

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS**  
**ESCOLA DE ENGENHARIA**

**TRANSURÂNICOS EM REATOR A GÁS DE ALTA  
TEMPERATURA**

**ÂNGELA FORTINI MACEDO FERREIRA**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares da Escola de Engenharia da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito parcial para obtenção do título de Doutor em Ciências e Técnicas Nucleares.

Área de concentração: Engenharia Nuclear e da Energia

Orientadora: Cláudia Pereira Bezerra Lima

Co-Orientador: Rômulo Verdolin de Sousa

**BELO HORIZONTE**

**2014**

F383t

Ferreira, Ângela Fortini Macedo.  
Transurânicos em reator a gás de alta temperatura [manuscrito] /  
Ângela Fortini Macedo Ferreira. – 2014.  
xii, 84 f., enc.: il.

Orientadora: Cláudia Pereira Bezerra Lima.  
Coorientador: Rômulo Verdolin de Sousa.

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

Bibliografia: f.81-84.

1. Engenharia nuclear – Teses. 2. Elementos transurânicos – Teses.  
3. Reatores nucleares – Teses. I. Lima, Cláudia Pereira Bezerra. II. Sousa,  
Rômulo Verdolin de. III. Universidade Federal de Minas Gerais. Escola de  
Engenharia. IV. Título.

CDU: 621.039(043)

**À Mommy Blue**

## **AGRADECIMENTOS**

Ao contrário da maioria, este não é um começo.

Tantos caminhos trilhados, tantas pessoas encontradas, tantas perdas...

Muitas foram as que me ofereceram visões e inspiração para me encantar com o universo e desejar conhecê-lo. Devo agradecimento a elas pelo grande prazer de ter a profissão de aprender.

Agradeço à minha orientadora, Cláudia, cuja confiança e amizade me ajudaram a chegar ao fim e ao meu co-orientador, Rômulo, pela inestimável ajuda.

Aos companheiros do Departamento de Engenharia Nuclear, que muito me auxiliaram nesta empreitada, agradeço por tudo.

À minha família maravilhosa, meu bem mais precioso, minha gratidão.

## RESUMO

Neste trabalho foi utilizado o modelamento com o código Scale 6.0 de um reator a gás de alta temperatura, HTGR, do tipo bloco prismático para analisar aspectos da utilização de combustíveis transurânicos nestes reatores. Para representar o conceito, foi escolhido o reator HTTR japonês. Os combustíveis estudados utilizam os elementos transurânicos oriundos do reprocessamento UREX+ do rejeito dos reatores PWR diluídos em U empobrecido ou em Th. Os cálculos, realizados para temperaturas de trabalho típicas de reatores HTR, mostraram que, em misturas com o mesmo percentual de material físsil, o fator de multiplicação,  $k_{eff}$ , inicial é maior nas misturas com Th que nas misturas com U. Foram realizadas comparações entre os dois tipos de combustível utilizando-se pares que exibem o mesmo  $k_{eff}$  inicial. Durante a queima, as duas misturas exibem uma lenta e quase paralela queda do fator de multiplicação. Para um mesmo nível de burnup, as misturas com Th mostram maior efetividade na queima de transurânicos e Pu total quando comparadas à misturas com U empobrecido correspondentes. O cálculo do coeficiente de temperatura da reatividade mostrou comportamento adequado em relação às condições de segurança do reator funcionando com estes combustíveis. A radiotoxicidade do combustível queimado logo após a queima cresce com o nível de burnup sofrendo inversão neste comportamento antes de 1000 anos. A radiotoxicidade dos actínídeos passa a dominar a radiotoxicidade total em menos de 10 anos após a queima sendo menor nas misturas com Th que nas misturas com U correspondentes.

**Palavras Chave:** *Reator a Gás de Alta Temperatura; transurânicos; tório; radiotoxicidade*

## ABSTRACT

In this work, we modeled a high temperature gas reactor, HTGR, of prismatic block type using the SCALE 6.0 code to analyze the use of transuranic fuel in these reactors. To represent the concept, the Japanese HTTR reactor was chosen. The fuels considered used transuranic elements from UREX+ reprocessing of burned PWR fuel spiked with depleted U or Th. The calculations, performed for typical temperatures of HTR reactors, showed that, in mixtures with the same percentage of fissile material, the initial effective multiplication factor,  $k_{eff}$ , is higher in the mixtures containing Th than that with U. Comparisons between the two types of fuel were performed using fuel pairs with the same initial  $k_{eff}$ . During burn-up, the two mixtures result in a slow and practically equal decrease in  $k_{eff}$ . For the same level of burnup, mixtures containing Th show greater effectiveness in burning transuranics and total plutonium when compared to corresponding mixtures with depleted U. The calculation of temperature reactivity coefficient proved appropriate behavior in terms of safety of the reactor working with these fuels. The radiotoxicity of spent fuels immediately after the burning increases with increasing burnup. However, due to faster decay of fissionable products at high burnup levels, radiotoxicity after 1000 years diminishes with increasing burnup. Actinides become responsible for most of the radiotoxicity in less than 10 years after burn. It is also lower in mixtures with Thorium than in mixtures Uranium.

**Key Words:** *High Temperature Gas Reactor; transuranics; thorium; radiotoxicity)*

# SUMÁRIO

<b>AGRADECIMENTOS</b>	i
<b>RESUMO</b>	ii
<b>ABSTRACT</b>	iii
<b>SUMÁRIO</b>	iv
<b>LISTA DE TABELAS</b>	vii
<b>LISTA DE FIGURAS</b>	viii
<b>LISTA DE ABREVIações, SIGLAS E SÍMBOLOS</b>	ix
<b>1. INTRODUÇÃO</b>	1
<b>2. REJEITOS RADIOATIVOS DA GERAÇÃO DE ENERGIA EM REATORES NUCLEARES</b>	6
<b>2.1 Geração de Rejeitos Radioativos nos Reatores Nucleares</b>	6
2.1.1 Utilização do tório	7
<b>2.2 Estratégias para o “back-end” do Ciclo do Combustível</b>	8
<b>2.3 Reprocessamento do Combustível</b>	9
2.3.1 O processo PUREX	10
2.3.2 O processo UREX +	11
<b>2.4 Transmutação</b>	13
<b>2.5 Opções para a Queima de Transurânicos</b>	17
<b>2.6 Reatores a Gás de Alta Temperatura – HTGR</b>	18
<b>2.7 Queima de Transurânicos em Reatores HTGR</b>	20
<b>3. MODELAMENTO DO REATOR HTTR</b>	26
<b>3.1 O Reator HTTR</b>	26
<b>3.2 Simulação Neutrônica de Reatores Nucleares</b>	30
3.2.1 O código SCALE	31
<b>3.3 Descrição do Modelamento do Reator HTTR com o Código SCALE</b>	33
<b>4. METODOLOGIA E ANÁLISE DOS RESULTADOS</b>	38
<b>4.1 Resultados Preliminares</b>	38
<b>4.2 Estabelecimento das Condições de Trabalho do Reator HTTR</b>	46
<b>4.3 Condições de Criticalidade do HTTR com Combustíveis TRUs</b>	47
<b>4.4 Queima dos Combustíveis trasurânicos no HTTR</b>	50

<b>4.5 Evolução da Composição do Combustível Durante a Queima</b>	54
<b>4.6 Coeficiente de Temperatura do Combustível</b>	61
<b>4.7 Perfil do Fluxo de Nêutrons no Combustível</b>	65
<b>4.8 Radiotoxicidade do Combustível Após a Queima</b>	67
4.8.1 Radiotoxicidade dos produtos de fissão	69
4.8.2 Radiotoxicidade dos actínídeos	70
4.8.2.1 Principais actínídeos responsáveis pela radiotoxicidade do combustível queimado	73
<b>5. CONCLUSÃO</b>	78
<b>5.1 Recomendações</b>	80
<b>REFERÊNCIAS</b>	81



## LISTA DE TABELAS

Tabela 2.1 - Seção de choque média de actínídeos	15
Tabela 3.1 - Dimensões das partículas TRISO do Reator HTTR	29
Tabela 3.2 - Características de projeto do reator HTTR	29
Tabela 4.1 - Valores de $K_{\text{eff}}$ experimental e calculados com códigos MonteCarlo para o reator HTTR	38
Tabela 4.2 - Composição dos isótopos pesados do rejeito do PWR após 5 anos de resfriamento	38
Tabela 4.3 - Composição do material transurânico utilizado nas simulações	40
Tabela 4.4 - Composição da partícula TRISO dos combustíveis alternativos	41
Tabela 4.5 - Variação do $k_{\text{eff}}$ inicial com a fração físsil do combustível	48
Tabela 4.6 – Variação da massa dos núclídeos pesados após a queima	58
Tabela 4.7 - Resumo da variação de massa por categorias de núclídeos após a queima	59
Tabela 4.8 – Variação Percentual dos TRUs e dos Mas	60
Tabela 4.9 Radiotoxicidade por ingestão do rejeito após a queima	68
Tabela 4.10.- Característica de decaimento de alguns radioisótopos do combustível queimado.	74

## LISTA DE FIGURAS

Fig. 2.1 - Radiotoxicidade do combustível descarregado de um reator PWR	7
Fig. 2.2 - Diagrama simplificado de uma planta de processamento PUREX	10
Fig. 2.3 - Etapas de separação UREX+12	12
Fig. 2.4 - Cadeia de transformação de actínídeos no ciclo U-Pu	14
Fig. 2.5 - Cadeia de transformação de actínídeos no ciclo U-Th.	14
Fig. 2.5 - Seção de choque de captura radiativa na faixa de energia térmica	16
Fig. 2.6 - Fração de fissões na absorção por isótopos intermediários	17
Fig. 2.7 - Combustível TRISO	19
Fig. 3.1 – Seção vertical do vaso do reator HTTR	26
Fig. 3.2 – Seção radial do núcleo do reator HTTR	27
Fig. 3.3 - Detalhe da constituição do elemento combustível	28
Fig.3.4 - Perfil radial do modelamento do núcleo do reator HTTR	33
Fig.3.5 - Perfil axial das colunas de combustível	34
Fig.3.6 - Perfil radial dos blocos de combustível	35
Fig. 3.7 Perfil radial dos blocos de barra de controle.	36
Fig. 3.8 - Modelamento do combustível	36
Fig. 4.1. Variação do $k_{\text{eff}}$ para os três tipos de combustível (300 K)	43
Fig. 4.2 – Variação do $k_{\text{eff}}$ inicial com o percentual físsil para os combustíveis reprocessados	43
Fig. 4.3 – Evolução do $k_{\text{eff}}$ durante a queima	44
Fig. 4.4 - Variação do $k_{\text{eff}}$ inicial com a temperatura do combustível	45
Fig. 4.5 - Variação do $k_{\text{eff}}$ inicial com a temperatura do moderador	46
Fig. 4.6 – Variação do $k_{\text{eff}}$ inicial com a fração físsil dos combustíveis TRUs	49
Fig. 4.7 Evolução do $k_{\text{eff}}$ durante a queima à potência de 33,3 MW <sub>th</sub> /tMP	51
Fig. 4.8 Evolução do $k_{\text{eff}}$ durante a queima a 100 MW <sub>th</sub> /tMP.	53
Fig. 4.9 Evolução do $k_{\text{eff}}$ durante a queima com de 200 MW <sub>th</sub> /tMP	53
Fig. 4.10 Variação da massa dos isótopos durante a queima (33,3 MW/tMP)	55
Fig. 4.11 Comparação do $k_{\text{eff}}$ ao longo da queima para variações na temperatura do combustível (33,3 MW/tMP)	63
Fig. 4.12 Coeficiente de temperatura do combustível em T=1130K (33,3 MW/tMP)	63
Fig. 4.13 - Comparação do $k_{\text{eff}}$ ao longo da queima para variações na temperatura do combustível (100 MW/tMP)	64

Fig. 4.14 - Coeficiente de temperatura do combustível em T=1030K (100MW/tMP)	64
Fig. 4.15 - Fig. 4.15 Variação da razão $\phi_R / \phi_T$ durante a queima (Th)	65
Fig. 4.16 - Fig. 4.16 Variação da razão $\phi_R / \phi_T$ durante a queima (U)	66
Fig. 4.17 - Evolução da radiotoxicidade dos produtos de fissão após a queima	69
Fig. 4.18 Evolução da radiotoxicidade dos actínídeos após a queima de combustíveis diluídos com Th	70
Fig. 4.19 Evolução da radiotoxicidade dos actínídeos após a queima de combustíveis diluídos com U empobrecido	71
Fig. 4.20 Detalhe da inversão na dependência da radiotoxicidade com o <i>bump</i>	72
Fig. 4.21 Comparação da radiotoxicidade dos actínídeos de combustíveis diluídos com Th ou U empobrecido	73
Fig. 4.22 Evolução das radiotoxicidades individuais dos principais actínídeos. (Th33% - 33,3 MW/tMP)	75
Fig. 4.23 Evolução das radiotoxicidades individuais dos principais actínídeos. (U46,1% - 200 MW/tMP)	75
Fig. 4.24 Evolução das radiotoxicidades individuais dos principais actínídeos. (Th42,1% - 100 MW/tMP)	76

## LISTA DE ABREVIACOES, SIGLAS E SMBOLOS

ADS - *Accelerator Driven System*

AFCI – *Advanced Fuel Cycle Initiative*

AM – Actindeo Menor

ANL – *Argonne National Laboratory*

CONFU - *Combined Non-Fertile and UO<sub>2</sub>*

CTC – Coeficiente de Temperatura do Combustvel

CTM – Coeficiente de Temperatura do Moderador

DB-MHR – *Deep Burn Modular Helium Reactor*

DEN-UFMG – Departamento de Engenharia Nuclear da Universidade Federal de Minas Gerais

DF – *Driver Fuel*

ENDF – *Evaluated Nuclear Data File*

EPE – Empresa de Pesquisa Energtica

FP – *Fission Product*

FPEX – Fission Product EXtration

FR – Fast Reactor

GA – General Atomic

GFR – Gas-cooled Fast Reactor

GIF – *Generation IV International Forum*

GT-MHR – *Gas Turbine Modular Helium Reactor*

MP – Metal Pesado

HTGR – *High Temperature Gas-cooled Reactor*

HTTR – *High Temperature Engineering Test Reactor*

IEA - *International Energy Agency*

IAEA – *International Atomic Energy Agency*

IPCC - *Intergovernmental Panel on Climate Change*

JAERI - Japan Atomic Energy Research Institute

JEF – *Joint Evaluated Fission library* LA – Los Alamos Scientific Laboratory

LFR - *Lead-cooled Fast Reactor*

LOMBT - *Level Of Mine Balancing Time*

LWR – *Ligth Water Reactor*

MCNP – *Monte Carlo N-Particle transport*

MCNPX – *Monte Carlo N-Particle transport eXtend*  
MOX – *Mixed Oxide*  
MSR – *Molten Salt Reactor*  
NEA – Nuclear Energy Agency  
NJOY – *Nuclear Data Processing System*  
NNL – Nuclear National Laboratory  
NPEX – *Neptunium/Plutonium EXtration*  
OECD - Organisation for Economic Co-operation and Development  
ORIGEN – *Oak Ridge Isotope GENERation*  
ORNL - Oak Ridge National Laboratory  
PBR – *Pebble Bed Reactor*  
PCTN – Programa de pós-graduação em Ciências e Técnicas Nucleares  
PF - Produtos de Fissão  
PUREX – *Plutonium Uranium EXtration*  
PWR – *Pressurized Water Reactor*  
SCALE – *Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation code system*  
SCWR – *SuperCritical Water-cooled Reactor*  
SFR - Sodium-cooled Fast Reactor  
TALSPEAK – *Trivalent Actinide/Lanthanide Separation by Phosphorus-reagent Extraction by Aqueous Komplexes*  
TBP – *Tri-n-Butyl Phosphate*  
tep – tonelada equivalente de petróleo  
TF – *Transmutation Fuel*  
tMP – tonelada de Metal Pesado  
TRISO – *TRistructural-ISOtropic*  
TRU – TRansUrânicos  
TRUEX – *TRansUranium EXtration*  
UFMG – Universidade Federal de Minas Gerais  
UREX – *Uranium EXtration*  
US DOE – United States Department Of Energy  
VHTR – *Very High Temperature gas-cooled Reactor*  
WEC – World Energy Council  
WIMS – *Winfrit Improved Multigroup Scheme*

$k_{\text{eff}}$  – Fator de Multiplicação Efetivo

$\alpha$  - Razão captura/fissão

$\phi_R / \phi_T$  – Razão fluxo rápido/fluxo total

$\sigma_c$  – Seção de choque microscópica de captura

$\sigma_f$  – Seção de choque microscópica de fissão

$\sigma_t$  - Seção de choque microscópica total

# 1 - INTRODUÇÃO

Um problema crucial do atual estágio da civilização é a utilização dos recursos materiais e energéticos pela sociedade humana e seu impacto sobre o meio ambiente.

O nível de bem estar atingido nos países industrializados é decorrente de uma exploração intensiva de recursos naturais não renováveis. O problema do uso desses recursos naturais para manutenção do sistema e sua extensão aos países em desenvolvimento, que aspiram atingir os níveis de consumo do primeiro mundo, tem sido objeto de estudos e discussões com os mais diversos enfoques dos pontos de vista social, político, econômico e técnico. Em todos, fica evidente o papel central representado pelo reconhecimento da finitude dos estoques de recursos energéticos e de matérias primas e das implicações de sua utilização em termos de degradação do ambiente.

A descoberta de grandes reservas de petróleo, no início do século XX, juntamente com a expansão no uso da eletricidade, tem sido identificada como a grande responsável pelo alto nível de produção material atingido pela sociedade contemporânea [Hémery,1993]. Esta fonte primária, de alto conteúdo energético específico e facilidade de manipulação e transporte, possibilitou o desenvolvimento de tecnologias intensivas no uso de energia, amplificando a capacidade do sistema produtivo, e representa, hoje, o principal recurso de que se serve o sistema energético. O petróleo respondeu por 31,5% da oferta mundial de energia em 2011. Em seguida vem o carvão mineral com 28,8% e o gás natural com 21,3%, perfazendo um total de 81,6% de combustíveis fósseis na matriz energética mundial [IEA 2013].

No entanto, os riscos ambientais associados ao uso dos combustíveis fósseis são consideráveis, pois são emissores de  $\text{NO}_x$ ,  $\text{CO}$  e  $\text{CO}_2$ , os mais importantes gases causadores do efeito estufa. Particularmente, o carvão mineral é um importante emissor de  $\text{SO}_x$ , ligado à formação da chuva ácida.

Ao lado da estabilização populacional, a redução no uso de combustíveis fósseis (especialmente carvão mineral) é vista como uma condição necessária à preservação do ambiente, minimizando o perigo do aquecimento global pelo efeito estufa [IPCC 2007]. Medidas atenuadoras do impacto da substituição desses combustíveis devem ser estudadas a tempo e se constituem essencialmente no desenvolvimento de outras fontes primárias de energia e de providências para otimização da conversão e do uso da energia.

Grande atenção tem sido dedicada à identificação e definição das fontes energéticas que irão gradativamente substituir os combustíveis fósseis e várias candidatas têm sido apontadas. As alternativas incluem o uso da energia solar direta (fotovoltaica e termosolar) ou indireta (hídrica, eólica e biomassa vegetal) e a energia nuclear. Pode-se prever que a mudança na base energética poderá implicar em grandes mudanças nos perfis de consumo e não há consenso sobre qual das alternativas, ou conjunto delas, é a mais adequada. Naturalmente, tais definições dependerão de fatores políticos, sociais e econômicos, mas o ponto de vista técnico é um fator muito importante para a subsidiar as discussões e decisões sobre as alternativas a serem adotadas.

As projeções da demanda mundial por energia primária preveem que em 2050, o consumo deverá situar-se em 2 a 3 vezes acima do nível de 2000 [WEC 2007; IEA 2006] sendo que a maior pressão virá dos países em desenvolvimento. Para o Brasil, a Empresa de Pesquisa Energética prevê que a oferta interna de energia primária passaria dos 218,7 milhões de tep em 2005, para 555 milhões de tep em 2030, significando um aumento de 2,5 vezes em 25 anos [EPE 2007].

