões

5 Conclusões

5.0.4 Simulações de alvos de *spallation*

As simulações dos modelos disponíveis no MCNPX para descrição de reações de *spallation* mostraram que a produção de nêutrons é similar em todos os modelos. Entretanto, os tempos computacionais variam significativamente quando se varia o modelo utilizado. O modelo Bertini INC com o transporte de nucleons e píons foi o que apresentou menor tempo computacional.

Quanto à energia dos prótons utilizados na indução das reações de *spallation*, os resultados mostraram que o intervalo de energias que otimiza a produção de nêutrons varia de 1 a 1,5 GeV para o núcleo de chumbo. Nessa faixa de energia se produz um número elevado de nêutrons com economia na energia do feixe incidente.

Os resultados das simulações de diferentes materiais alvos mostraram que, como era esperado, a maior produção de nêutrons ocorre em alvos de materiais de alto número atômico. Entretanto, há que se considerar também que a produção de nêutrons é maior quando se utilizam alvos líquidos e, assim, o ponto de fusão dos materiais utilizados no alvo direcionam a escolha para o chumbo ou para a mistura chumbo-bismuto.

O código MCNPX 2.6.0 é uma boa ferramenta para a simulação de alvos de ADS, pois além de possuir vários modelos para a descrição de reações de *spallation* também realiza as simulações em curtos tempos computacionais.

5.0.5 Simulações dos núcleos subcríticos

Nesta tese foram apresentados os resultados de simulações de três combustíveis para ADS. O objetivo principal desse trabalho foi encontrar um combustível que torne possível o uso simultâneo de tório (sem enriquecimento) e rejeitos nucleares. Para essas simulações foram utilizados os códigos computacionais MCNPX que utiliza o CINDER90 para os cálculos de queima e Monteburns (utilizando o MCNP5 e o ORIGEN2.1).

A simulação do combustível 1 ($^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ }^{233}\text{UO}_2$) confirmou a necessidade de adição de ^{233}U ao tório para se obter níveis adequados de criticalidade inicial. Os resultados dessa simulação também mostraram que o uso de nêutrons de alta energia possibilitou a conversão de ^{232}Th em ^{233}U , permitindo que o sistema operasse durante 10 anos sem nenhuma recarga de combustível gerando uma potência relativamente alta (515 MW_t). Quanto às diferenças nos resultados gerados pelos dois códigos na simulação do combustível 1, verificou-se que os valores de k foram ligeiramente superiores na simulação com o Monteburns. Os valores gerados por esse código foram em média 0,028 superiores aos

valores gerados pelo MCNPX, sendo que essa diferença se deve ao fato de o Monteburns considerar o fluxo da fonte externa durante toda a queima. A diferença nos valores de k gerou algumas diferenças na evolução do combustível.

O combustível 2 foi montado a partir do combustível 1, por meio da troca de 24 barras de $^{232}\text{ThO}_2 + 15\% \text{ } ^{233}\text{UO}_2$ por barras de combustível queimado. Verificou-se que a inserção de combustível queimado reduziu consideravelmente os valores de k_{eff} . Como a inserção de combustível queimado reduz o percentual físsil do sistema e conseqüentemente sua criticalidade, não há como utilizá-lo juntamente com tório sem adição de ^{233}U . Sendo assim, o uso de combustível queimado sem reprocessá-lo, apesar de apresentar algumas vantagens com relação ao combustível 1 como, por exemplo, a redução da demanda inicial de ^{233}U e o reaproveitamento do combustível queimado, impossibilita o uso de tório natural que é o principal objetivo deste trabalho. Conforme dito anteriormente, a simulação deste combustível no código Monteburns, devido a uma limitação do ORIGEN2.1, não foi possível.