Em nível mundial, a geração de energia elétrica repousa majoritariamente na queima de carvão mineral. A preocupação com as questões ambientais tem levado a um aumento da participação do gás natural nesta geração por sua característica de queima mais limpa do que a do carvão, o que, no entanto, não elimina totalmente os efeitos nocivos dos gases sobre a biosfera.

Após os desastres de *Three Mile Island* em 1979 e Chernobyl em 1986, a energia nuclear passou a sofrer forte rejeição da opinião pública pelo temor de



novos acidentes e também pela questão dos rejeitos gerados pela indústria nuclear, o que levou a uma paralisação no seu desenvolvimento a partir da década de 1990. O recente acidente de Fukushima no Japão, em março de 2011, reavivou estes temores o que levou alguns países desenvolvidos a rever suas projeções de emprego da energia nuclear.

No entanto, a preocupação com a preservação ambiental contribui para manter o interesse pela opção nuclear na geração de energia elétrica em grande número de países, principalmente aqueles emergentes cujas economias experimentam forte grau de crescimento. Entre as fontes livres de emissão de gases de efeito estufa, a energia nuclear pode ter um papel importante nas próximas décadas, não só na geração de eletricidade, mas também em processos como a dessalinização de água e a produção de hidrogênio para substituição do petróleo no setor de transporte [IAEA 2001<sup>a</sup>].

Toda tecnologia que pode trazer benefícios também traz problemas associados a ela. No caso da energia nuclear, as principais preocupações dizem respeito aos rejeitos radioativos de longa vida, resistência à proliferação de armas nucleares e à segurança quanto a acidentes. Para que a energia nuclear possa ter um emprego significativo, deve ser demonstrado que estas questões estão equacionadas de forma satisfatória. Outra questão que se coloca é a da utilização eficiente dos recursos naturais de forma a não comprometer a satisfação das necessidades das futuras gerações.

Desde o nascimento da indústria de geração nuclear, na década de 1950, foi cogitado o uso do mineral tório, inicialmente como forma de estender a base de recursos naturais além das reservas de urânio. O grande desenvolvimento de tecnologias de produção de plutônio para emprego bélico e da tecnologia de reatores PWR (*Pressurized Water Reactor*) para propulsão de submarinos ao lado do baixo preço do minério de urânio, resultaram em políticas de investimentos preferenciais em tecnologias baseadas em combustíveis de urânio. Como consequência, a atual hegemonia mundial dos reatores térmicos a água leve para produção de energia elétrica. Deste modo, estudos da utilização do tório ficaram em segundo plano. No entanto, os novos desafios colocados para a tecnologia nuclear têm possibilitado o ressurgimento do

interesse pelo ciclo do tório, guiado pela possibilidade de redução da produção de transurânicos nos rejeitos nucleares, além de possibilitar maior aproveitamento da base de recursos naturais [IAEA 2005; NNL 2012].

Há uma plethora de concepções de reatores nucleares, cada uma delas apresentando respostas diferentes no que tange aos aspectos analisados quando da decisão pela adoção de uma tecnologia, quais sejam, viabilidade técnica, segurança e economia. A pesquisa e desenvolvimento em tecnologias nucleares caracterizam-se pela exigência de elevados investimentos, o que levou à criação, em 2001, do GIF- *Generation IV International Forum* -, um fórum internacional para o estabelecimento de pesquisas cooperativas visando o futuro desenvolvimento da tecnologia nuclear dentro de parâmetros que satisfaçam os critérios de sustentabilidade ambiental e de não proliferação [US DOE 2002, NEA 2014]. Este fórum selecionou seis concepções de reatores avançados que seriam desenvolvidas para aplicação comercial a partir de 2030: MSR (*Molten Salt Reactor*), VHTR (*Very High Temperature Gas-cooled Reactor*), GFR (*Gas-cooled Fast Reactor*), SCWR (*Super Critical Water-cooled Reactor*), SFR (*Sodium-cooled Fast Reactor*) e LFR (*Lead-cooled Fast Reactor*)).

O rejeito gerado nos reatores nucleares é altamente radioativo exigindo cuidados especiais na sua disposição. A radioatividade permanece em níveis considerados perigosos por longo prazo e a solução final considerada melhor para o gerenciamento dos rejeitos é seu isolamento da biosfera. Os rejeitos de combustíveis a urânio contêm os produtos de fissão e isótopos de plutônio e outros actínídeos como netúnio, amerício e cúrio. Os actínídeos são os responsáveis pela radiotoxicidade de longo prazo dos rejeitos gerados pelos atuais reatores a água leve [IAEA 2009<sup>a</sup>].

No atendimento aos critérios do GIF, os reatores de quarta geração devem ser vistos de forma integrada com o ciclo do combustível, o que inevitavelmente inclui os atuais reatores térmicos que ainda estarão presentes no sistema por algumas décadas após o início da introdução dos reatores de Geração IV. Um novo conceito que possa trabalhar simbioticamente com os reatores atuais de forma a reduzir os rejeitos do ciclo é altamente desejável.

Neste trabalho foi feito um estudo da queima de transurânicos em um dos conceitos selecionados pelo GIF: o reator de alta temperatura refrigerado a gás, HTGR. Este reator reúne aspectos interessantes do ponto de vista de economia de recursos naturais, devido à possibilidade de alta queima do combustível (*burnup*) e alta eficiência térmica, utilização de diversas composições do combustível, podendo trabalhar tanto no ciclo U-Pu quanto no ciclo do  $^{232}\text{Th}$ - $^{233}\text{U}$  e possuindo boas características de resistência à proliferação.

Já foi demonstrada a viabilidade de o HTGR operar com o plutônio produzido em reatores a água leve diluído com urânio. Neste caso, novos núcleos de actínídeos transurânicos são produzidos a partir do urânio. Neste trabalho procurou-se investigar a utilização de combustíveis compostos pelos transurânicos provenientes de reatores a água leve em mistura com urânio empobrecido ou com tório. Devido ao seu menor número atômico do tório, menos actínídeos menores serão formados a partir dele que do U.

O reator escolhido para a simulação foi o HTTR (*High Temperature Engineering Test Reactor*) construído pelo governo japonês [IAEA 2001<sup>b</sup>], utilizado em pesquisas no desenvolvimento de reatores de alta temperatura refrigerados a gás, que foi simulado com o código SCALE 6.0.

São avaliados aspectos da evolução do combustível, queima de transurânicos e produção de rejeitos neste conceito.

Foram consideradas diversas composições iniciais do combustível para estudo da resposta dos parâmetros neutrônicos do reator e da sua composição isotópica ao longo e ao final da queima, bem como da radiotoxicidade final dos rejeitos.

## 2 - RESÍDUOS RADIOATIVOS DA GERAÇÃO DE ENERGIA EM REATORES NUCLEARES

### 2.1 Geração de Resíduos Radioativos nos Reactores Nucleares

O urânio é o elemento natural de maior número atômico ( $Z = 92$ ) encontrado na Terra. Elementos com números atômicos superiores, denominados transurânicos (TRU), são radioativos e podem ser produzidos artificialmente através de reações nucleares. O núcleo de um reator a fissão é um ambiente altamente propício à criação destes elementos em reações de absorção de nêutrons por núcleos pesados. Além destes, as reações de fissão dão origem a isótopos radioativos de número atômico intermediário, ditos produtos de fissão (PF). Estes dois grupos são responsáveis pela radioatividade dos rejeitos resultantes da produção de energia em reatores nucleares. O tratamento e gerência destes rejeitos, de alta radiotoxicidade, são o “calcanhar de Aquiles” da indústria nuclear.

Os reatores nucleares comerciais em funcionamento utilizam urânio natural ou enriquecido como combustível. A composição do combustível usado retirado destes reatores depende do enriquecimento inicial do combustível, da distribuição de energia dos nêutrons e da extensão da queima sofrida pelo combustível (*burnup*). Tipicamente, estes combustíveis usados possuem 93,4% de U ( $\sim 0,8\%$   $^{235}\text{U}$ ), 1,2% de Pu, 0,2% de actínídeos menores (Am, Np, e Cm) e 5,2% de produtos de fissão (Feiveson 2011).

Apesar da pequena proporção dos transurânicos na mistura, estes elementos são os principais responsáveis pela radiotoxicidade de longo prazo do rejeito como pode ser observado na Fig 2.1.

A maioria dos produtos de fissão tem meia vida curta e sua influência na radiotoxicidade dos rejeitos cessa rapidamente. Nos primeiros 100 anos após a retirada do combustível, a radiotoxicidade é dominada pelos produtos de fissão. No período entre 100 a 1.000 anos pelo  $^{241}\text{Am}$ , de 1.000 a 10.000 anos pelo  $^{240}\text{Pu}$ , depois até 100.000 anos pelo  $^{239}\text{Pu}$  e após 100.000 anos pelos descendentes do  $^{241}\text{Am}$  (Salvatores 2011).

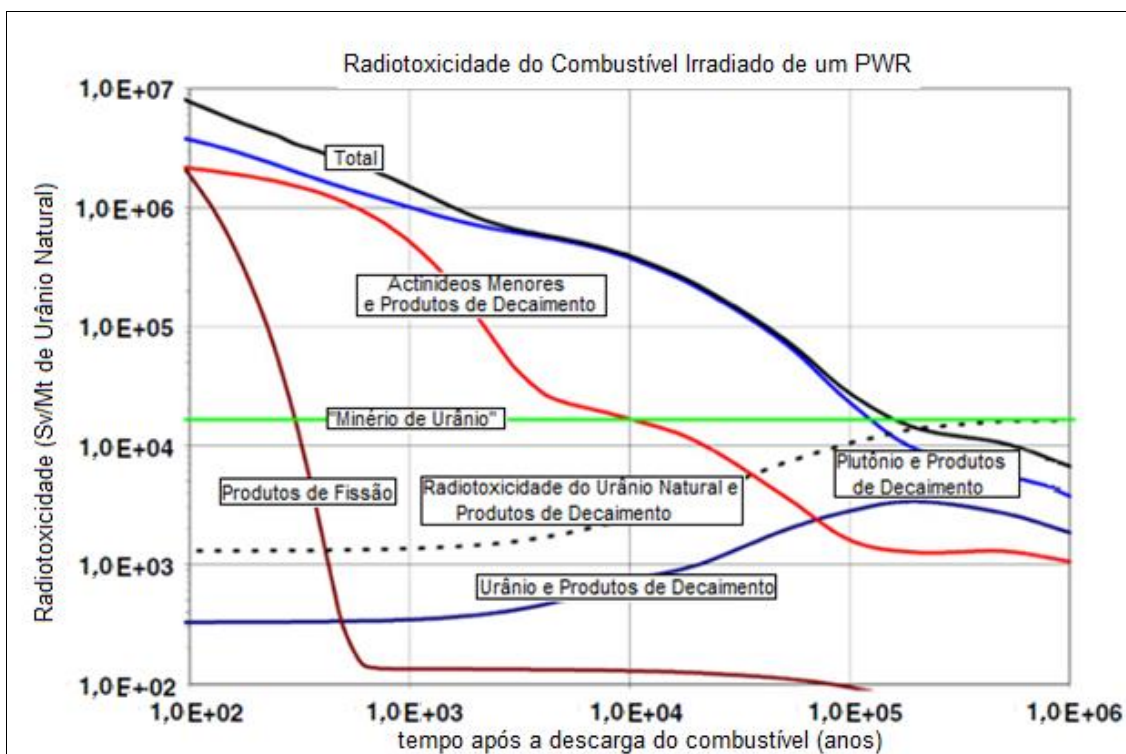


Fig. 2.1 - Radiotoxicidade do combustível descarregado de um reator PWR- Adaptado de [Salvatores 2011]

A fração significativa de isótopos físseis no combustível irradiado representa oportunidade de economia de recursos naturais se reutilizada como combustível em reatores. Os isótopos físseis do plutônio presentes nos rejeitos acrescentam preocupações com o risco de proliferação aos possíveis efeitos biológicos. A destinação deste material é uma preocupação de governos e da opinião pública devido ao temor de acidentes ou desvios. É evidente a necessidade de estabelecimento de estratégias para diminuição da quantidade dos rejeitos e para o manejo do combustível irradiado de forma a equacionar os diversos aspectos do "back-end" do ciclo do combustível nuclear [NEA 2011].

### 2.1.1 Utilização do tório

A utilização de ciclos de combustível baseados no tório, ao lado da melhoria na utilização dos recursos naturais substituindo o  $^{235}\text{U}$  pelo  $^{233}\text{U}$  como isótopo físsil, apresenta outras características que podem impactar positivamente o "back-end" do ciclo [IAEA 2005,>NNL 2012]:

- menor potencial para a produção de Pu e actínídeos menores podendo apresentar menor radiotoxicidade no longo prazo do que o ciclo U-Pu;
- possibilidade de realizar a regeneração no espectro térmico, por exemplo, em reatores a sais fundidos, MSR;
- possibilidade de redução dos estoques de plutônio civis e militares utilizando um ciclo Pu-Th em reatores térmicos ;
- maior resistência à proliferação devido à contaminação do rejeito pelo U-232 em cuja cadeia de decaimento há elementos altamente radioativos o que propicia a facilidade de detecção e torna difíceis a manipulação e o desvio.

## 2.2 Estratégias para o “*back-end*” do Ciclo do Combustível

As opções divisadas para o gerenciamento dos rejeitos do ciclo do combustível são:

- A disposição direta em repositório final após um período de resfriamento. Esta é a solução escolhida pela maioria dos países que, no entanto mantêm o rejeito produzido em depósitos intermediários, não sendo descartada a hipótese de futura mudança de opção. Apenas dois países, Suécia e Finlândia, já utilizam repositórios finais;

- A reciclagem do combustível para reaproveitamento dos produtos úteis (U, Pu), separando-os dos actínídeos menores e produtos de fissão. A reutilização do U e Pu reprocessados já é praticada em vários países com a utilização do combustível de óxidos mistos (MOX) em reatores térmicos (França, Japão, Rússia, Índia e Inglaterra). Esta solução possibilita a melhor utilização do recurso natural e diminui significativamente o volume dos rejeitos com efeito positivo sobre as condições do repositório. No entanto, quando utilizado nos atuais reatores térmicos, uma segunda geração de plutônio é produzida com maior proporção de actínídeos menores devido à maior exposição ao fluxo de nêutrons. Além disto, em alguns sistemas, aumenta os riscos de proliferação devido à separação do plutônio.

- A utilização de sistemas para a separação e transmutação do plutônio e dos actínídeos menores em reações de fissão transformando-os em isótopos de meia vida mais curta de forma a diminuir a radiotoxicidade de longo prazo dos rejeitos finais. Esta opção tem recebido grande atenção, mas as diversas soluções propostas encontram-se ainda em fase de pesquisa. As investigações incluem conceitos avançados de reatores para futuras aplicações nucleares tais como: reatores rápidos (FR), reatores a sais fundidos (MSR), reatores a gás de alta temperatura (HTGR), sistemas subcríticos com aceleradores de partículas (ADS) e utilização de cobertores para a transmutação no fluxo de nêutrons de reatores a fusão.

### **2.3 Reprocessamento do Combustível**

A finalidade do reprocessamento do combustível é o reaproveitamento dos produtos úteis (U e Pu), diminuindo a quantidade de recurso natural necessária para manter a produção de energia, e a diminuição do volume dos rejeitos com reflexo no tamanho dos repositórios.

O risco associado à disposição definitiva ou temporária de rejeitos de alta atividade pode ser reduzido por meio de técnicas conhecidas como partição (separação de produtos químicos) e transmutação (conversão de radionuclídeos).

Um ciclo alternativo de combustível é um ciclo fechado que busca a solução dos problemas de proliferação e a redução dos impactos ambientais através de métodos de reprocessamento com baixo nível de descontaminação ou que não efetuem a separação dos óxidos de urânio e de plutônio.

Dois tipos de processos podem ser utilizados para a separação dos radionuclídeos: processos hidroquímicos (úmidos) e piroquímicos (secos). Nos processos hidroquímicos os radionuclídeos são separados por reações químicas em meio aquoso. Nos processos piroquímicos o refino é realizado em sais fundidos por eletrorefino ou por passagem do radionuclídeo do sal fundido para uma fase de metal líquido [Benedict 1981]. Os métodos de

reprocessamento hidroquímico são os mais desenvolvidos até o momento, mas há grande investimento em desenvolvimento dos processos pirotécnicos.

A seguir dois métodos hidroquímicos serão descritos brevemente: o processo PUREX e o processo UREX+.

### 2.3.1 O processo PUREX

Apesar de não ser classificado como alternativo devido a sua forte característica proliferante, o método de reprocessamento PUREX (*Plutonium-Uranium Refining EXtraction*) é o único implantado em escala comercial [Simpson 2010]. Nele a extração e purificação dos óxidos de urânio e plutônio é realizada em três etapas através da técnica de extração por solvente conforme mostrado na Fig 2.2.

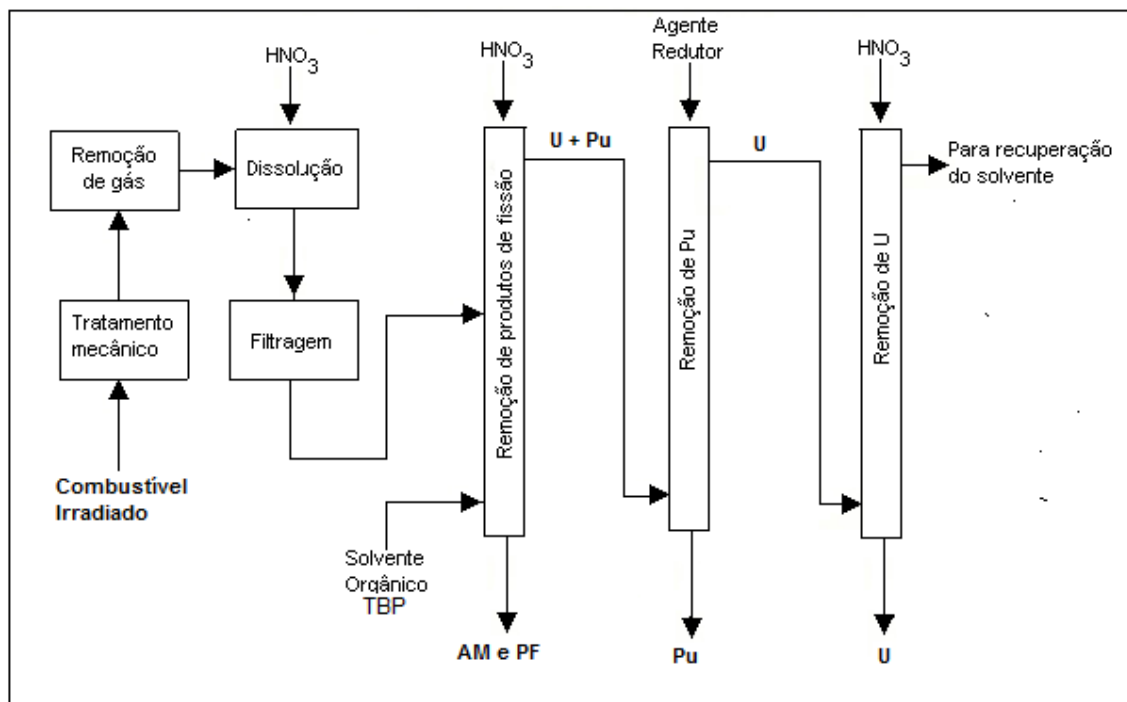


Fig 2.2 - Diagrama simplificado de uma planta de processamento PUREX



Numa etapa inicial, há a separação das partes metálicas e dos produtos de fissão voláteis. O combustível, diluído em ácido nítrico, passa pela primeira coluna de extração em contracorrente com uma solução de tri-n-butil fosfato (TBP) diluído em um composto orgânico (querosene). O urânio (6+) e plutônio (4+) são extraídos para a fase orgânica e a fase aquosa restante contém os actinídeos menores e 99,9% dos produtos de fissão.