O combustível 3, composto por 36 barras de combustível reprocessado diluído (ora em ThO_2 , ora em UO_2 empobrecido) e as demais barras com ThO_2 , foi o único combustível simulado em que o combustível das barras de tório não necessitou de adição de ^{233}U para se atingir níveis adequados de criticalidade. Outra vantagem desse combustível foi a alta taxa de regeneração de combustível nas barras de tório; foram produzidos cerca de 900 kg de ^{233}U . Quanto ao combustível reprocessado, verificou-se a redução da quantidade de vários isótopos importantes quanto à radiotoxicidade gerada (^{238}U , ^{237}Np , ^{238}Np , ^{242}Cm , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu e ^{242}Pu). Tanto a diluição do combustível reprocessado em tório quanto a diluição em urânio empobrecido se mostraram eficientes. Entretanto, quando a diluição é feita com tório o decréscimo na criticalidade durante a queima foi menor, o que favorece uma possível extensão no período de queima. Outra vantagem da diluição com tório foi a produção de ^{233}U nas barras de combustível reprocessado.

Novamente, se observou algumas diferenças nos resultados obtidos com os dois códigos. Os valores de k calculados pelo Monteburns foram superiores (em cerca de 0,02) aos calculados pelo MCNPX. Essa diferença fez com que também ocorressem pequenas discrepâncias na evolução do combustível ThO_2 . Já as diferenças na evolução do combustível reprocessado foram mais influenciadas pelas diferenças nas cadeias de decaimento seguidas por cada código (já demonstradas na literatura) do que pelo fato de se levar ou não em conta a fonte externa durante a queima.

Conclui-se, portanto, que o combustível 3 (com os dois tipos de diluição) atende ao objetivo deste trabalho de se agregar a queima de rejeitos radioativos ao uso de tório sem adição de urânio. É necessário, então, que o combustível queimado seja previamente reprocessado para possibilitar o uso de tório natural. Quanto aos dois códigos utilizados, o Monteburns é mais adequado à simulação de um ADS por considerar o fluxo de nêutrons

proveniente das reações de *spallation* durante toda a queima. Entretanto, os resultados obtidos com o MCNPX não se distanciam muito dos resultados obtidos com o MonteBurns, tornando-o também uma opção para a simulação desses sistemas.

A principal contribuição desta tese para a literatura específica é a proposição do combustível 3, que torna possível a queima de rejeitos e a regeneração de tório. O uso de combustível reprocessado pelo método GANEX em ADS e a opção de se diluir o combustível reprocessado em ThO_2 também constituem contribuições deste trabalho.

Referências

ANEHEIM, E. et al. A tbp btbp based ganex separation process. part 1 feasibility. *Solvent Extraction and Ion Exchange*, v. 28, p. 437–458, 2010. Citado na página 60.

ATTA, C.; LEE, J.; HECKROTTE, W. *The electronuclear conversion of fertile to fissile material*. Livermore, USA, 1976. Disponível em: <http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/08/310/8310674.pdf>. Citado na página 25.

BERTINI, H. W. Low-energy intranuclear cascade calculation. *Physical Review*, v. 131, n. 4, p. 1801–1821, Agosto 1963. Citado na página 73.

BIELAJEW, A. F. *Fundamentals of the Monte Carlo method for neutral and charged particle transport*. Michigan, USA: University of Michigan, 2001. 335 p. Disponível em: <<http://www-personal.umich.edu/~bielajew/MCBook/book.pdf>>. Citado na página 64.

BOMBONI, E. et al. Comparison among mcnp based depletion codes applied to burnup calculations of pebble bed htr lattices. *Nuclear Engineering and Design*, v. 240, p. 918–924, 2010. Citado 2 vezes nas páginas 140 e 144.

BOUDARD, A. et al. Intranuclear cascade model for a comprehensive description of spallation reaction data. *Physical Review C*, v. 66, p. 1–28, 2002. Citado na página 73.

BOWMAN, C. Accelerator driven systems for nuclear waste transmutation. *Annual Review of Nuclear and Particle Science*, v. 48, p. 505–556, 1998. Citado na página 25.

BOWMAN, C. et al. Nuclear energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, v. 320, p. 336–367, 1992. Citado 3 vezes nas páginas 25, 33 e 37.