Na segunda coluna de extração, a solução contendo U e Pu passa em contracorrente com uma solução de agente redutor que reduz o Pu para o estado (3+) deixando o urânio no estado (6+). O plutônio, não mais sendo solúvel em TBP, passa para a solução aquosa, sendo separado do urânio.

Na terceira coluna, o urânio é extraído do solvente orgânico que passa em contracorrente com solução de ácido nítrico.

O rejeito líquido do processo contém os actinídeos menores (Am, Cm e Np) e produtos de fissão, constituindo o rejeito de alta atividade a ser depositado.

O fator de recuperação do urânio e do plutônio pelo método PUREX é maior que 98,5% [Benedict, 1981].

### **2.3.2 O processo UREX+**

O processo de reprocessamento UREX (*URanium EXtraction*) foi desenvolvido pelo *Argonne National Laboratory* (ANL) dos EUA com vistas ao estabelecimento de tecnologias não proliferantes que visam reduzir o volume e o calor de decaimento do material irradiado para diminuir a carga dos repositórios geológicos. Há diversas variantes do método UREX. O processo UREX+ cujo diagrama simplificado é mostrado na Fig. 2.3.

O processo UREX+ envolve cinco etapas de extração por solventes, a saber:

1 - UREX- (*URanium EXtraction*): Tc e U do combustível queimado são recuperados juntos. Em um passo subsequente, estes isótopos são separados. O urânio é reciclado em novo combustível e o tecnécio recuperado é misturado ao Zircaloy do material de revestimento e depositado como rejeito.

2 - FPEX – (*Fission Product EXtraction*): Cs e Sr são removidos do fluxo aquoso do processo anterior.

3 - NPEX – (*Neptunium/Plutonium EXtracion*): Pu e Np são recuperados do rejeito da fase antecedente e reciclados para um novo combustível.

4 – TRUE (*TRansUranium EXtracion*): os produtos de fissão são removidos e separados do fluxo aquoso do rejeito NPEX e enviados para deposição geológica.

5 - TALSPEAK (*Trivalent Actinide/Lanthanide Separation by Phosphorus-reagent Extraction by Aqueous Komplexes*): na última etapa, Am e Cm são separados de terras raras.

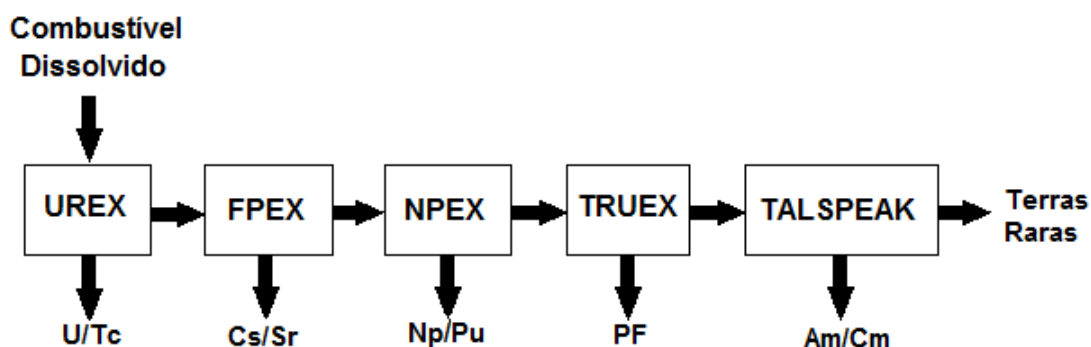


Fig. 2.3 - Etapas de separação UREX+.

Em estudo do ANL – *Argonne National Laboratory* [Pereira 2005], a fração de U recuperado foi maior do que 99,95 % e de Tc foi de 95 %. O produto Cs/Sr apresentou uma taxa de recuperação de 96 % do Cs e 99 % do Sr. O produto Pu/Np contém 99,5 % do Pu e 71 % do Np. Entretanto, a maior parte do Np não extraído na etapa NPEX foi recuperada na última etapa TALSPEAK atingindo 98 % de recuperação total de Np. Para os isótopos Am e Cm foram obtidos percentuais de 98 % e de 79 % respectivamente. Apesar de alguns dos percentuais separativos apresentarem baixos valores em comparação com outros métodos de reprocessamento, o UREX+ apresenta a possibilidade de

extração seletiva de alguns nuclídeos que, em outras técnicas, não seria possível.

## 2.4 Transmutação

O termo “transmutação” refere-se a qualquer processo nuclear onde há transformação de um isótopo em outro, modificando sua estrutura nuclear. No contexto do ciclo do combustível nuclear vem sendo utilizado para referir-se aos processos que utilizam reações com nêutrons para transformar os rejeitos de longa vida do combustível nuclear queimado em núcleos de meia vida mais curta [IAEA 2009<sup>a</sup>].

As densidades isotópicas dos nuclídeos durante a queima do combustível no reator são governadas pelo conjunto das equações de Bateman que descrevem a taxa de variação da concentração dos nuclídeos no meio:

$$\frac{dn_i}{dt} = \sum_{j=1}^N \ell_{ij} \lambda_j n_j + \bar{\phi} \sum_{k=1}^N f_{ij} \sigma_k n_k - (\lambda_i + \bar{\phi} \sigma_i) n_i \quad (i = 1, \dots, N)$$

onde  $n_i$  é a concentração atômica do nuclídeo  $i$ ,  $\sigma_i$  é seção de choque de absorção neutrônica dos nuclídeos ponderada no espectro,  $\ell_{ij}$  e  $f_{ij}$  são as frações de formação do nuclídeo  $i$  a partir do decaimento e da absorção neutrônica pelo nuclídeo  $j$ , respectivamente,  $\lambda_i$  é a constante de decaimento radioativo e  $\bar{\phi}$  representa o fluxo neutrônico médio.

A seqüência de interações dos elementos transurânicos num fluxo de nêutrons é mostrada na Fig. 2.4 para o ciclo U-Pu. Neste sistema, a transmutação dos transurânicos pode dar-se pela fissão, ou pela captura de nêutrons. Na captura há a criação de outro transurânico com maior número de massa e também radioativo, não contribuindo para a diminuição da massa de transurânicos e nem da radiotoxicidade longo prazo do rejeito. Na reação de fissão são formados dois núcleos, em geral, de meia vida muito mais curta tendendo a diminuir a radiotoxicidade no longo prazo

Do ponto de vista da incineração dos actínídeos para diminuição da radiotoxicidade de longo prazo, interessa a reação de fissão.

A Fig. 2.5 apresenta as transformações dos actínídeos para o ciclo U-Th.

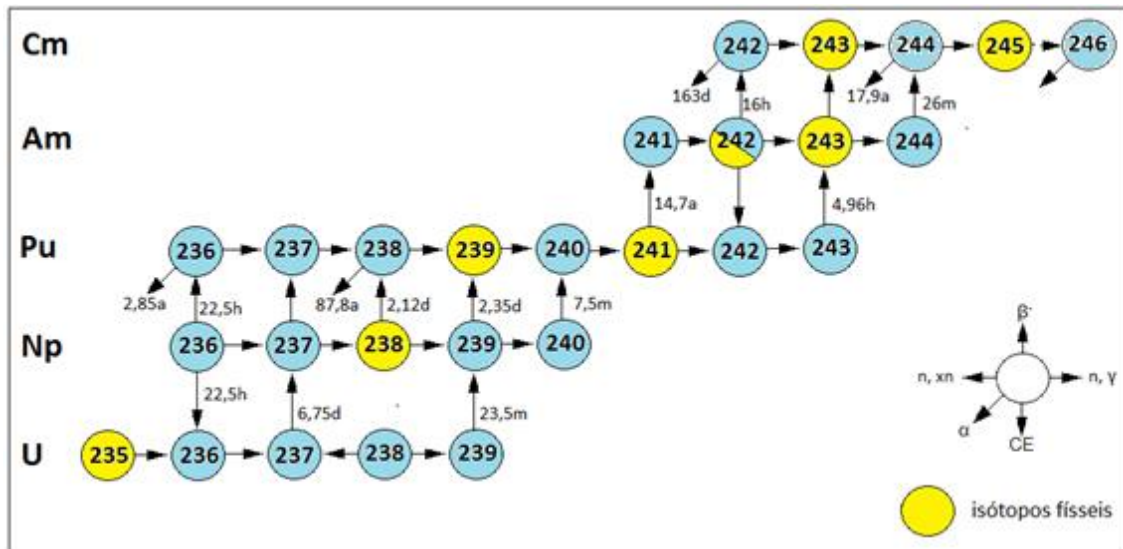


Fig 2.4 - Cadeia de transformação de actínídeos no ciclo U-Pu.

[adaptada de Salvatores 2011]

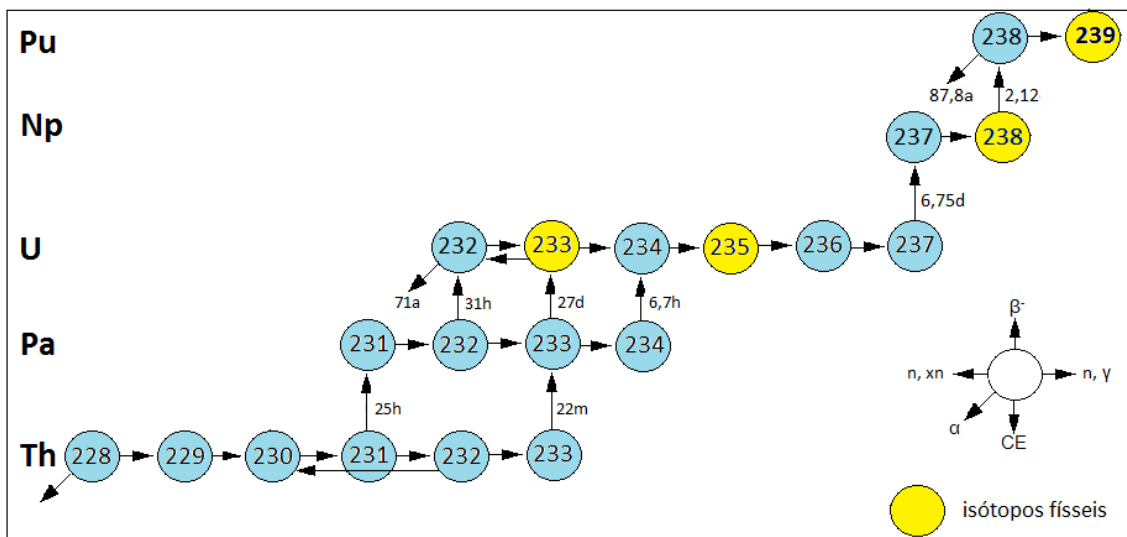


Fig 2.5 - Cadeia de transformação de actínídeos no ciclo U-Th.

A competição entre captura e fissão é extremamente importante na determinação da taxa de destruição dos actínídeos. A razão captura/fissão,  $\alpha = \sigma_c / \sigma_f$ , varia com a energia do nêutron. A Tabela 2.1 fornece características médias dos principais nuclídeos transurânicos para os espectros característicos de reatores térmicos PWR e de reatores rápidos. Nota-se que, em um espectro rápido, a relação captura/fissão é menor do que 1 para a maioria dos transurânicos, significando que a fissão é o resultado mais provável da absorção de um nêutron. No espectro térmico, somente os isótopos  $^{238}\text{Np}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Cm}$  e  $^{245}\text{Cm}$  possuem  $\alpha$  menor do que 1. Para todos os outros a captura é a reação prevalente. Esta é a razão da preferência pelo espectro rápido na maioria dos projetos de transmutação de actínídeos menores dos rejeitos.

Tabela 2.1. - Seção de choque média de actínídeos (barn) [NEA 2006]

Isótopo	Espectro PWR			Espectro Rápido		
	$\sigma_f$	$\sigma_c$	$\alpha$	$\sigma_f$	$\sigma_c$	$\alpha$
$^{235}\text{U}$	38,8	8,7	0,22	1,98	0,57	0,29
$^{238}\text{U}$	0,103	0,86	8,3	0,04	0,30	7,5
$^{237}\text{Np}$	0,52	33	63	0,32	1,7	5,3
$^{238}\text{Np}$	134	13,6	0,1	3,6	0,2	0,05
$^{238}\text{Pu}$	2,4	27,7	12	1,1	0,58	0,53
$^{239}\text{Pu}$	102	58,7	0,58	1,86	0,56	0,3
$^{240}\text{Pu}$	0,53	210,2	396,6	0,36	0,57	1,6
$^{241}\text{Pu}$	102,2	40,9	0,40	2,49	0,47	0,19
$^{242}\text{Pu}$	0,44	28,8	65,5	0,24	0,44	1,8
$^{241}\text{Am}$	1,1	110	100	0,27	2,0	7,4
$^{242}\text{Am}$	159	301	1,9	3,2	0,6	0,19
$^{242\text{m}}\text{Am}$	595	137	0,23	3,3	0,6	0,18
$^{243}\text{Am}$	0,44	49	111	0,21	1,8	8,61,7
$^{242}\text{Cm}$	1,14	4,5	3,9	0,58	1,0	0,14
$^{243}\text{Cm}$	88	14	0,16	7,2	1,0	0,18
$^{244}\text{Cm}$	1,0	16	16	0,42	0,6	0,29
$^{245}\text{Cm}$	116	17	0,15	5,1	0,9	7,5

As seções de choque de captura e fissão diminuem muito com o aumento da energia do nêutron. A vantagem do reator rápido em termos da razão captura/

fissão tem como contrapartida a necessidade de maior massa imobilizada e maiores fluxos de nêutrons.

No espectro térmico, quando um actínídeo captura um nêutron é formado um outro actínídeo que, por sua vez, pode também sofrer decaimento radioativo, fissão ou captura. Se a reação de fissão prevalecer sobre a reação de captura e o decaimento radioativo, o resultado trabalhará no sentido da diminuição da quantidade de actínídeos.

No rejeito dos reatores LWR, após um período de resfriamento, os principais actínídeos menores presentes são os de maior meia vida:  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$  e  $^{244}\text{Cm}$ . A absorção de um nêutron por estes isótopos leva aos isótopos intermediários  $^{238}\text{Np}$ ,  $^{242}\text{Am}$ ,  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Cm}$  e  $^{245}\text{Cm}$ .

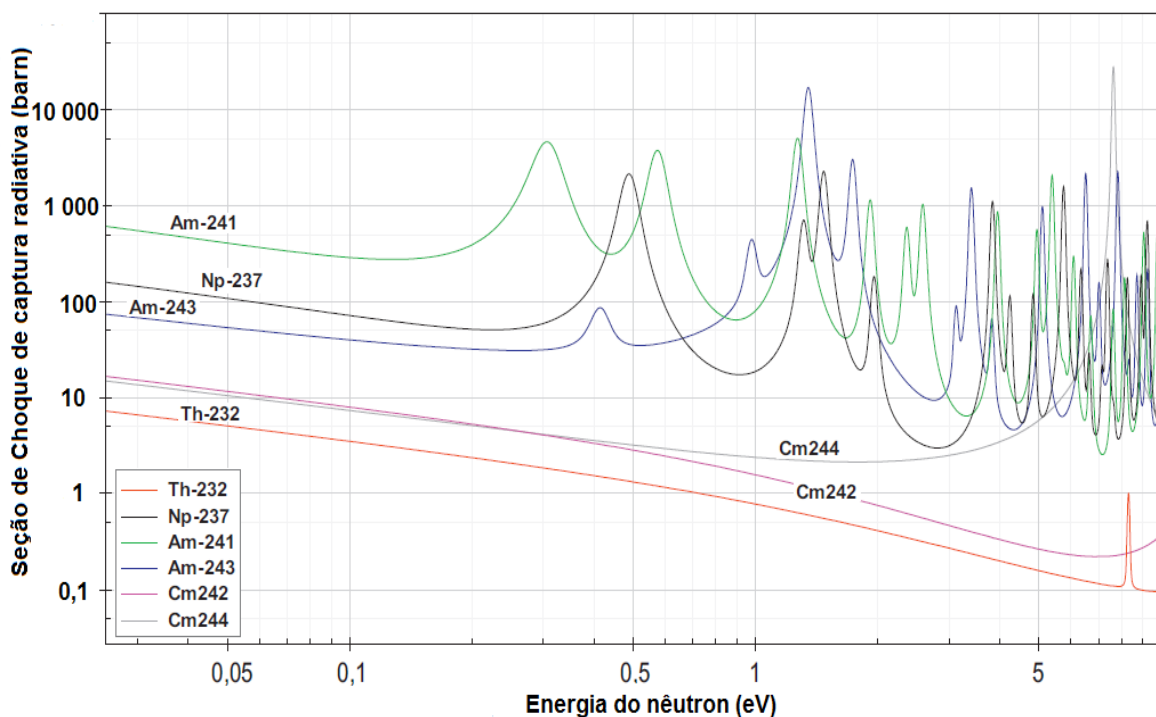


Fig. 2.6 – Seção de choque de captura radiativa na faixa de energias térmicas dos principais actínídeos menores do rejeito. [Adaptado de Pohl 2012]

A seção de choque de captura dos principais actínídeos menores do rejeito é mostrada na Fig 2.6 onde se nota que alguns exibem fortes ressonâncias na

faixa térmica superior. A Fig 2.7 exibe a fração de fissões,  $\sigma_f / \sigma_t$ , na absorção de nêutrons pelos isótopos intermediários. É notável que, na faixa de energias térmicas, a fissão é a forma privilegiada para todos eles com rendimento de 80% ou mais. O resultado líquido desta sequência é a fissão após a captura de dois nêutrons.

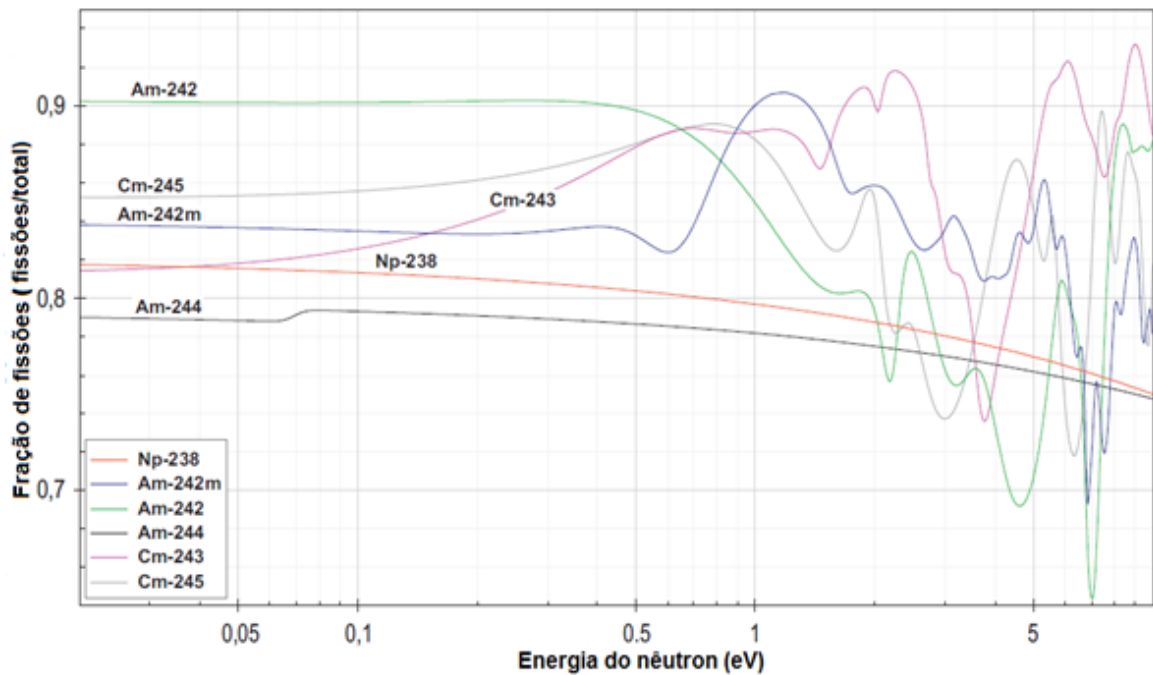


Fig. 2.7 – Fração de fissões na absorção por isótopos intermediários.

[Adaptado de Pohl 2012]

Conclui-se que, teoricamente, é possível promover a queima de actínídeos menores em um sistema térmico com fluxo de nêutrons apropriadamente ajustado.

## 2.5 Opções para a Queima de Transurânicos

Sistemas que utilizam reatores rápidos otimizados para a queima de transurânicos funcionando juntamente com reatores térmicos são os mais conceituados entre as soluções sob investigação [Salvatores 2011].

Reatores térmicos convencionais a água leve ou a água pesada podem ser usados para transmutação de uma fração do plutônio e actínídeos menores de combustíveis reprocessados [NEA 2013]. Uma vertente em desenvolvimento utiliza um combustível com matriz inerte (IMF) que consiste em uma matriz transparente a nêutrons onde são incorporados os transurânicos. A matriz substitui o U-238 do combustível convencional eliminando a formação de novos núcleos de plutônio. Este conceito pode ser utilizado nos reatores atuais para redução dos estoques de plutônio ou para a incineração apenas dos actínídeos menores [IAEA 2009]. Um exemplo é o conceito CONFU que utiliza dois tipos de elementos combustíveis de  $UO_2$  e de matriz inerte em reator PWR [Romano 2006, Visosky 2013].

Tem sido investigada a utilização de sistemas subcríticos acoplados a um acelerador de partículas (ADS) para a transmutação de rejeitos radioativos. No ADS, partículas carregadas aceleradas provocam reações produtoras de nêutrons em um alvo. Esses nêutrons completam as condições de criticalidade do reator. Os ADS podem ser projetados para trabalhar tanto no espectro térmico quanto no rápido [IAEA 2009<sup>b</sup>; Barros 2012<sup>a,b</sup>].

Outra opção investigada é a queima de plutônio e actínídeos menores em reatores a gás de alta temperatura (HTGR) da qual trataremos neste trabalho. Este conceito de transmutação baseia-se na característica do combustível utilizado que é altamente resistente à irradiação podendo suportar altos burnups e, conseqüentemente, alto consumo de transurânicos [IAEA 2001: IAEA 2009<sup>b</sup>].

## **2.6 Reatores a Gás de Alta Temperatura – HTGR**

Os reatores a gás de alta temperatura são moderados a grafita e refrigerados a hélio. Utilizam combustível na forma de pequenas partículas, denominadas TRISO (*Tristructural-isotropic*), nas quais o combustível propriamente dito, na forma de minúsculas esferas, é recoberto com camadas de carbono e cerâmica destinadas a servir de barreira aos produtos de fissão produzidos na irradiação, e conferir alta resistência ao conjunto (Fig. 2.8).



A região central da partícula TRISO, denominada “*kernel*”, consiste de combustível (óxido ou carbeto) que é revestido por quatro camadas de carbono cujas funções são:

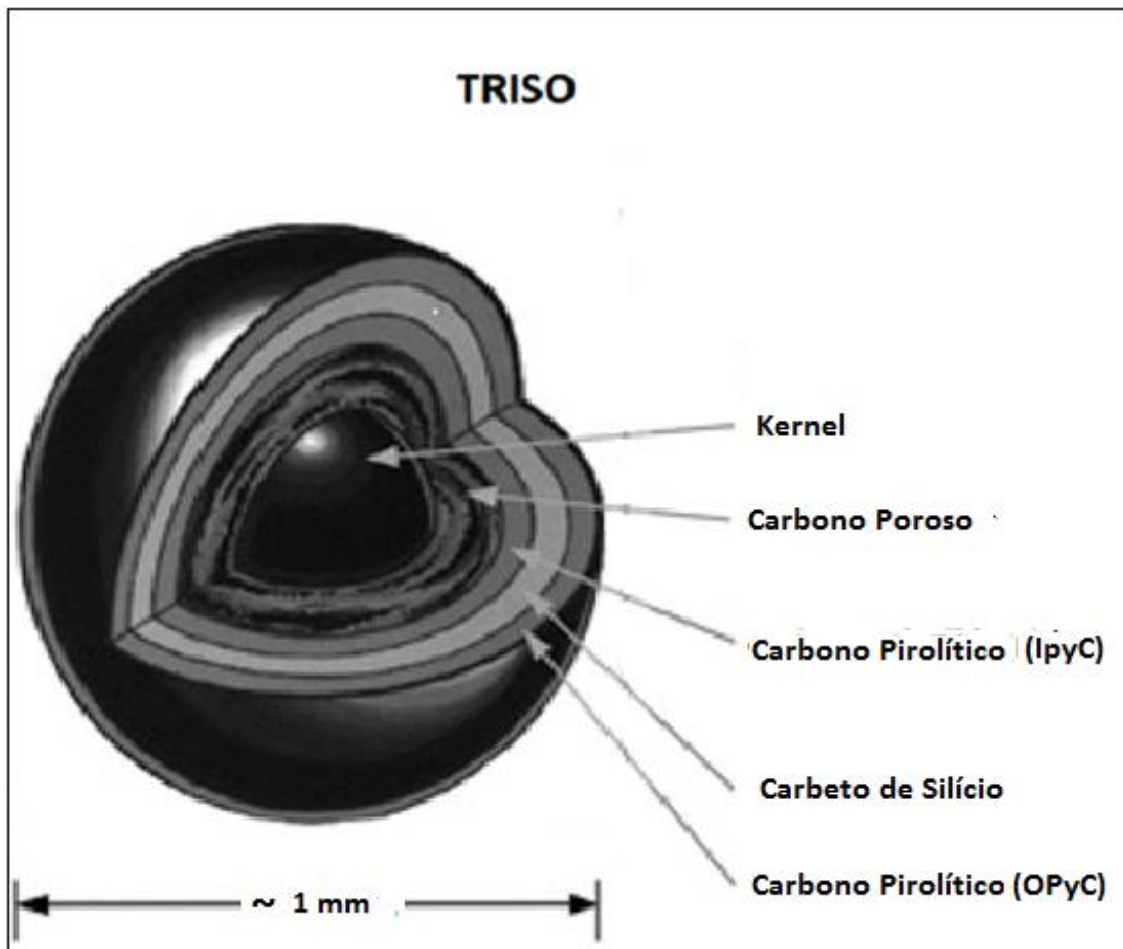


Fig. 2.8 - Combustível TRISO

- 1ª camada (carbono poroso): proporciona o volume para expansão dos gases liberados na fissão e variações no volume do “*kernel*” devidas à temperatura;
- 2ª camada (carbono pirolítico, PyC): serve de base para a deposição da terceira camada;
- 3ª camada (carbeto de silício, SiC): retém os produtos fissão (metais e gases) proporcionando resistência mecânica; e

- 4ª camada (carbono pirolítico, PyC): define uma superfície de ligação para compactação e atua também como barreira para os produtos de fissão.

Pode-se distinguir dois tipos básicos de reatores HTGR de acordo com a forma geométrica do meio de grafita em que as partículas de combustível estão dispersas: o de bloco prismático e o *pebble-bed*. No primeiro o combustível está na forma de barras de grafita que são montadas numa configuração fixa e no segundo em forma de esferas do tamanho aproximado de bolas de tênis que circulam lentamente através do núcleo de grafita permitindo o recarregamento contínuo do combustível e, conseqüentemente, menor massa imobilizada.

Nos reatores HTGR, o gás refrigerante pode atingir altas temperaturas (700 °C – 1000 °C) devido às características cerâmicas do combustível que suporta temperaturas da ordem de até 1600 °C. Valores mais altos de temperatura do refrigerante possibilitam maior eficiência na conversão para energia elétrica e também em alternativas de emprego em calor de processos industriais como produção de hidrogênio, dessalinização de água, refino de petróleo [IAEA 2001<sup>a</sup>].

O alto *burnup* é uma característica da concepção dos reatores HTGR contribuindo para o aumento da utilização do recurso natural e podendo resultar em menor quantidade de plutônio no rejeito devido ao maior tempo de exposição ao fluxo de nêutrons.

Os reatores HTGR exibem excelentes características de segurança como grande coeficiente de reatividade negativo, baixa densidade de potência, alta capacidade térmica da grafita para absorver calor em caso de aumento anormal de temperatura, além da capacidade de retenção dos produtos de fissão pelas partículas de combustível TRISO.

## **2.7 Queima de Transurânicos em Reatores HTGR**

A viabilidade da produção de energia em reatores HTGR utilizando combustíveis baseados em combustíveis de U e U-Th já foi demonstrada na

prática através de instalações experimentais e comerciais desde a década de 1950 [Nickel 2002].

Mais recentemente, houve um ressurgimento do interesse nos HTGR tendo eles sido incluídos entre as seis concepções de reatores da Geração-IV selecionadas pelo GIF [US DOE 2002; NEA 2014].

Grande parte dos trabalhos sobre os HTGR encontrados na literatura dedicam-se à verificação da adequabilidade dos códigos de cálculo de reatores e das bibliotecas de dados nucleares existentes para a simulação dos HTGR e à comparação de resultados obtidos com os vários códigos disponíveis [Lepannen 2006, Bomboni 2010; Silva 2012, Tanure 2014]. As simulações são utilizadas em problemas de *benchmark* [IAEA 2003; Kuijper 2006; Taiwo 2005; Bess 2009; Zhang 2009, Sousa 2013] e em estudos das características neutrônicas dos reatores. Naturalmente, a evolução da capacidade de processamento dos computadores atuais proporciona maior possibilidade de utilização dos códigos probabilísticos. Nota-se uma visível prevalência dos códigos baseados no método Monte Carlo que oferecem possibilidade de modelamento de geometrias mais complexas associados a códigos determinísticos para cálculo da queima.

Ao lado da utilização dos reatores HTGR para geração de energia elétrica e calor de processo com combustíveis baseados no consumo de urânio enriquecido com alto burnup [IAEA 2001<sup>a</sup>], um tema muito presente na literatura atual é o emprego de combustíveis mistos baseados na mistura U-Pu ou Pu-Th para aproveitamento energético do plutônio originado no reprocessamento pelo método PUREX dos combustíveis dos atuais reatores térmicos ou dos estoques militares, objetivando a destruição dos estoques acumulados anteriormente [Mulder 2008; Choi 2010].

A utilização de combustível U-Pu nos reatores HTGR com alto *burnup* tem vantagem do ponto de vista da economia de recurso natural, mas leva à criação de plutônio de segunda geração e de actínídeos menores a partir de sucessivas absorções devido à presença do <sup>238</sup>U. Uma opção aventada para este problema é realizar a queima do plutônio em mistura com o tório o que

possivelmente resultaria em menor produção de transurânicos devido ao menor número atômico do tório.

A maioria dos trabalhos encontrados sobre o uso do tório estuda o comportamento destes combustíveis em reatores do tipo *pebble bed*, utilizando diferentes sistemas e modelamentos. Chang, H. & Jing, X. [Chang 2006] e Rutten, H. & Haas, K, [Rutten 2000] fizeram estudos para o reator HTR-MODUL 200 para diferentes composições da mistura Pu-Th. A conclusão é parecida no que diz respeito à máxima fração de queima do plutônio inicial: aproximadamente 90% a 95% para o plutônio de bombas e 70 a 88% para o plutônio de 1ª geração proveniente de combustíveis queimados de PWRs.

Cerullo et alli [Cerullo 2005] estudaram a evolução da radiotoxicidade após a queima na utilização do plutônio como combustível no HTGR. Os cálculos foram feitos com o código MONTEBURNS, onde foi modelada uma esfera de combustível do tipo *pebble bed* em uma malha infinita (condições de contorno brancas). Na análise da radiotoxicidade do rejeito, usaram como figura de mérito o tempo gasto para atingir a mesma radiotoxicidade do minério que o originou, LOMBT (*level of mine balancing time*). Concluíram que há uma grande redução do LOMBT em relação ao do rejeito dos LWR (250.000 anos) para os três combustíveis considerados: Pu de 1ª geração: 43.000 anos; Pu de 2ª geração: 35.000 anos; mistura de 33% de Pu de 1ª geração com 67% de Th: 33.000 anos.

A preocupação em eliminar o conteúdo de actinídeos menores no rejeito dos reatores tem inspirado estudos dedicados também à queima destes actinídeos em reatores HTGR devido à possibilidade de alto *burnup* e no espectro de nêutrons mais endurecido que o de reatores de água leve com reflexo na fissão de núcleos intermediários formados pela captura de nêutrons nos actinídeos não físséis. Ao contrário da incineração do plutônio, este é um assunto ainda não muito explorado.

A proposta mais completa encontrada na literatura que inclui os actinídeos menores no combustível para incineração é o DB-MHR (*Deep Burn Modular Helium Reactor*). O sistema baseia-se no projeto do GT-MHR (*Gas Turbine*

*Modular Helium Reactor*) da *General Atomic*, um reator a gás a alta temperatura de 600 MW<sub>th</sub>, com combustível do tipo bloco prismático. [Talamo 2006; Rodriguez 2003]

O sistema de alta queima (*Deep Burn*) utiliza dois tipos de combustíveis oriundos de reatores LWR reprocessado pelo método UREX: o combustível de queima, DF (*Driver Fuel*), que contém os elementos Pu e Np, e o combustível de transmutação, TF (*Transmutation Fuel*), que contém os isótopos a serem transmutados.

O reator opera num ciclo de recarga otimizado para a queima de transurânicos. O DF queimado é submetido ao reprocessamento UREX para eliminação dos produtos de fissão e retorna ao reator na forma de TF misturado aos outros actínídeos menores separados do combustível irradiado do LWR, Am e Cm.

O rejeito do DB-MHR são as partículas TRISO do combustível de transmutação, TF, queimado. As estimativas são de que, até este ponto do esquema haja a destruição de 58% [Salvatores 2011] a 70% [Rodriguez 2003] dos transurânicos. Então este rejeito pode ser considerado final ou passar pela última fase de irradiação num reator subcrítico ADS com o mesmo projeto do GT-MHR com o alvo do sistema de *spallation* localizado no centro do núcleo de transmutação. Segundo a estimativa de Rodriguez et alli [2003], esta última etapa permitiria chegar a 95% de destruição dos actínídeos oriundos do LWR.

Pohl, C e Rutten, H.J. [Pohl 2012] realizaram um estudo de queima de plutônio e actínídeos menores com e sem adição de tório num reator *pebble bed* genérico de 400 MW<sub>th</sub>. As simulações foram realizadas com o código VSOP e procuraram avaliar em que extensão a fração de actínídeos menores poderia ser reduzida. Foi utilizada uma carga de 2g de metal pesado por esfera de combustível. As composições estudadas foram; (Pu puro), (Pu+Th), (Pu + Np + Am) e (Pu + Np + Am + Th). Nos cálculos com Th, foi acrescentado 1 g de Th aos 2 g de actínídeos por esfera.

Como conclusão geral, confirmaram que o Th e os actínídeos menores atuam como venenos na mistura com o Pu, melhorando características de segurança

do reator como temperatura máxima do combustível e coeficiente de temperatura da reatividade.

No combustível com Pu puro houve uma redução de 71% na quantidade inicial de transurânicos. Nas misturas de Pu e actínideos menores, a fração total de transurânicos queimada diminuiu com o aumento da carga inicial de actínideos menores embora haja uma diminuição destes com a queima. Nos casos avaliados, a fração de queima de actínideos menores ficou abaixo de 20%. Também a introdução de Th no Pu puro produziu uma ligeira diminuição da fração de actínideos queimada. O *burnup* final foi reduzido tanto na mistura com tório quanto com actínideos menores.

Os autores advertem que as conclusões não podem ser generalizadas, desde que refletem parte das composições de combustível e projetos de elementos combustíveis e núcleos possíveis.

Choi, H. e Baxter, A. [Choi 2010] analisaram o efeito sobre a economia de recursos naturais e a queima de actínideos de dois sistemas de reatores. O primeiro é constituído de reator LWR e de um reator rápido a gás (GFR) que realiza a queima dos transurânicos provenientes de combustível LWR reprocessado pelo método UREX. No segundo sistema é introduzido um reator HTGR entre o LWR e o GFR. Os autores concluíram que o primeiro sistema é mais interessante do ponto de vista da economia de recursos naturais e proporciona um fator de redução de 110 vezes na quantidade de transurânicos quando comparado ao ciclo aberto. No esquema com a etapa intermediária de HTGR, a redução seria de 220 vezes.

Neste trabalho foi utilizado o modelamento de um reator HTGR do tipo bloco prismático para avaliação do seu comportamento na queima de transurânicos, em particular dos actínideos menores. Foi investigado o efeito da adição de urânio empobrecido e de tório para diluição do combustível à base de transurânicos.

O reator escolhido foi o HTTR – *High Temperature Engineering Test Reactor* japonês. Esta escolha deve-se à disponibilidade na literatura de dados detalhados tanto da configuração geométrica quanto dos materiais utilizados o

que permite um modelamento detalhado do HTTR. Também estão disponíveis resultados de testes experimentais e resultados de simulações com vários códigos que proporcionam a possibilidade de testar-se o modelamento realizado.

### 3. MODELAMENTO COMPUTACIONAL DO REATOR HTTR

#### 3.1 O Reator HTTR

O reator HTTR é um reator de testes projetado e construído pelo *Japan Atomic Energy Research Institute* (JAERI) para estabelecer a tecnologia de reatores HTGR no país e investigar aplicações a processos térmicos a alta temperatura. Sua potência nominal é de 30 MW<sub>t</sub> e a temperatura de saída do refrigerante hélio é de 850 °C em funcionamento contínuo [Saito 1991].

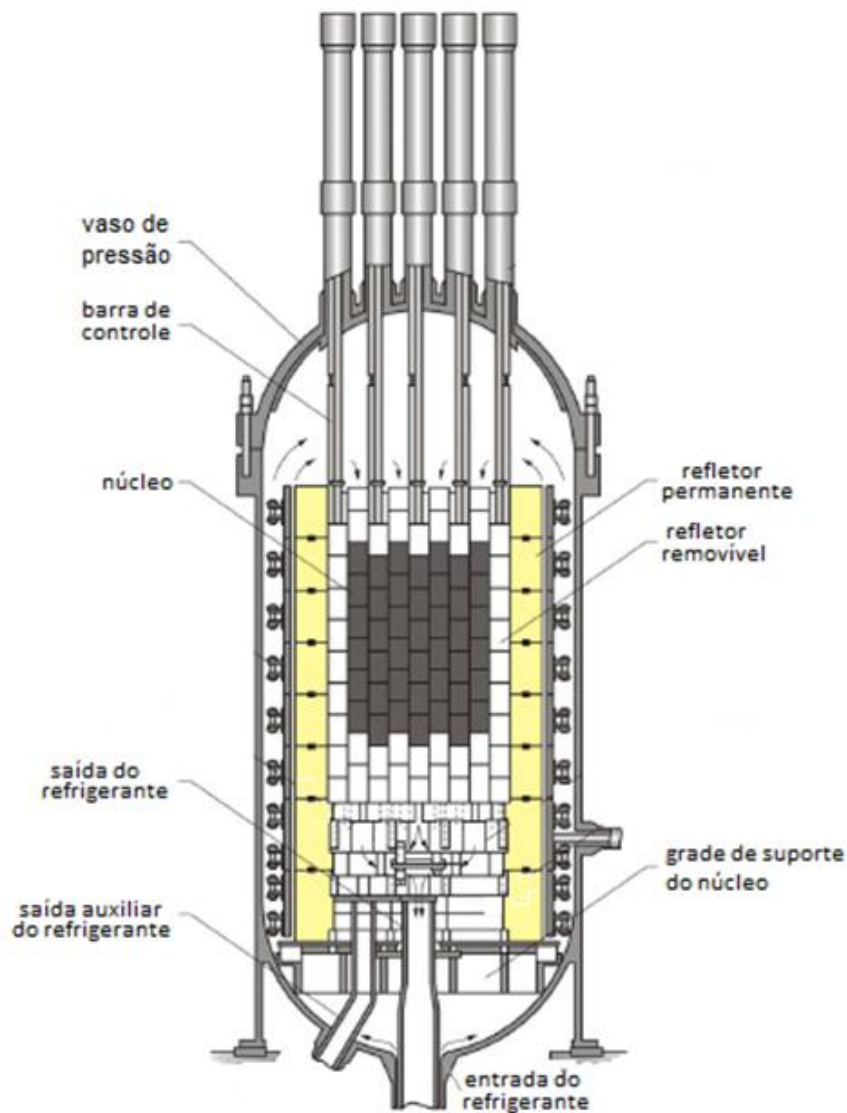


Fig. 3.1 – Seção vertical do vaso do reator HTTR

Adaptada de [Bess 2009]



O núcleo do HTTR é um arranjo cilíndrico composto por colunas hexagonais de grafite circundadas por um refletor permanente de grafite. As colunas hexagonais são formadas por blocos empilhados que possuem furos para acomodar os elementos correspondentes à sua função: barras de combustível, barras de controle, e locais para instrumentação e testes de irradiação. O núcleo possui 30 colunas de combustível, 16 colunas de barras de controle, 12 colunas de refletores removíveis e 3 colunas para acomodação de dispositivos para testes de irradiação, como mostrado na Fig. 3.1 e na Fig 3.2.