CARMINATI, F. et al. *An energy amplifier for cleaner and inexhaustible nuclear energy production driven by a particle beam accelerator*. Suíça, 1993. Citado 4 vezes nas páginas 25, 33, 34 e 48.

COTA, S. *Estudo Neutrônico Preliminar Da Reciclagem De Combustíveis Alternativos Em Reatores PWR*. Dissertação (Mestrado) — Departamento de Engenharia Nuclear-UFMG, 1996. Citado 2 vezes nas páginas 87 e 88.

DAVID, S. et al. Fast subcritical hybrid reactors for energy production: evolution of physical parameters and induced radiotoxicities. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A 443, p. 510–530, 2000. Citado 3 vezes nas páginas 25, 26 e 84.

DELPECH, M. et al. *Transmutation Of Americium And Curium Review Of Solutions And Impacts*. 1998. Disponível em: <<http://www.oecd-nea.org/trw/docs/mol98/session4/SIVpaper1.pdf>>. Citado na página 142.

DRESNER, L. *Fortran Program for Calculating the Evaporation of Various Particles from Excited Compound Nuclei*. Oak Ridge, USA, 1962. Citado na página 74.

- FENSIN, M. L. *Development of the mcnpX depletion capability: a monte carlo linked depletion method that automates the coupling between mcnpX and cinder90 for high fidelity burnup calculations*. Dissertação (Dissertation) — University Of Florida, 2008. Citado na página 69.
- FURUKAWA, K. et al. The combined system of accelerator molten salt breeder (amsb) and molten salt converter reactor (mscr). In: *Japan - US Seminar on Thorium Fuel Reactors*. Naora, Japão: Atomic Energy Society of Japan, 1982. Citado na página 25.
- GERASIMOV, A. et al. Conditions of transmutation of plutonium, americium, and curium in nuclear facilities. *Atomic Energy*, v. 49, p. 663 – 667, 2000. Citado na página 138.
- GUDIMA, K. K.; MASHNIK, S. G.; TONEEV, V. D. Cascade-exciton model of nuclear reactions. *Nuclear Physics A*, v. 401, p. 329–361, 1983. Citado na página 73.
- HABIB, M. *MCNPX simulations of fast neutron diagnostics for accelerator-driven systems*. Uppsala, Suécia, 2005. Citado na página 65.
- HENDRICKS, J. S. et al. *MCNPX 2.6.0 EXTENSIONS*. Los Alamos, USA, 2008. Citado 2 vezes nas páginas 66 e 68.
- HILL, D. et al. *A Roadmap for Developing ATW Technology: Systems Scenarios and Integration*. Argonne, USA, 1999. Citado 2 vezes nas páginas 47 e 48.
- IAEA. *Thorium fuel cycle Potential benefits and challenges*. Viena, Áustria, 2005. Citado 2 vezes nas páginas 57 e 58.
- IAEA. *Management of Reprocessed Uranium Current Status And Future Prospects*. Viena, Áustria, 2007. Citado 2 vezes nas páginas 59 e 60.
- IAEA. *Assessment of Partitioning Processes for Transmutation of Actinides*. Viena, Áustria, 2010. Citado na página 60.
- IAEA. *Spallations*. Viena, Áustria, 2014. <https://www-nds.iaea.org/spallations/>. Citado na página 41.
- ISHIMOTO, S.; ISHIBASHI, K.; TENZOU, H. Neutronics study on accelerator driven subcritical systems with thorium-based fuel for comparison between solid and molten-salt fuels. *Nuclear Technology*, v. 138, p. 300–312, 2002. Citado na página 26.
- ISMAIL et al. Performance of natural uranium and thorium fueled fast breeder reactors (fbrs) for ²³³u fissile production. *Progress in Nuclear Energy*, v. 50, p. 290–294, 2008. Citado na página 25.
- JUNGHANS, A. R. et al. Projectile-fragment yields as a probe for the collective enhancement in the nuclear level density. *Nuclear Physics A*, v. 629, p. 635–655, 1998. Citado na página 74.
- K., G. K.; TONEEV, G. A. O. V. D. Model for pre-equilibrium decay of excited nuclei. *Sov. J. Nucl. Phys.*, v. 21, n. 260, p. 138, 1975. (em russo) apud KRASA, A. Neutron Emission in Spallation Reactions of 0.7 2.0 GeV Protons on Thick, Lead Target Surrounded by Uranium Blanket. (Dissertation Thesis) Czech Technical University in Prague, Praga, República Tcheca, 2008. Citado na página 73.