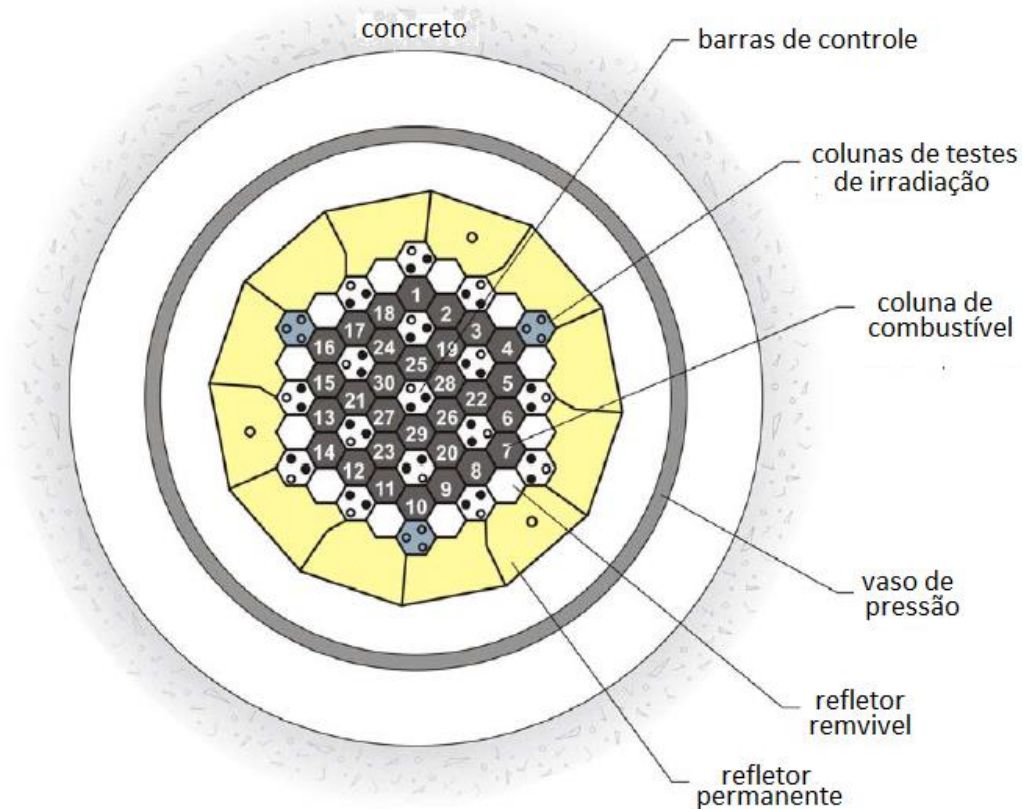


Fig. 3.2 – Seção horizontal do vaso do reator HTTR.[Bess 2009]

Adaptada de [Bess 2009]

As dimensões externas dos blocos são: 58,0 cm de altura e 36,0 cm entre faces opostas. O núcleo ativo, incluindo os refletores removíveis, tem um diâmetro de 325,8 cm. As dimensões externas, incluindo refletores

permanentes, são um diâmetro de 425 cm e uma altura de 525 cm [IAEA 2001<sup>b</sup>].

O elemento combustível consiste em barras de combustível e barras de veneno queimável inseridas em um bloco de grafite. Sua constituição é mostrada na Fig. 3.3. Eles possuem 31 ou 33 orifícios circulares em que são inseridas as barras de combustível de menor diâmetro formando canais anulares de 2,5 mm para a passagem do refrigerante, He, que circula no sentido ascendente.

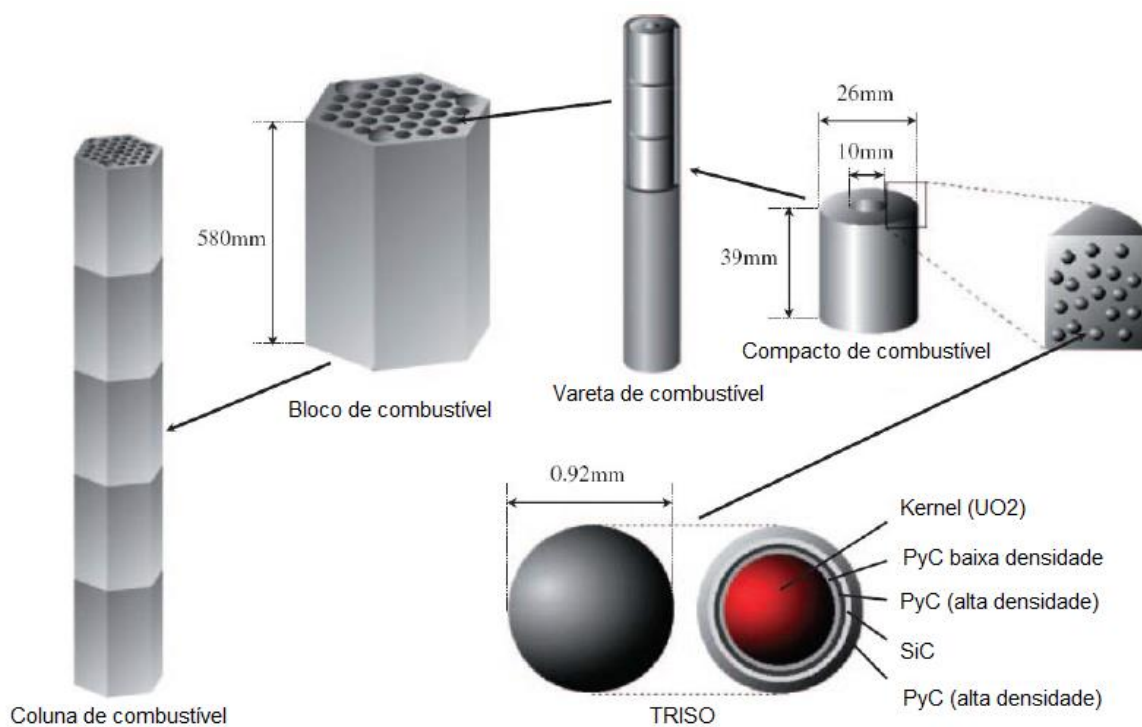


Fig 3.3 - Detalhe da constituição do elemento combustível [Bess 2009]

As barras de combustível consistem de 14 compactos de combustível contidos em um revestimento de grafite. Os compactos têm a forma de cilindro oco e contêm cerca de 13.000 partículas de combustível TRISO dispersas em matriz de grafite. A partícula TRISO é composta de um núcleo esférico de  $UO_2$  com quatro camadas de revestimento (Tabela 3.1).

Tabela 3.1 – Dimensões das partículas TRISO do Reator HTTR  
Adaptada de [Bess 2009]

	Espessura ( $\mu\text{m}$ )	Densidade ( $\text{g/cm}^3$ )
<i>Kernel</i>	600	10,63
<i>Buffer</i>	60	1,10
Camada interna de carbono pirolítico( IPyC )	30	1,85
Carbeto de Si	25	3,20
Camada externa de carbono pirolítico (OPyC)	45	1,85

Como forma de otimizar a distribuição de temperatura no núcleo, o enriquecimento do combustível dos blocos diminui da periferia para o centro do reator na direção radial e de baixo para cima na direção axial. São utilizados 12 diferentes enriquecimentos de urânio que variam entre 3,4 e 9,9 % em peso.

As barras de venenos queimáveis, feitas de carbeto de boro e grafita, são introduzidas em dois de três orifícios nos blocos de combustível.

As principais características de projeto do reator HTTR são sumariadas na Tabela 3.2.

Tabela 3.2 - Características de projeto do reator HTTR  
Adaptada de [IAEA 2001<sup>b</sup>]

Potência térmica	30 MW
Temperatura de saída do refrigerante	850/950 C
Temperatura de entrada do refrigerante	395 C
Pressão	4 MPa
Combustível	UO <sub>2</sub>
Enriquecimento	3 a 10 % em massa. 6,1 % em massa (médio)
Período de <i>burnup</i> (EFPD)	660 dias

### **3.2 Simulação Neutrônica de Reatores Nucleares**

A simulação neutrônica da queima do combustível em um reator compreende dois estágios realizados iterativamente de forma que os resultados de um estágio produzem os dados de entrada para o outro.

No primeiro estágio, é feito o cálculo do transporte de nêutrons no material, obtendo-se a distribuição do fluxo de nêutrons no sistema, o que permite a avaliação das seções de choque médias para as reações com nêutrons dos materiais componentes do sistema e a avaliação da criticalidade do reator.

A composição do meio varia com o tempo devido às reações nucleares e decaimentos radioativos, o que é tratado no segundo estágio de cálculo.

Para o cálculo da variação da composição no tempo, é utilizado um segundo estágio que considera o resultado do estágio anterior constante para um intervalo de tempo. O cálculo consiste em integrar as equações de evolução que consideram, para cada tipo de nuclídeo, o conjunto de interações que podem criá-lo ou destruí-lo. As equações de transporte para cada nuclídeo incluem as interações de criação e desaparecimento do nuclídeo presente. Os dados da nova composição consideram as seções de choque médias de interação obtidas no estágio anterior e as constantes de decaimento radioativo dos materiais presentes.

Há disponíveis vários códigos computacionais para a investigação de processos nucleares e cálculo dos parâmetros característicos de reatores nucleares. Estes podem ser classificados em duas grandes categorias que utilizam diferentes abordagens para tratamento do transporte de nêutrons no meio: o tratamento determinístico e tratamento estocástico.

Os métodos determinísticos executam a solução numérica das equações de transporte de Boltzmann para grupos de energia dos nêutrons produzindo o espectro de nêutrons e as seções de choque correspondentes através da utilização de bibliotecas de dados.

Os métodos estocásticos em geral utilizam o método de Monte Carlo que consiste em simular as trajetórias possíveis de uma partícula no meio desde

seu aparecimento até o desaparecimento por reação ou fuga. Em cada interação, a consequência (espalhamento, absorção, fissão, etc) é decidida aleatoriamente utilizando distribuições de probabilidade derivadas de dados de transporte. São simuladas várias partículas com as mesmas condições iniciais e o resultado do cálculo será tomado como a média do comportamento do conjunto. A grande vantagem do método é permitir a representação geométrica fiel de sistemas com geometria complexa. Quanto maior o número de partículas simuladas, maior a precisão do resultado, por isto os códigos estocásticos exigem uma grande carga computacional.

Entre os códigos estocásticos mais frequentemente aplicados à simulação de reatores, independentes do tempo, estão o KENO-V e KENO-VI, disponíveis no sistema de códigos SCALE, TRIPOLI, a família do MCNP(X), entre outros.

Para simular reatores juntamente com a queima do combustível, estão disponíveis no DEN/UFMG os códigos MONTEBURNS 2.0 (MCNP(X)/ORIGEN 2.1 ou CINDER), MCNPX 2.6.0 (MCNPX/CINDER) e SCALE 6.0 (KENO/ORIGEN-S). Para os dois primeiros apenas dispomos de bibliotecas de dados nucleares à temperatura ambiente. Para este trabalho, a opção foi pelo código SCALE 6.0 que, além de permitir a simulação da queima à temperatura de trabalho, é um código muito usado para licenciamento de usinas nucleares, já devidamente validado, verificado e aceito amplamente pela comunidade internacional.

### **3.2.1 O código SCALE**

SCALE (*Standardized Computer Analyses for Licensing Evaluation*) é um sistema de códigos desenvolvido no *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL) [ORNL 2006]. Trata-se de uma ferramenta amigável, validada e verificada, amplamente utilizada e aceita mundialmente para aplicações nucleares tais como: processamento de seções de choque, cálculos de física de reatores, análises de criticalidade, radioproteção e blindagem das radiações, caracterização do combustível queimado e análises de sensibilidade e incerteza, além de visualização 3-D e interface automática com o usuário.

SCALE consiste de uma estrutura de sequências e módulos funcionais de controle e de interface usando métodos determinísticos e estocásticos para a solução da equação de transporte de partículas.

Módulos funcionais incluem códigos básicos de física, tais como, BONAMI, NITAWL e CENTRUM, utilizados para o processamento das seções de choque; XSDRNPM (uma dimensão), NEWT (duas dimensões), KENO-V.a e KENO-VI (três dimensões) utilizados na análise de criticalidade e o ORIGEN-S que realiza cálculos de queima e cálculo de termo fonte, entre outros.

Módulos de controle operam como controladores de sequências, preparando entradas para módulos funcionais, transferindo dados, e executando-os em uma sequência adequada para um tipo particular de análise. O SCALE inclui vários módulos de controle tais como o TRITON e o CSAS além de muitos outros módulos aplicáveis ao cálculo de blindagem, análise de sensibilidade e incerteza. De uma forma geral, o módulo TRITON controla o processamento das seções de choque e cálculos de transporte, queima e determinação de termo fonte. O módulo CSAS controla o processamento de seções de choque e cálculos de análise de criticalidade.

As sequências de controle usadas neste trabalho estão relacionadas com o interesse em analisar a criticalidade e a queima no núcleo. Para tal objetivo foram usadas CSAS6 [Goluoglu 2009] com KENO-VI [Hollenbach 2009] para análise de criticalidade, e T6-DEPL [DeHart 2009<sup>a</sup>] com KENO-VI / ORIGEN-S [Gauld 2009] para a queima. Para que houvesse concordância nas duas sequências de cálculos, a biblioteca de dados de seções de choque escolhida foi a v7-238 que corresponde a uma biblioteca de 238 grupos, colapsada da biblioteca de dados contínua ENDF/B-VII.0. Neste caso utilizam-se os módulos de processamento CENTRM [Williams 2009<sup>a</sup>] e PMC [Williams 2009<sup>b</sup>] para o cálculo das ressonâncias resolvidas.

### 3.3 Descrição do Modelamento do Reator HTTR com o Código SCALE

O núcleo do reator HTTR foi detalhadamente modelado no código SCALE de acordo com as dimensões e composição de cada zona conforme descritas na literatura (Bess et al, 2009; Saito et al, 1991).

O modelo foi criado no sistema de código SCALE 6.0 utilizando o módulo KENO-VI, que proporciona flexibilidade nas representações geométricas. O pacote de geometria no KENO-VI é capaz de modelar qualquer volume que possa ser construído por meio de equações quadráticas (superfícies de segunda ordem).

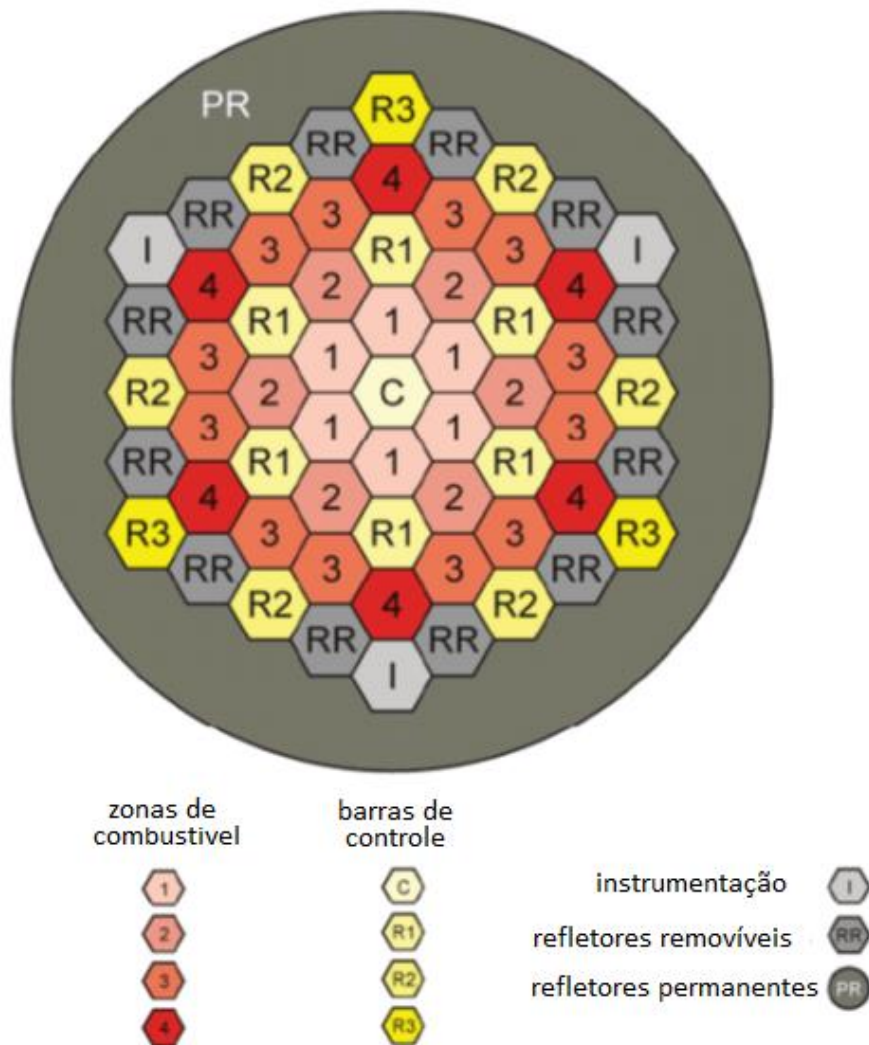


Fig. 3.4 Perfil radial do modelamento do núcleo do reator HTTR

Podem-se distinguir no HTTR quatro tipos de blocos prismáticos hexagonais: blocos de elemento combustível, blocos de refletores removíveis, blocos de barras de controle e blocos para instrumentação e experimentos de irradiação. Cada bloco hexagonal tem as mesmas dimensões (36 cm X 58 cm).

No modelamento foram criados modelos para cada um dos tipos de blocos que depois foram organizados em uma matriz de linhas e colunas para a construção do modelo do núcleo do HTTR.

A Fig.3.4 mostra a geometria radial do modelamento com os blocos de combustível, de barras de controle, de canais de instrumentação, de refletores removíveis e o refletor permanente.

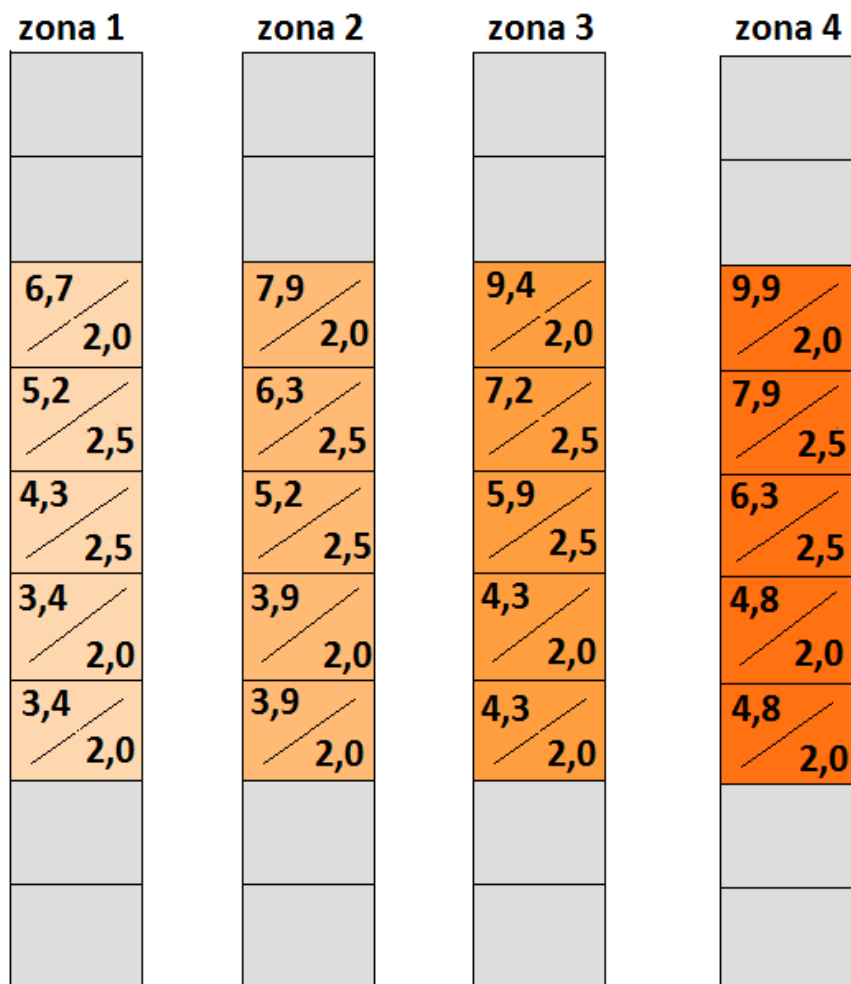


Fig.3.5 Perfil axial das colunas de combustível



A Fig.3.5 mostra o perfil axial das colunas modeladas para as quatro zonas de combustível. Cada coluna contém cinco blocos de combustível com dois blocos refletores removíveis em cada extremidade superior e inferior. Os números dentro dos blocos representam o enriquecimento do combustível (% em peso) (superior esquerdo) e a fração de boro natural (% em peso) nos pinos de veneno queimável (canto inferior direito)

A Fig. 3.6 mostra os dois tipos de blocos de combustível com 33 pinos (zonas 1 e 2) e 31 pinos (zonas 3 e 4). O passo entre os centros das barras de combustível é de 51,5 mm. Estes blocos possuem três furos para alojamento dos pinos de venenos queimáveis. Os blocos refletores nas extremidades das colunas de combustível possuem perfuração idêntica a esta para passagem do gás refrigerante.

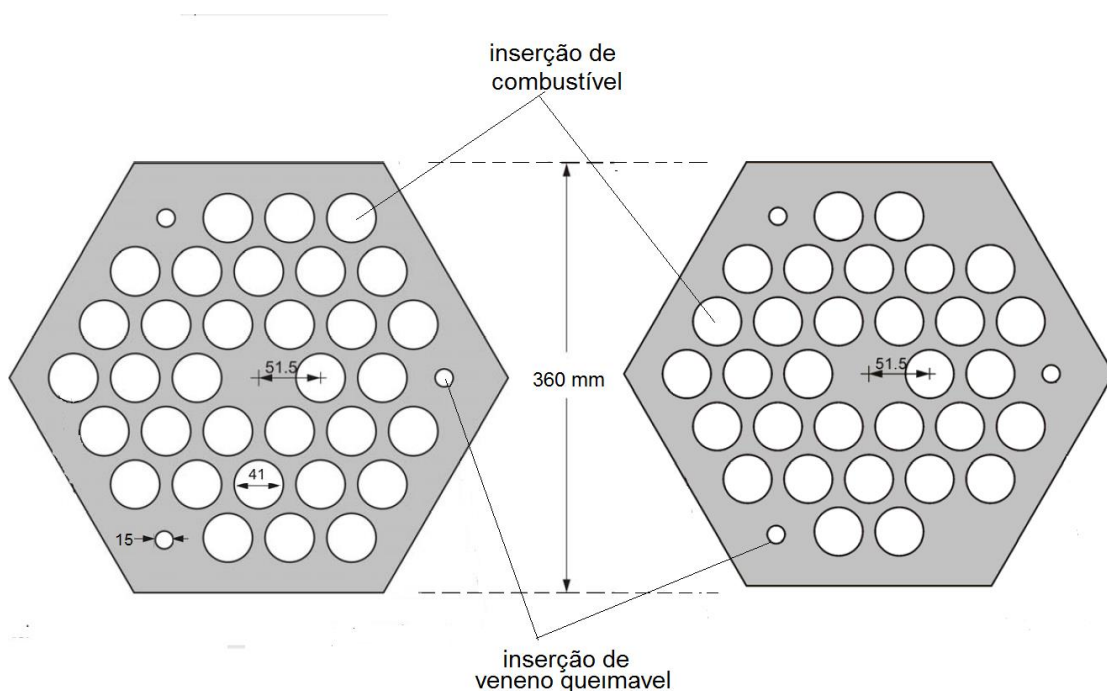


Fig. 3.6 Perfil radial dos blocos de combustível.

As colunas de barra de controle e as de instrumentação têm três perfurações axiais eqüidistantes umas das outras( Fig 3.7). Na coluna de barra de controle, duas posições acomodam barras e uma fica vazia, reservada para o desligamento do sistema.

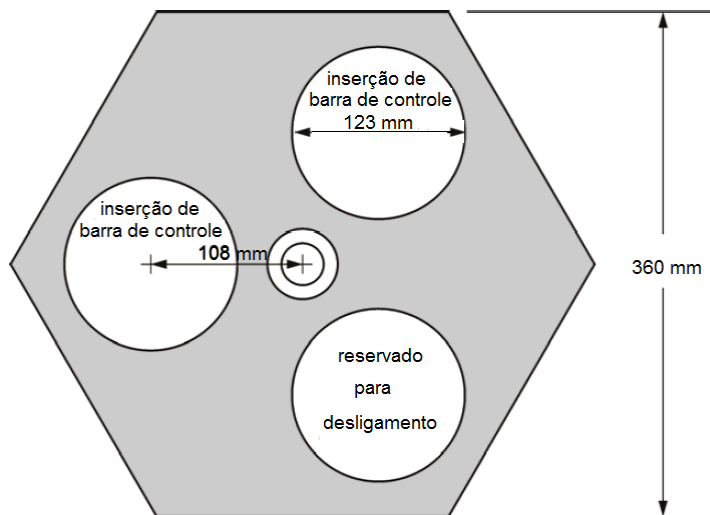


Fig. 3.7 Perfil radial dos blocos de barra de controle.

O modelamento dos blocos de refletor removíveis é similar ao das colunas de barras de controle, porém sem as perfurações.

O refletor permanente é modelado como uma estrutura de grafite que circunda o conjunto de blocos descrito.

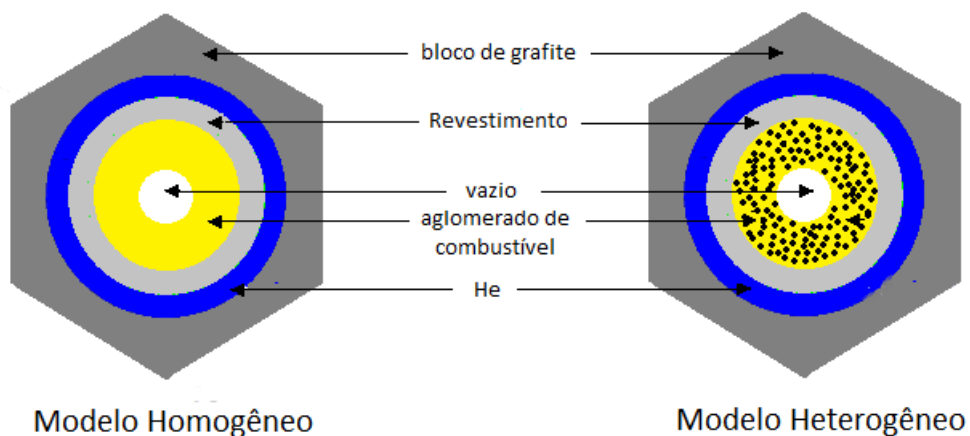


Fig. 3.8 - Modelamento do combustível

A barra de combustível pode ser simulada por dois modelos diferentes apresentados na Fig 3.8. O modelo heterogêneo representa o modelo real, com

cada partícula de combustível e suas camadas, que são compostas por carbeto de silício, SiC, e de carbono pirolítico, PyC, dispersas numa matriz de carbono dentro da barra de combustível. O modelo homogêneo representa o combustível como uma mistura homogênea dos componentes da esfera TRISO (*tristructural-isotrópic*) e da matriz de grafite. O modelo homogêneo foi utilizado nesta simulação e bons resultados foram obtidos usando este modelo para simular o combustível padrão do experimento de *benchmark* de criticalidade do HTTR [Tanure 2014].

## 4. METODOLOGIA E ANÁLISE DOS RESULTADOS

Conforme dito na introdução, o principal objetivo deste trabalho é o estudo do desempenho de um reator a gás de alta temperatura na queima de transurânicos, provenientes do reprocessamento do combustível de reatores PWR em misturas com tório e com urânio empobrecido.

### 4.1 Resultados Preliminares

Em trabalhos anteriores realizados no Departamento de Engenharia Nuclear da UFMG (DEN-UFMG), o código SCALE 6.0 foi empregado no modelamento dos reatores HTR-10 [Sousa 2013] e HTTR [Tanure 2014, Sousa 2014<sup>a</sup>]. A biblioteca de 44 grupos colapsada da ENDF/B-V foi usada para os cálculos. Foram realizadas simulações para o cálculo do  $k_{\text{eff}}$  inicial que, comparados aos valores dos respectivos *benchmark*, [IAEA 2003; Bess 2009; Taiwo 2005], mostraram excelentes resultados.

Tabela 4.1 - Valores de  $k_{\text{eff}}$  experimental e calculados com códigos Monte Carlo para o reator HTTR [Tanure 2014]

Organização	Código	Biblioteca	$k_{\text{eff}}$
JAERI-Japão	Experimental		1,1363 $\pm$ 3,6%
CEA-França	TRIPOLI 4	JEF2.2	1,1463 $\pm$ 0,0009
IRI-Holanda	KENO	JEF2.2	1,1584 $\pm$ 0,0005
IBRAE-Rússia	MCNP4A	ENDF/B-VI	1,1567 $\pm$ ?
Turquia	MCNP4B	ENDF/B-VI	1,1564 $\pm$ 0,0010
ANL-Estados Unidos	MCNP4C	ENDF/B-VI	1,1571 $\pm$ 0,0004
	MCNP4C	JEF2.2	1,1605 $\pm$ 0,0006
	MCNP5	ENDF/B-VI	1,1579 $\pm$ 0,0004
UFMG	SCALE6.0	ENDF/B-VII	1,1310 $\pm$ 0,0002

Na Tabela 4.1 encontram-se os resultados obtidos para o reator HTTR juntamente com aqueles de outros autores disponíveis na literatura onde são comparados ao resultado experimental do *benchmark*. O combustível utilizado no *benchmark* é  $\text{UO}_2$  com enriquecimento médio de 6,1% em  $^{235}\text{U}$  conforme descrito no item 3.1.

Tabela 4.2 - Composição dos isótopos pesados do combustível irradiado do PWR após 5 anos de resfriamento.

Enriquecimento inicial: 3,1% ; *burnup*: 33 GWd/tMP [Cota 1997].

Elemento	% em massa	Isótopo	% em massa
<b>U</b>	9,881E+01	$^{234}\text{U}$	1,003E-03
		$^{235}\text{U}$	6,984E-01
		$^{236}\text{U}$	4,158E-01
		$^{238}\text{U}$	9,769E+01
<b>Np</b>	5,414E-02	$^{237}\text{Np}$	5,414E-02
<b>Pu</b>	1,075E+00	$^{238}\text{Pu}$	2,046E-02
		$^{239}\text{Pu}$	5,971E-01
		$^{240}\text{Pu}$	2,504E-01
		$^{241}\text{Pu}$	1,353E-01
		$^{242}\text{Pu}$	7,126E-02
<b>Am</b>	5,794E-02	$^{241}\text{Am}$	4,204E-02
		$^{242\text{m}}\text{Am}$	1,125E-04
		$^{243}\text{Am}$	1,579E-02
<b>Cm</b>	4,847E-03	$^{242}\text{Cm}$	1,131E-06
		$^{243}\text{Cm}$	6,009E-05
		$^{244}\text{Cm}$	4,517E-03
		$^{245}\text{Cm}$	2,380E-04
		$^{246}\text{Cm}$	3,063E-05

Ressalta-se que dentre os valores de  $k_{\text{eff}}$  comparados, aquele obtido no DEN-UFMG foi o que apresentou o menor desvio em relação ao resultado

experimental. Os resultados de outros autores encontram-se sistematicamente acima do valor experimental. O resultado deste teste de benchmark é um indicativo da adequação do modelamento desenvolvido para a simulação do comportamento do reator HTTR.

Dando prosseguimento à exploração do modelamento do HTTR com o código SCALE 6.0, iniciou-se uma investigação sobre o comportamento do reator quando alimentado com transurânicos provenientes do reprocessamento do combustível de um reator PWR típico. Existem muitas possibilidades para a composição isotópica destes transurânicos, desde que ela é dependente dos parâmetros de operação do PWR e do tempo de resfriamento do combustível. Para o combustível reprocessado, foi utilizado o resultado do reprocessamento pelo método UREX+ de um combustível com 3,1% de enriquecimento inicial submetido a um *burnup* de 33.000 MWd/tMP após 5 anos na piscina de resfriamento cuja composição é apresentada na Tabela 4.2.

Tabela 4.3 - Composição do material transurânico utilizado nas simulações

Elemento	% em massa	Isótopo	% em massa
<b>Np</b>	3,29	<sup>237</sup> Np	3,29E+00
<b>Pu</b>	91,52	<sup>238</sup> Pu	1,74E+00
		<sup>239</sup> Pu	5,09E+01
		<sup>240</sup> Pu	2,13E+01
		<sup>241</sup> Pu	1,15E+01
		<sup>242</sup> Pu	6,07E+00
<b>Am</b>	4,86	<sup>241</sup> Am	3,53E+00
		<sup>242m</sup> Am	9,43E-03
		<sup>243</sup> Am	1,32E+00
<b>Cm</b>	0,33	<sup>242</sup> Cm	7,65E-05
		<sup>243</sup> Cm	4,06E-03
		<sup>244</sup> Cm	3,05E-01
		<sup>245</sup> Cm	1,61E-02
		<sup>246</sup> Cm	2,07E-03

Sobre os dados da Tabela 4.2 foram aplicados os seguintes percentuais de recuperação pelo método UREX+: 99,95% do U, 99,5% do Pu, 71,0% do Np, 98,0% do Am e 79,0% do Cm . (Pereira 2005), resultando na composição dos transurânicos mostrada na Tabela 4.3.

Tabela 4.4 Composição da partícula TRISO dos combustíveis alternativos  
(15,2 % em massa de material físsil)

Isótopo	TRU diluído com Th (% em massa)	TRU diluído com U empobrecido (% em massa)
<sup>232</sup> Th	2,32782E+01	-
<sup>235</sup> U	-	4,67061E-02
<sup>238</sup> U	-	2,33063E+01
<sup>238</sup> Pu	1,30690E-01	1,29385E-01
<sup>239</sup> Pu	3,81368E+00	3,77560E+00
<sup>240</sup> Pu	1,59933E+00	1,58336E+00
<sup>241</sup> Pu	8,64483E-01	8,55853E-01
<sup>242</sup> Pu	4,55154E-01	4,50610E-01
<sup>237</sup> Np	2,46747E-01	2,44284E-01
<sup>241</sup> Am	2,64492E-01	2,61851E-01
<sup>242</sup> Am	7,07440E-04	7,00380E-04
<sup>243</sup> Am	9,93236E-02	9,83319E-02
<sup>242</sup> Cm	5,74000E-06	5,68000E-06
<sup>243</sup> Cm	3,04710E-04	3,01670E-04
<sup>244</sup> Cm	2,29071E-02	2,26784E-02
<sup>242</sup> Cm	1,20699E-03	1,19494E-03
<sup>246</sup> Cm	1,55350E-04	1,53800E-04
O	4,13881E+00	4,13881E+00
<sup>10</sup> B	1,66000E-05	1,66000E-05
<sup>11</sup> B	7,34800E-05	7,34800E-05
Si	4,00496E+00	4,00496E+00
C	6,10788E+01	6,10788E+01

Os transurânicos (TRU) provenientes deste reprocessamento (Np, Pu, Am e Cm) foram utilizados para a simulação de dois novos tipos de combustível alternativos: TRUs diluídos em urânio empobrecido e TRUs diluídos em tório. O teor de  $^{235}\text{U}$  no urânio empobrecido foi de 0,2%. A diluição é necessária para se obter diferentes níveis de fração físsil no combustível.

De forma a obter uma distribuição mais uniforme da temperatura, o projeto original do reator HTTR realiza uma distribuição não uniforme do enriquecimento do combustível utilizando 12 tipos de combustíveis que se diferenciam pelo grau de enriquecimento (Fig.3.5). As simulações com transurânicos realizadas neste trabalho preservam o perfil da distribuição espacial de percentuais físsis dos elementos combustíveis utilizada no projeto original do HTTR. Para a obtenção dos diferentes percentuais físsis, os TRUs são diluídos em tório ou urânio empobrecido.

A Tabela 4.4 mostra o exemplo de uma das composições do combustível alternativo com o percentual físsil de 15,2% em diluição com tório. A fração de boro nesta tabela corresponde à impureza da grafita na partícula combustível TRISO.

Os estudos iniciam-se com a avaliação da condição de criticalidade do HTTR com os dois novos combustíveis alternativos para as mesmas condições do experimento de *benchmark* do HTTR: temperatura de 300 K, mesma quantidade de venenos queimáveis e barras de controle totalmente retiradas.

A Fig. 4.1 mostra os resultados da evolução do  $k_{\text{eff}}$  obtidos para a queima do combustível padrão ( $\text{UO}_2$  com 6,1% de enriquecimento médio) e dos dois combustíveis alternativos com a mesma fração média de isótopos físsis do combustível padrão. Os cálculos foram feitos para uma taxa de queima de 33,3  $\text{MW}_{\text{th}}/\text{tMP}$  durante 660 dias, de acordo com os dados de projeto do reator original (Bess 2009). Ambas as misturas apresentam um  $k_{\text{eff}}$  muito inferior ao do combustível padrão situando-se abaixo de 1, o que indica que, para estas condições, o reator não ficará crítico.