- KRASA, A. *Neutron Emission in Spallation Reactions of 0.7 2.0 GeV Protons on Thick, Lead Target Surrounded by Uranium Blanket*. Dissertação (Dissertation Thesis) — Czech Technical University in Prague, Praga, República Tcheca, 2008. Citado 2 vezes nas páginas 72 e 73.
- LAMARSH, J. R. *Introduction to Nuclear Engineering*. Segunda edição. USA: Addison Wesley Publishing Company, 1983. Citado na página 112.
- E. Lawrence, E. MacMillan e L. Alvarez. *Electronuclear Reactor US Patent*. 1960. 933 442. Citado na página 25.
- LEWIS, W. *The Significance of the Yield of Neutrons from Heavy Nuclei Excited to High Energies*. Ontário, Canadá, 1952. Citado na página 25.
- Los Alamos National Laboratory. *MCNP- A General Monte Carlo N-Particle Transport Code-Version 4B*. Los Alamos, USA, 1997. Citado 2 vezes nas páginas 64 e 65.
- Los Alamos National Laboratory. *MCNPX User's Manual Version 2.6.0*. Los Alamos, USA, 2008. Citado 5 vezes nas páginas 72, 74, 77, 78 e 98.
- MIGUIRDITCHIAN, M. et al. Development of the ganex process for the reprocessing of gen iv spent nuclear fuels. In: *Atalante*. Montipellier, França: CEA, 2008. Citado na página 27.
- MONGELLI, S. T. et al. Spallation physics and the ads target design. *Brazilian Journal of Physics*, v. 35, p. 894–897, 2005. Citado 2 vezes nas páginas 40 e 41.
- MUKAIYAMA, T. et al. Review os research and development of accelerator driven system in japan for transmutation os long lived nuclides. *Progress in Nuclear Energy*, v. 38, p. 107–134, 2001. Citado na página 47.
- National Nuclear Data Center. *Evaluated Nuclear Data File (ENDF)*. 2014. Disponível em: <<http://www.nndc.bnl.gov/exfor/endl00.jsp>>. Citado 3 vezes nas páginas 42, 46 e 47.
- NEA. *Accelerator-driven Systems (ADS) and Fast Reactors (FR) in Advanced Nuclear Fuel Cycles- A Comparative Study*. Paris, França, 2002. Citado 4 vezes nas páginas 49, 50, 51 e 52.
- NIFENECKER, H.; DAVID, S.; LOISEAUX, A. G. J. M. Hybrid nuclear reactors. *Progress in Particle and Nuclear Physics*, v. 43, p. 683–827, 1999. Citado na página 43.
- NIFENECKER, H. et al. Basics of accelerator driven subcritical reactors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A 463, p. 428–467, 2001. Citado 2 vezes nas páginas 42 e 45.
- NIFENECKER, H.; MEPLAN, O.; DAVID, S. *Accelerator Driven Subcritical Reactors*. Filadélfia, USA: Institute of Physics Publishing Bristol and Philadelphia, 2003. Citado 15 vezes nas páginas 32, 37, 38, 39, 40, 44, 45, 50, 51, 52, 53, 54, 56, 72 e 87.
- Oak Ridge National Laboratory. *Accelerator breeder and converter reactor symbiosis preliminary report on the promise of accelerator breeding and converter reactor symbiosis (ABACS) as an alternative energy system*. Oak Ridge, USA, 1977. Citado na página 25.

- POSTON, D. I.; TRELLEUE, H. R. *Users Manual, Version 2.0 for MonteBurns, Version 1.0*. USA, 1999. Citado 3 vezes nas páginas 68, 69 e 71.
- PRAEL, R. E.; BOZOIAN, M. *Adaptation of the Multistage Preequilibrium Model for the Monte Carlo Method*. Los Alamos, USA, 1988. Citado na página 73.
- RUBBIA, C. et al. *A realistic plutonium elimination with fast energy amplifier and thorium-plutonium fuel*. Genebra, Suíça, 1995. Citado na página 26.
- RUBBIA, C. et al. *Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier*. Genebra, Suíça, 1995. Citado 8 vezes nas páginas 33, 34, 36, 37, 45, 63, 80 e 87.
- SAHIN, S. et al. Criticality investigations for the fixed bed nuclear reactor using thorium fuel mixed with plutonium or minor actinides. *Annals of Nuclear Energy*, v. 36, p. 1032–1038, 2009. Citado na página 26.
- SAHIN, S. et al. Increased fuel burn up in a candu thorium reactor using weapon grade plutonium. *Nuclear Engineering and Design*, v. 236, p. 1778–1788, 2006. Citado na página 26.
- SALVATORES, M.; SLESSAREV, I.; UEMATSU, M. Global physics approach to transmutation or radioactive nuclei. *Nuclear Science and Engineering*, v. 116, p. 1–18, 1994. Citado na página 25.
- SCHRAM, R.; KLAASSEN, F. Plutonium management with thorium-based fuels and inert matrix fuels in thermal reactor systems. *Progress in Nuclear Energy*, v. 49, p. 617–622, 2007. Citado na página 26.
- TAKIZUKA, T. et al. Conceptual design of transmutation plant. In: *Proc. Specialist Mtg. Accelerator Driven Transmutation Technology for Radwaste. LA-12205-C*. Los Alamos, USA: Los Alamos National Laboratory, 1991. Citado na página 25.
- The European Technical Working Group on ADS. *A European Roadmap for Developing Accelerator Driven Systems (ADS) for Nuclear Waste Incineration*. Paris, França, 2001. Citado 3 vezes nas páginas 33, 61 e 62.
- TRELLEUE, H.; BATHKE, C.; SADASIVAN, P. Neutronics and material attractiveness for pwr thorium systems using monte carlo techniques. *Progress in Nuclear Energy*, v. 53, p. 698–707, 2011. Citado na página 26.
- TRELLEUE, H.; D.POSTON. *MonteBurns: A Monte Carlo burnup code for accelerator applications*. Los Alamos National Laboratoty, 2000. Citado na página 70.
- TRELLEUE, H. R. *Reduction of the Radiotoxicity of Spent Nuclear Fuel Using a Two-Tiered System Comprising Light Water Reactors and Accelerator-Driven Systems*. Tese (Doutorado) — Los Alamos National Laboratory, 2003. Citado na página 32.
- TUYLE, G. J. V. et al. Accelerator-driven sub-critical target concept for transmutation of nuclear wastes. *Nuclear Technology*, v. 101, p. 1–22, 1993. Citado 2 vezes nas páginas 25 e 33.
- 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. Citado 2 vezes nas páginas 27 e 61.

World Nuclear Association. *Accelerator-driven Nuclear Energy*. 2011. Disponível em: <<http://www.world-nuclear.org/info/Current-and-Future-Generation/Accelerator-driven-Nuclear-Energy/>>. Citado na página 31.

World Nuclear Association. *Thorium*. 2013. Disponível em: <<http://www.world-nuclear.org/info/Current-and-Future-Generation/Thorium/#References>>. Citado na página 59.

YAPICI, H.; BAYRAK, M. Neutronic analysis of denaturing plutonium in a thorium fusion breeder and power flattening. *Energy Conversion and Management*, v. 46, p. 1209–1228, 2005. Citado na página 26.