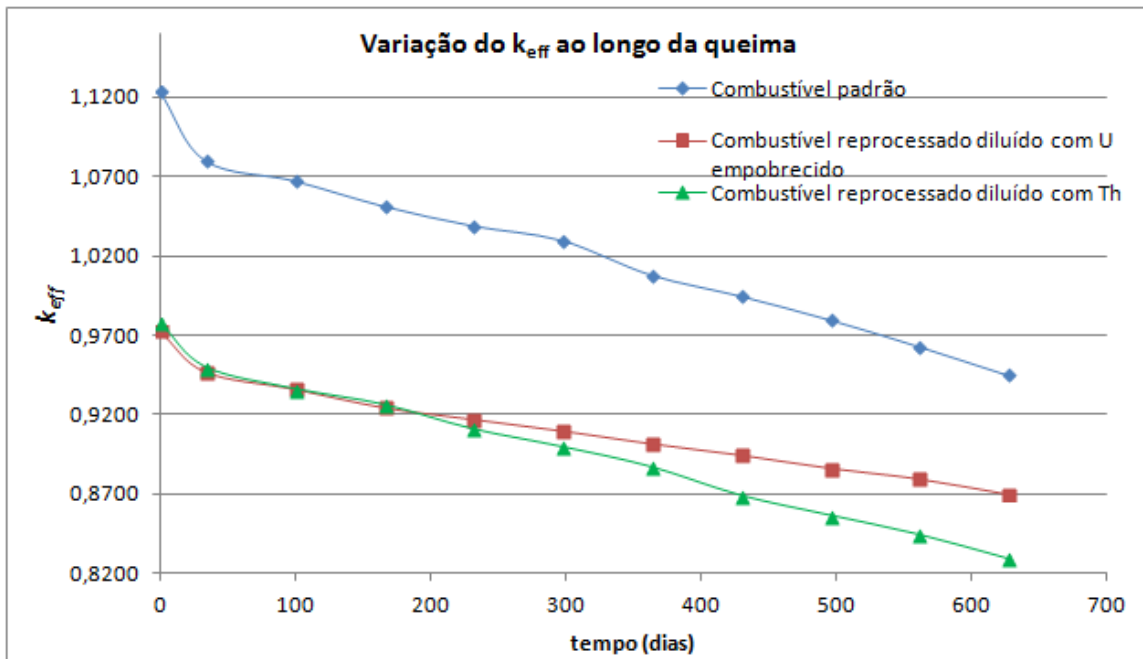


Fig. 4.1. Variação do  $k_{eff}$  para os três tipos de combustível (300 K). [Sousa 2014<sup>a</sup>]

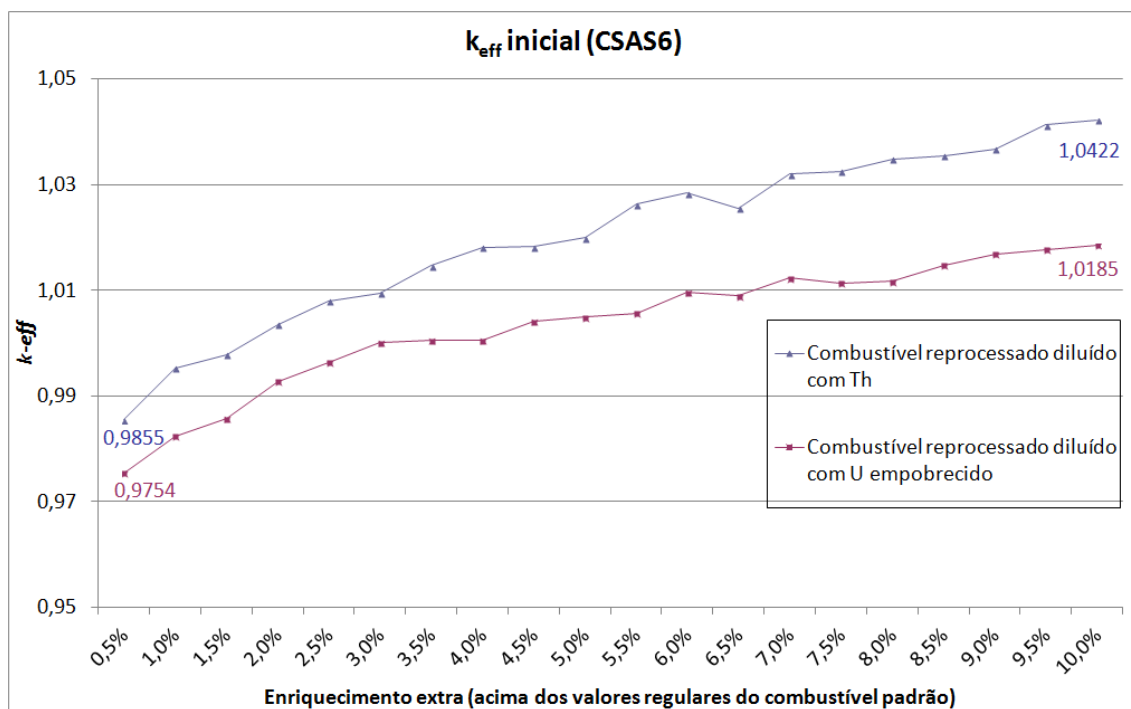


Fig 4.2 – Variação do  $k_{eff}$  inicial com o percentual físsil para os combustíveis reprocessados. [Sousa 2014<sup>a</sup>]

Para atingir maiores valores de  $k_{\text{eff}}$ , a fração físsil dos novos combustíveis deve ser aumentada. Foram realizados cálculos dos  $k_{\text{eff}}$  iniciais para maiores frações físsis nos combustíveis alternativos limitando-se a 20% o enriquecimento máximo de elementos combustíveis individuais. Com esta restrição, o  $k_{\text{eff}}$  inicial dos combustíveis alternativos não logrou atingir valores comparáveis ao  $k_{\text{eff}}$  do combustível padrão, conforme ilustrado na Fig 4.2.

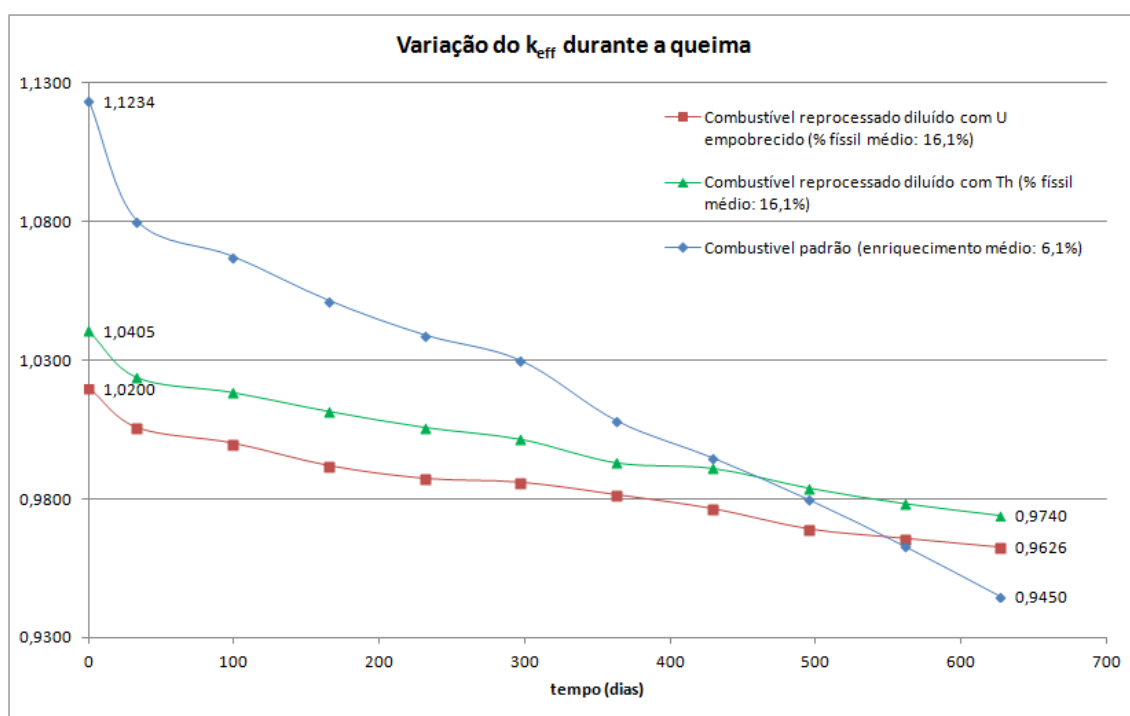


Fig 4.3 – Evolução do  $k_{\text{eff}}$  durante a queima.[Sousa 2014<sup>a</sup>]

Na Fig.4.3 é acompanhada a evolução do  $k_{\text{eff}}$  durante a queima dos combustíveis para os maiores valores iniciais obtidos anteriormente para cada mistura alternativa, correspondentes a um enriquecimento médio de 16,1% (acrécimo de 10% sobre o conteúdo físsil do combustível padrão). Os dois combustíveis alternativos exibem um  $k_{\text{eff}}$  inicial bem menor que o do combustível padrão e atingem a subcriticalidade antes deste.

A pequena discrepância notada no valor do  $k_{\text{eff}}$  inicial nas figuras 4.2 e 4.3 deve-se aos diferentes módulos do SCALE6.0 utilizados nos cálculos de criticalidade (CSAS6) e de queima (TRITON).

Foi também realizada uma avaliação da resposta do fator de multiplicação inicial a variações nas temperaturas do combustível e do moderador. A Fig. 4.4 é a resposta à variação da temperatura do combustível enquanto a temperatura do moderador é mantida constante e a Fig.4.5 é a resposta à variação da temperatura do moderador para uma temperatura constante do combustível. Ambas apresentam a tendência de diminuição do  $k_{\text{eff}}$  com o aumento da temperatura indicando um comportamento estável do reator [Sousa 2014].

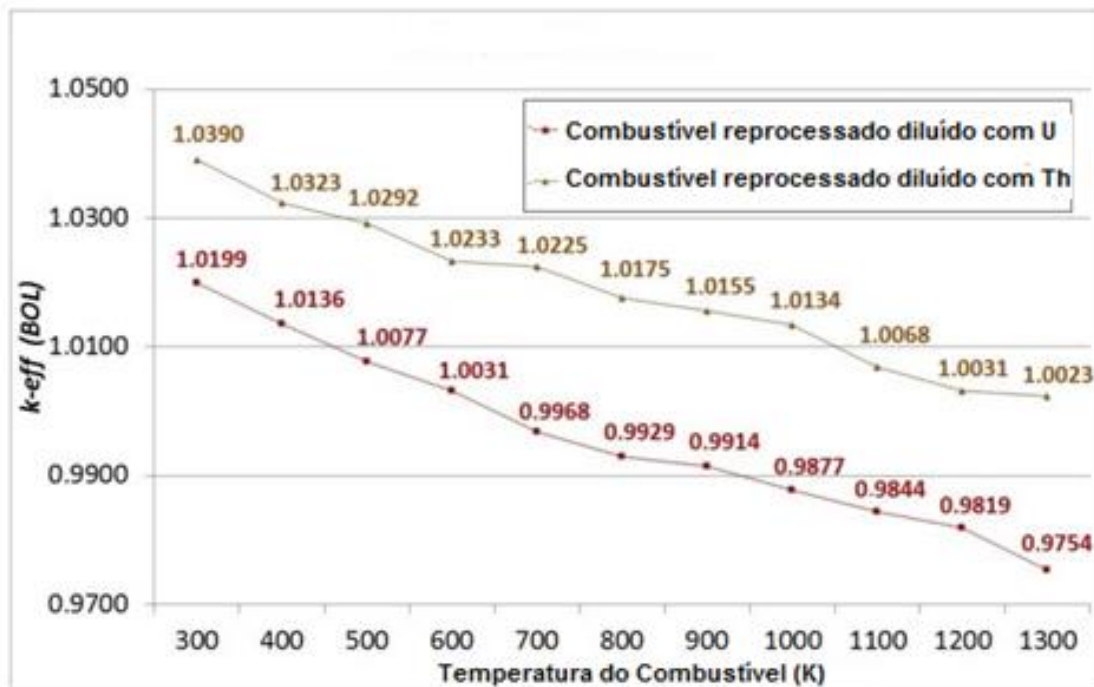


Fig 4.4 – Variação do  $k_{\text{eff}}$  inicial com a temperatura do combustível.

[Sousa 2014<sup>b</sup>]

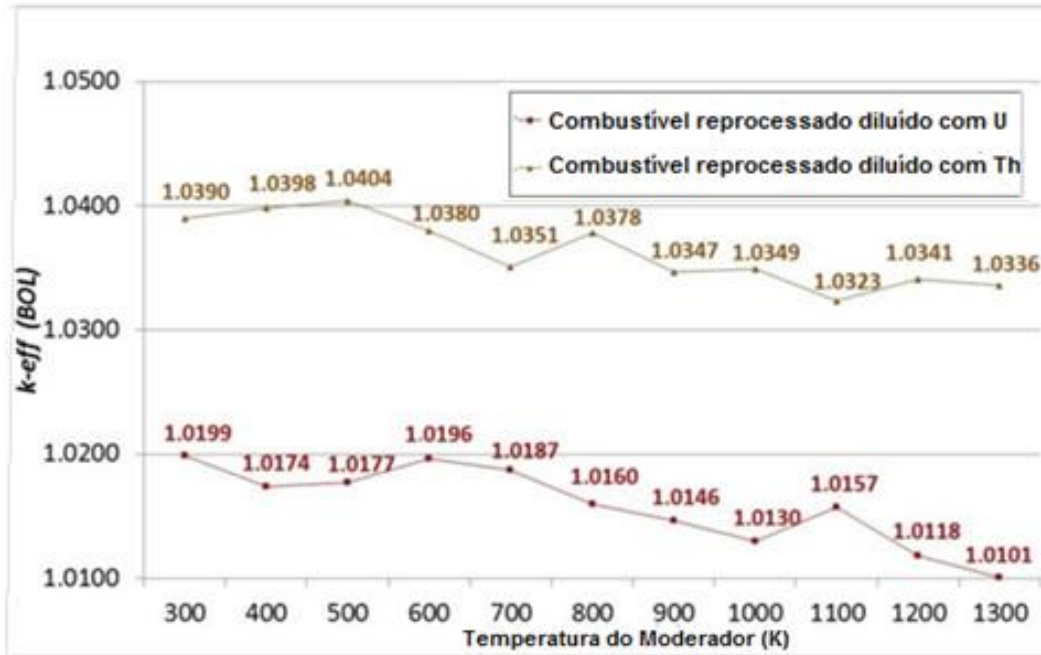


Fig.4.5 – Variação do  $k_{\text{eff}}$  inicial com a temperatura do moderador.

[Sousa 2014<sup>b</sup>]

## 4.2 Estabelecimento das Condições de Trabalho do Reator HTTR

Dando prosseguimento ao trabalho de avaliação do comportamento do reator HTTR na queima de transurânicos, novas simulações foram realizadas utilizando o mesmo modelamento anterior com o código SCALE 6.0.

Na análise dos resultados iniciais, realizados para a temperatura ambiente, dois fatos chamam a atenção:

- Para o mesmo enriquecimento dos combustíveis, o  $k_{\text{eff}}$  inicial está bem abaixo do exibido pelo combustível padrão. De certa forma, este comportamento é esperado, haja vista a presença dos isótopos transurânicos não físséis nos novos combustíveis que atuarão como venenos nestas misturas.

- A variação do  $k_{\text{eff}}$  durante a queima apresenta, para ambas as misturas, uma variação significativamente mais lenta do que a do combustível padrão de  $\text{UO}_2$ .

Os cálculos realizados nos estudos anteriores foram feitos para a temperatura ambiente de 300 K correspondente à do experimento de criticalidade inicial do

*benchmark* realizado no HTTR (Bess 2009, Saito 1991). Uma das grandes vantagens do código SCALE é permitir a definição da temperatura dos diversos materiais do reator. Espera-se que, na temperatura de trabalho do reator, os valores do  $k_{\text{eff}}$  devam diminuir devido às variações nas seções de choque.

Para uma avaliação mais realista do comportamento dos novos combustíveis, os novos cálculos utilizam as seguintes temperaturas de operação típicas de reatores HTGRs [Zhang 2009]:

- temperatura do combustível = 1130 K;
- temperatura do bloco de combustível = 1080 K e
- para outras regiões  $T = 853$  K.

Já que, possivelmente, os próprios actínídeos menores e o tório atuarão como venenos nas misturas com TRUs, as novas simulações não consideram a adição de veneno queimável o que contribuirá para um aumento do fator de multiplicação inicial. No modelo de simulação foi testada a substituição do veneno queimável por grafite ou por hélio.

### **4.3 Condições de Criticalidade do HTTR com Combustíveis TRUs**

Foram realizados cálculos do  $k_{\text{eff}}$  inicial para diferentes graus de enriquecimento dos combustíveis alternativos nas condições descritas acima, quais sejam: temperatura de trabalho e sem adição de veneno queimável. Não foi considerado o limite máximo de 20% de material físsil por tratar-se de uma restrição legal para combustíveis a urânio enriquecido. Nestes cálculos, foi utilizado o módulo CSAS6 com KENO IV do SCALE6.0 com a biblioteca de dados de seções de choque v7-238 que corresponde a uma biblioteca de 238 grupos, colapsada da biblioteca de dados contínua ENDF/B-VII.0. Nestes cálculos foram simuladas 243 gerações de 5000 partículas. O tempo de cálculo para cada  $k_{\text{eff}}$  foi de 6 a 7 horas.+

Os resultados são mostrados na Tabela 4.5 para a substituição do veneno queimável por hélio ou grafite. Nota-se que, entre os dois enchimentos, há uma

diferença na terceira casa decimal do  $k_{eff}$ . Por esta razão, as queimas serão analisadas apenas com a substituição do veneno queimável por grafite.

Tabela 4.5 – Variação do  $k_{eff}$  inicial com a fração físsil do combustível nas condições de trabalho.

% físsil	$k_{eff}$ diluição com Th		$k_{eff}$ diluição com U empobrecido	
	Substituição do veneno		Substituição do veneno	
	Grafite	He	Grafite	He
11,1	1,03322 ± 0,00063	1,03324 ± 0,00060	1,00333 ± 0,00067	1,00060 ± 0,00064
16,1	1,03767 ± 0,00062	1,03733 ± 0,00064	1,00949 ± 0,00056	1,00784 ± 0,00075
26,1	1,06309 ± 0,00063	1,06233 ± 0,00072	1,03834 ± 0,00055	1,03631 ± 0,00079
36,1	1,09686 ± 0,00057	1,09597 ± 0,00053	1,07200 ± 0,00059	1,07248 ± 0,00068
46,1	1,12964 ± 0,00061	1,12875 ± 0,00074	1,11430 ± 0,00063	1,11359 ± 0,00053
56,1	1,17277 ± 0,00058	1,17349 ± 0,00054	1,16171 ± 0,00058	1,16033 ± 0,00049
58,6	1,18433 ± 0,00056	1,18546 ± 0,00056	1,17434 ± 0,00061	1,17288 ± 0,00056
	Combustível UO <sub>2</sub>			
6,1%	1,23320 ± 0,00066	1,23360 ± 0,00070		

Com a composição de TRUs considerada neste estudo, a maior fração físsil possível, preservando o perfil da distribuição de enriquecimentos do núcleo do projeto original, é de 58,6% médio e o maior valor inicial do coeficiente de multiplicação efetivo inicial é de cerca de 1,18 para a diluição com Th e 1,17 para a diluição com U empobrecido.

A Fig 4.6 mostra a variação do  $k_{\text{eff}}$  inicial para o caso do veneno queimável sendo substituído por grafite. Com a mesma fração físsil, o  $k_{\text{eff}}$  para as misturas com urânio são inferiores ao das misturas com Th.

Como pode ser verificado no exemplo da Tabela 4.4, a diferença fundamental em termos de composição entre as duas misturas alternativas é a presença de  $^{232}\text{Th}$  ou  $^{238}\text{U}$  cujos percentuais em massa são muito próximos para a mesma fração físsil na mistura. Os outros isótopos também comparecem em percentuais muito próximos, a exceção do  $^{235}\text{U}$  que não está presente nas misturas com Th e cuja pequena fração nas misturas com U empobrecido é compensada por uma fração ligeiramente menor dos outros actínídeos.

A absorção de nêutrons nas ressonâncias para o  $^{238}\text{U}$  é maior que para o  $^{232}\text{Th}$ , sendo esta a principal causa que explica o menor fator de multiplicação efetivo das misturas com U empobrecido em comparação à mistura com Th com o mesmo percentual físsil.