YAPICI, H.; GENÇ, G.; DEMİR, N. A comprehensive study on neutronics of a lead-bismuth eutectic cooled accelerator-driven sub-critical system for long-lived fission product transmutation. *Annals of Nuclear Energy*, v. 35, p. 1264–1273, 2008. Citado na página 25.

YARIV, Y.; FRAENKE, Z. Intranuclear cascade calculation of high energy heavy ion collisions: Effect of interactions between cascade particles. *Physical review C*, v. 24, n. 2, p. 488–494, Agosto 1981. Citado na página 73.

Apêndices


```

32  0      -51 44 -12 imp:n=1
33  1 -7.87  -50 51 12 -6 imp:n=1
34  0      -51 12 -6 imp:n=1
35  1 -7.87  -50 51 6 -3 imp:n=1
36  0      -51 6 -3 imp:n=1

```

C Refletor

```

1   cz  155
2   pz -155
3   pz  155
4   cz  150
5   pz -150
6   pz  150

```

C Núcleo

```

10  cz  100
11  pz -100
12  pz  100

```

C hexagonal mesh

```

21  py -6
22  py  6
23  p   8.66025e-01  5.00000e-01  0.00000e+00 -6
24  p   8.66025e-01  5.00000e-01  0.00000e+00  6
25  p   8.66025e-01 -5.00000e-01  0.00000e+00 -6
26  p   8.66025e-01 -5.00000e-01  0.00000e+00  6

```

C barras de combustível

```

30  cz  2.15
31  pz -101
32  pz  101

```

C Alvo

```

40  cz  13
41  cz  10
42  cz  9.5
43  pz -30
44  pz  10
45  pz -29.5
46  pz  9.5

```

C Tubo

```

50  cz  2
51  cz  1.5

```

```

BURN  TIME=25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,&
      25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,&
      25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,&
      25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,&
      25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,&
      25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,&
      25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,&
      25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,&
      25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,&
      25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25,25
      MAT=4
      POWER=515
      PFRAC=1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
      1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
      1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
      1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
      1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&

```

```
1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,&
1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0,1.0
OMIT=4,27,90234,91232,82206,82207,82208,83209,&
80203,81203,81204,81205,82205,06014,07016,08018,9018,&
82209,82210,83206,83207,83208,83210,84207,&
84208,84209,84210,90229,91230
BOPT=1.0,4
C Material card
m1 26000.55c 1
m2 82000.50c 1
m3 82000.50c 1
m4 92233.60c 0.15 90232.60c 0.85 &
8016.60c 4.0
sdef pos 0 0 0 ERG=D1 RAD=D2 EXT=D3 AXS 0 0 -1
SP1 -5 1.3 $ p(E) proporcional a E exp (-E/1.3)
SI2 0. 9.
SI3 -9 29
TOTNU
PRDMP 2J -1
kcode 5000 1 15 515
```



```
C Refletor
1  cz  155
2  pz -155
3  pz  155
4  cz  150
5  pz -150
6  pz  150
C Núcleo
10 cz  100
11 pz -100
12 pz  100
C hexagonal mesh
21 py -6
22 py  6
23 p  8.66025e-01  5.00000e-01  0.00000e+00 -6
24 p  8.66025e-01  5.00000e-01  0.00000e+00  6
25 p  8.66025e-01 -5.00000e-01  0.00000e+00 -6
26 p  8.66025e-01 -5.00000e-01  0.00000e+00  6
C barras de combustível
30 cz  2.15
31 pz -101
32 pz  101
C Alvo
40 cz  13
41 cz  10
42 cz  9.5
43 pz -30
44 pz  10
45 pz -29.5
46 pz  9.5
C Tubo
50 cz  2
51 cz  1.5

C Material card
m1 26000.55c 1
m2 82000.50c 1
m3 82000.50c 1
m4 92233.60c 0.15 90232.60c 0.85 &
    8016.60c 4.0
imp:n          0          1 18r      $ 1, 36
c
sdef pos 0 0 0 ERG=D1 RAD=D2 EXT=D3 AXS 0 0 -1
SP1 -5 1.3 $ p(E) proporcional a E exp (-E/1.3)
SI2 0. 9.
SI3 -9 29
totnu
print
nps 2000
```

Entrada para simulação do combustível 1 (Monteburns)

UNSU

1

4

0.

515.

-200.

3650

146

20

1

0

26

/home/clubia/ORIGEN2/LIBS

.001

1

9

90232.60c

90233.42c

91231.60c

91233.50c

92232.60c

92233.60c

92235.60c

93237.60c

94239.60c

APÊNDICE B – Artigos Publicados

Artigos completos publicados em periódicos:

- Graiciany P. Barros, Claubia Pereira, Maria A.F. Veloso, Antonella L. Costa and Patrícia A.L. Reis. Neutron production evaluation from a ADS target utilizing the MCNPX 2.6.0 code. **Braz. J. Phys.**, São Paulo , v. 40, n. 4, 2010. <http://dx.doi.org/10.1590/S0103-97332010000400010>.
- Graiciany P. Barros, Claubia Pereira, Maria A. F. Veloso, Renan Cunha and Antonella L. Costa. Fast Accelerator Driven Subcritical System for Energy Production Using Burned Fuel. **Fusion Science and Technology**, v. 61, 2012.
- Graiciany P. Barros, Claubia Pereira, Maria A. F. Veloso and Antonella L. Costa. Study of an ADS Loaded with Thorium and Reprocessed Fuel. **Science and Technology of Nuclear Installations**, v. 2012, 2012. doi:10.1155/2012/934105.

Trabalhos completos publicados em anais de congressos:

- Graiciany P. Barros, Claubia Pereira, Maria A. F. Veloso, Carlos E. Velasquez and Antonella L. Costa. A Comparative Study Of MonteBurns And MCNPX 2.6.0 Codes In ADS Simulations. In: 2013 International Nuclear Atlantic Conference, Recife. **INAC** (2013).
- Graiciany de P. Barros; Claubia Pereira ; Maria Auxiliadora Fortini Veloso and Antonella Lombardi Costa. Fuel Regeneration Analysis of an Accelerator Driven System Using the MCNPX 2.6.0 Code. In: 2011 International Congress on Advances in Nuclear Power Plants **ICAPP** 2011, Nice - França (2011).
- Graiciany de P. Barros, Claubia Pereira, Maria A. F. Veloso and Antonella L. Costa. Fast Accelerator driven subcritical system for energy production: nuclear fuel evolution. In: International Conference on Mathematics and Computational Methods Applied to Nuclear Science and Engineering **M&C** 2011, Rio de Janeiro (2011).

- Graiciany P. Barros, Claubia Pereira, Maria A. F. Veloso and Antonella L. Costa. Simulation of an Ads Fueled With Thorium And Reprocessed Fuel Using Monte Carlo Methodology. In: 2011 International Nuclear Atlantic Conference, 2011, Belo Horizonte. **INAC** (2011).
- Graiciany P. Barros, Claubia Pereira, Maria A. F. Veloso and Antonella L. Costa. Comparative study of the neutron production by spallation and fusion reactions for subcritical hybrid systems applications. In: ICNPAA 2010 World Congress: 8th International Conference on Mathematical Problems in Engineering, Aerospace and Sciences, 2010, São José dos Campos. **ICNPAA** (2010).
- Graiciany P. Barros, Claubia Pereira, Maria A. F. Veloso and Antonella L. Costa. A Preliminary Simulation Of An ADS Using MCNPX For U-233 Production. In: 2009 International Nuclear Atlantic Conference, 2009, Rio de Janeiro. **INAC** (2009).
- Graiciany P. Barros, Claubia Pereira, Maria A. F. Veloso and Antonella L. Costa. Análise Da Produção De Nêutrons Em Alvos De ADS Utilizando O Código MCNPX 2.6. In: Encontro de Modelagem Computacional, 2009, Rio de Janeiro. XII Encontro de Modelagem Computacional Instituto Militar de Engenharia. **EMC** (2009).