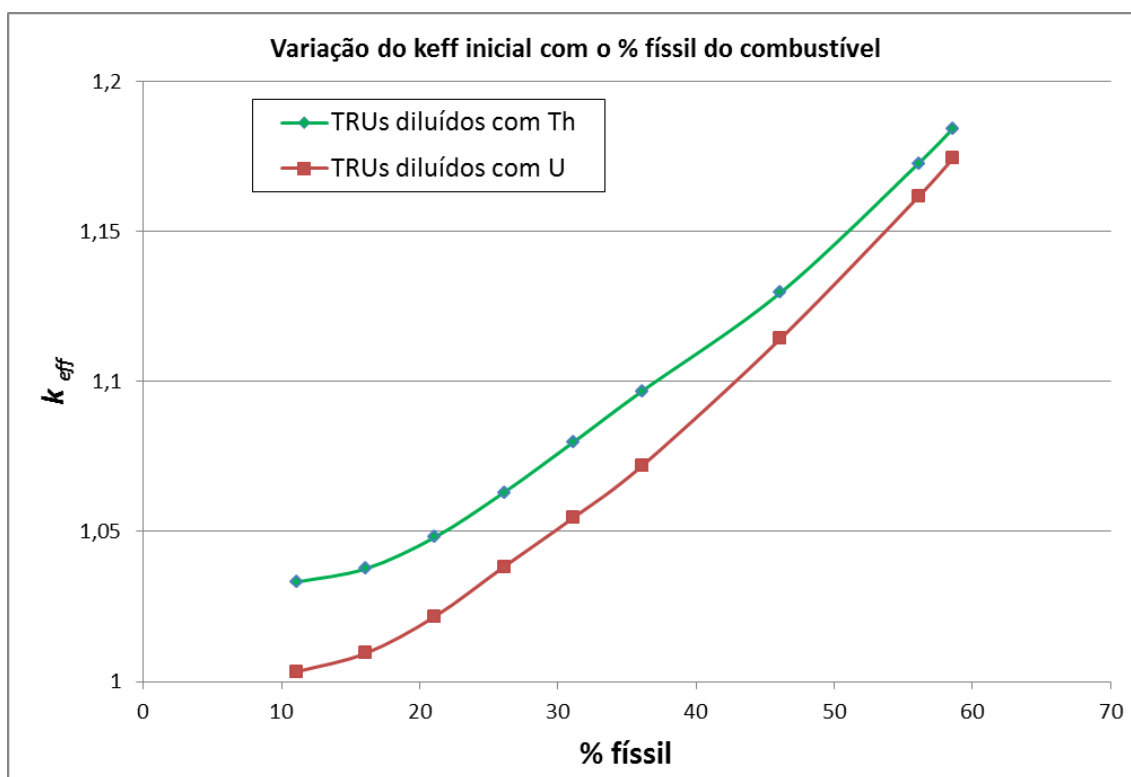


Fig.4.6 – Variação do  $k_{\text{eff}}$  inicial com a fração físsil dos combustíveis TRUs.

#### 4.4 Queima dos Combustíveis Transurânicos no HTTR

Prosseguindo o estudo, foi simulada a queima dos dois combustíveis alternativos para diferentes composições iniciais selecionadas. Foram utilizadas as mesmas condições de queima do projeto original do HTTR: potência de 33,3 MW<sub>th</sub>/tMP durante 660 dias, correspondendo a um *burnup* de 22 GWd/tMP.

Nestes cálculos de queima, foi utilizado o módulo T6-DEPL do TRITON com KENO-VI / ORIGEN-S e biblioteca de dados de seções de choque v7-238. Foram simuladas 243 gerações de partículas. Nos primeiros cálculos foram utilizadas 5000 partículas com um tempo de cálculo de 3 a 4 dias para cada queima. O número de partículas foi reduzido para 1000 resultando numa redução para entre 17 a 20 horas no tempo de computação e às custas de maior desvio relativo nos resultados o qual é proporcional ao inverso da raiz quadrada do número de partículas.

No método de cálculo utilizado pelo módulo TRITON a queima é dividida em intervalos de tempo. Para cada intervalo são determinados o fluxo de nêutrons e o  $k_{eff}$  médios. O fluxo médio é utilizado para determinar a nova composição do combustível ao final do intervalo. Nestes estudos a queima foi dividida em 10 intervalos de 66 dias.

Nas figuras seguintes, o combustível é identificado pelo material de diluição (Th ou U) seguido da fração físsil média.

Os resultados das simulações realizadas estão mostrados na Fig 4.7 onde foi lançada também a queima do combustível padrão original do HTTR calculada sem os venenos queimáveis. A queima da mistura com tório com fração físsil de 16,1% atinge a subcriticalidade em cerca de 400 dias.

Os resultados confirmam a tendência da lenta variação do  $k_{eff}$  durante a queima apresentada pelos combustíveis com TRUs, sendo que, na mistura com urânio empobrecido, a variação é ligeiramente mais lenta que na mistura com tório.



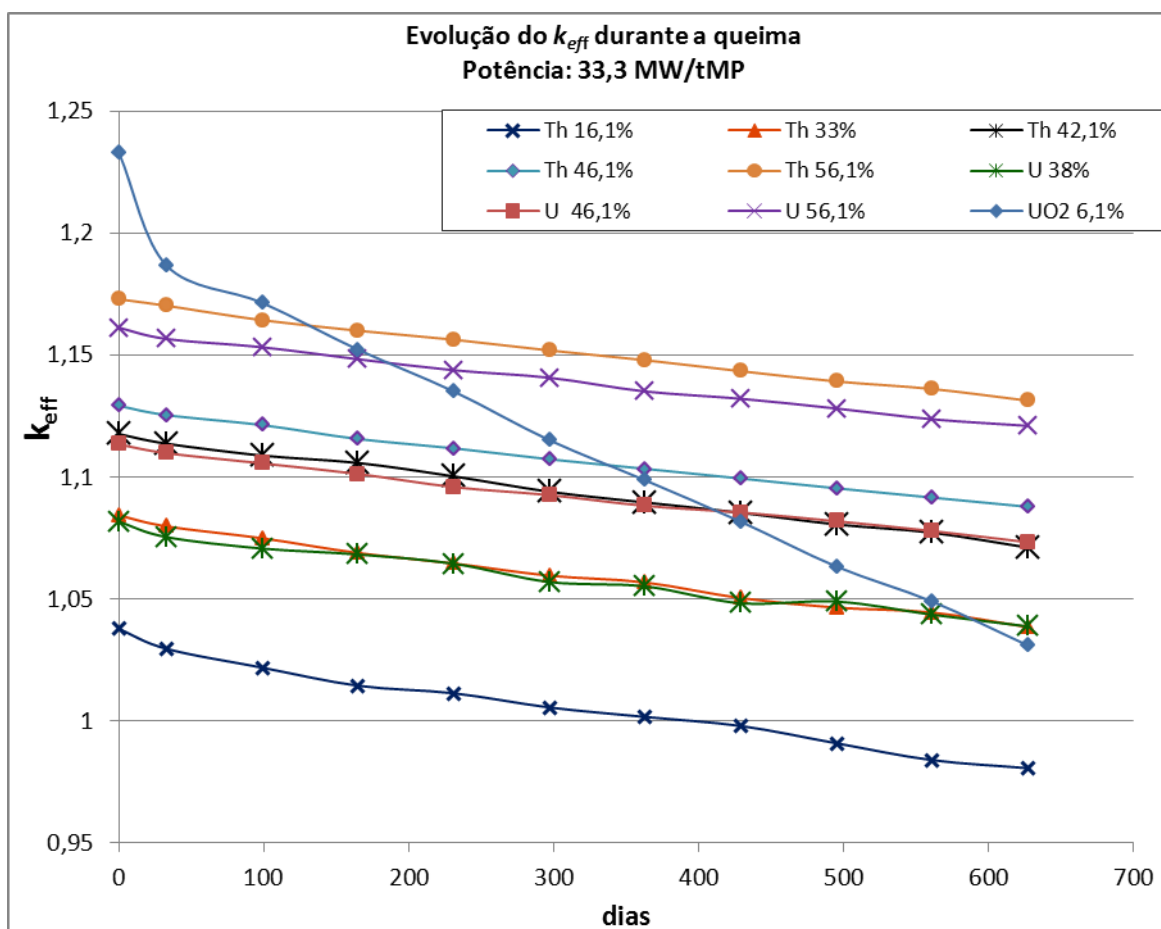


Fig. 4.7 Evolução do  $k_{eff}$  durante a queima à potência de 33,3 MW<sub>th</sub>/tMP.

A variação suave do  $k_{eff}$  com os combustíveis a transurânicos é devida à conjunção de vários fatores, sendo que as principais se devem à combinação das transformações sofridas pelos isótopos do Pu. Na fração em massa dos transurânicos (tabela 4.3) os maiores componentes são o  $^{239}\text{Pu}$  (50,9%), o  $^{240}\text{Pu}$  (21,3%), o  $^{241}\text{Pu}$  (11,5%) e o  $^{242}\text{Pu}$  (6,07%). Durante a queima, o  $^{241}\text{Pu}$  está sendo produzido a partir do  $^{240}\text{Pu}$  que, além da alta concentração, tem uma grande seção de choque de absorção, compensando em grande parte a queima do  $^{241}\text{Pu}$ . O  $^{239}\text{Pu}$  também é produzido, embora em menor quantidade, por captura no  $^{238}\text{Pu}$ . As reações de captura no  $^{239}\text{Pu}$  repõem parte do  $^{240}\text{Pu}$  que, juntamente com os actínídeos menores com alta seção de choque de absorção, funciona como veneno queimável e repõe o  $^{241}\text{Pu}$ . Este ciclo contribui para manter a grande estabilidade do fator de multiplicação.

Para a análise mais detalhada da evolução dos combustíveis foram ajustados níveis de enriquecimento de forma a se obter aproximadamente o mesmo  $k_{\text{eff}}$  inicial nos dois combustíveis para que os cálculos de queima partam de um mesmo ponto facilitando as comparações dos combustíveis alternativos. Os pares selecionados foram:

1. diluição em Th com percentual físsil de 33% ( $k_{\text{eff}} = 1,0043$ ) e diluição em U empobrecido com percentual físsil de 38% ( $k_{\text{eff}} = 1,0017$ );
2. diluição em Th com percentual físsil de 42,1% ( $k_{\text{eff}} = 1,1176$ ) e diluição em U empobrecido com percentual físsil de 46,1% ( $k_{\text{eff}} = 1,1141$ ).

Para estes casos foram analisadas, além da evolução do  $k_{\text{eff}}$ , a composição do combustível e a relação  $\phi_R / \phi_T$ , fluxo rápido/fluxo total, no combustível.

Até o limite de tempo de queima estabelecido, o  $k_{\text{eff}}$  tem um comportamento praticamente linear para os dois combustíveis alternativos. Para verificar se há alguma mudança neste comportamento em mais altos *burnups*, foram realizados novos cálculos para maiores potências de operação, mantendo-se o tempo de queima em 660 dias.

A possibilidade de o reator HTTR operar em maiores potências que a de projeto exige um cálculo das condições de transferência de calor e redimensionamento do circuito de refrigeração, o que se encontra fora do escopo deste trabalho, uma vez que estamos investigando apenas o comportamento neutrônico do núcleo.

Considerou-se um aumento da taxa de *burnup* para 100 MW<sub>th</sub>/tMP, que corresponde a um aumento de três vezes na queima (66 GWd/tMP) e para 200 MW<sub>th</sub>/tMP, correspondendo a um aumento de seis vezes na queima (132 MWd/tMP).

A evolução do  $k_{\text{eff}}$  para queimas com potências de 100 MW<sub>th</sub>/tMP e 200 MW<sub>th</sub>/tMP estão mostrados nas Fig. 4.8 e Fig. 4.9 respectivamente. A tendência quase linear na sua evolução foi mantida.

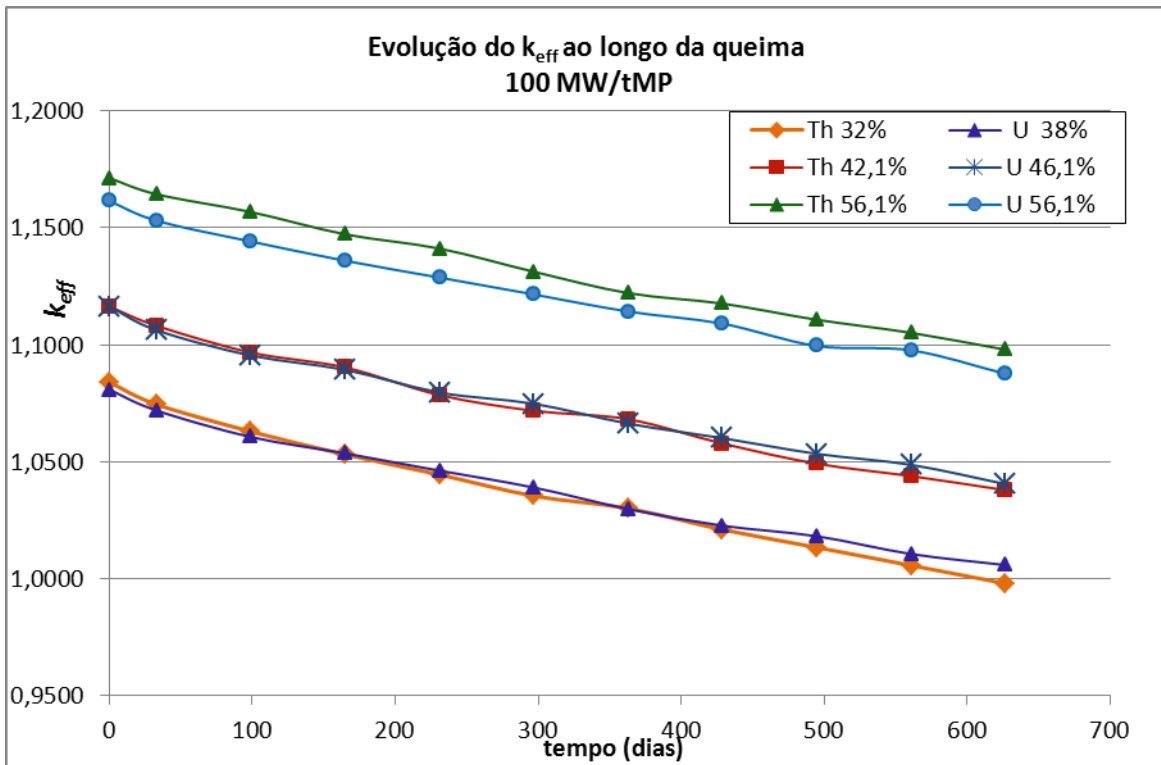


Fig. 4.8 Evolução do  $k_{eff}$  durante a queima a 100 MW<sub>th</sub>/tMP.

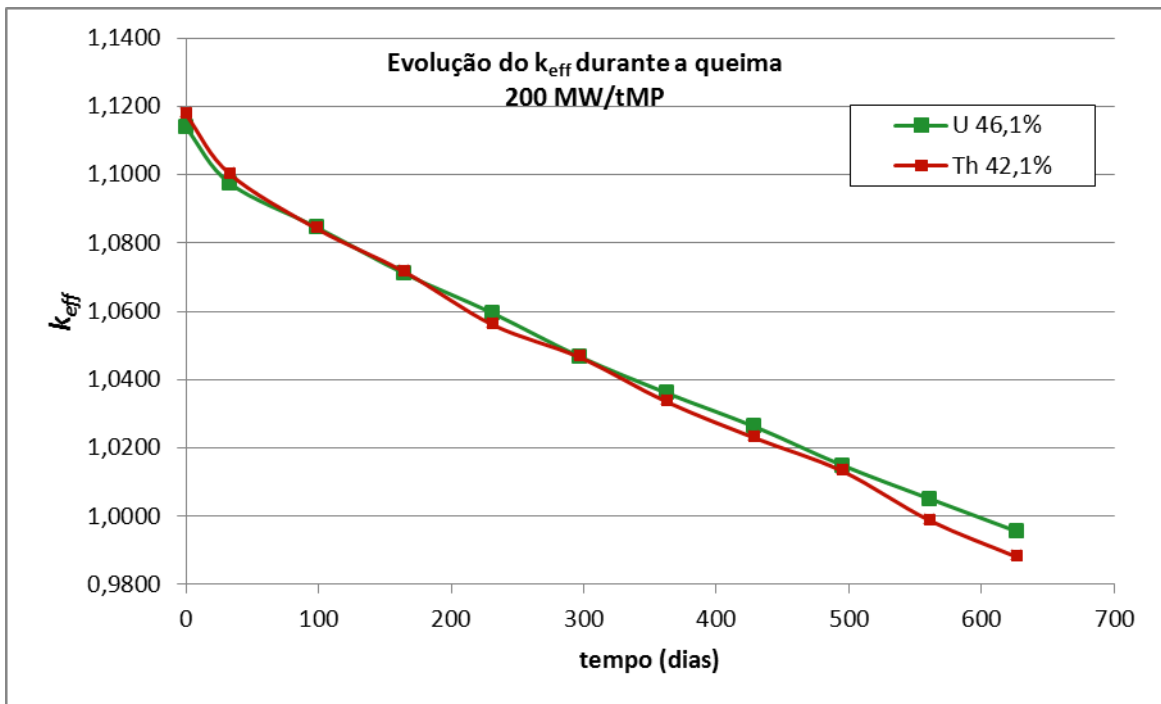


Fig. 4.9 Evolução do  $k_{eff}$  durante a queima com de 200 MW<sub>th</sub>/tMP.

#### 4.5 Evolução da Composição do Combustível Durante a Queima

Os gráficos da Fig 4.10 mostram a variação da massa dos diversos nuclídeos pesados para as queimas dos combustíveis diluídos com Th e U com percentuais físséis de 33% e 38% respectivamente. Estas figuras são representativas das tendências exibidas em todos os outros casos de queima simulados.

O  $^{239}\text{Pu}$ , como maior constituinte físsil da mistura, sofre a maior taxa de consumo. Os outros transurânicos consumidos são o  $^{237}\text{Np}$ , o  $^{241}\text{Pu}$  e o  $^{242}\text{Am}$ . O restante experimenta um aumento de massa durante as queimas simuladas. Os poucos casos em que há exceções estão assinalados na Tabela 4.6 que exhibe a variação da massa dos isótopos individuais ao fim da queima.

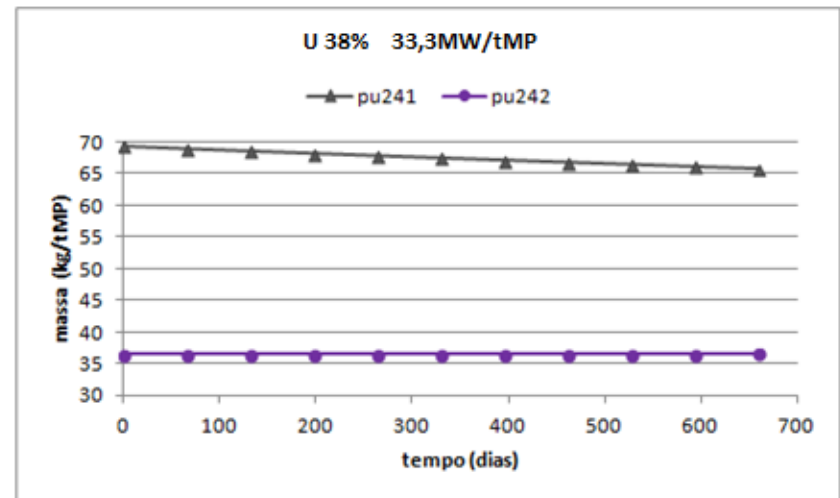
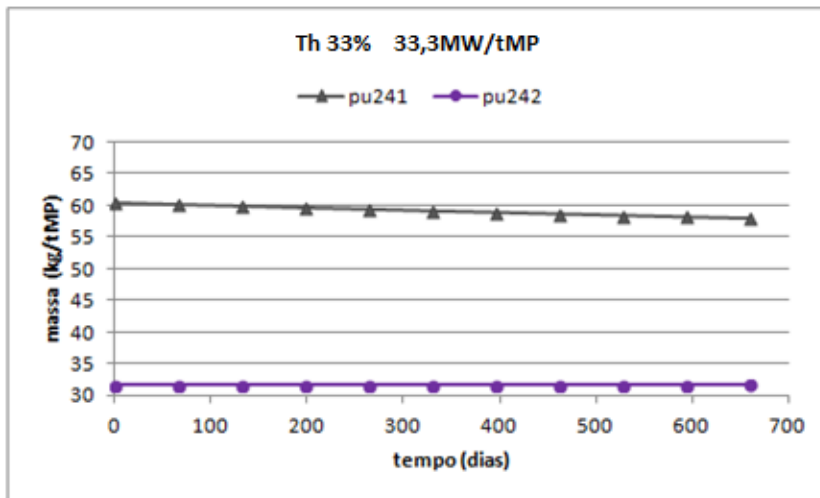
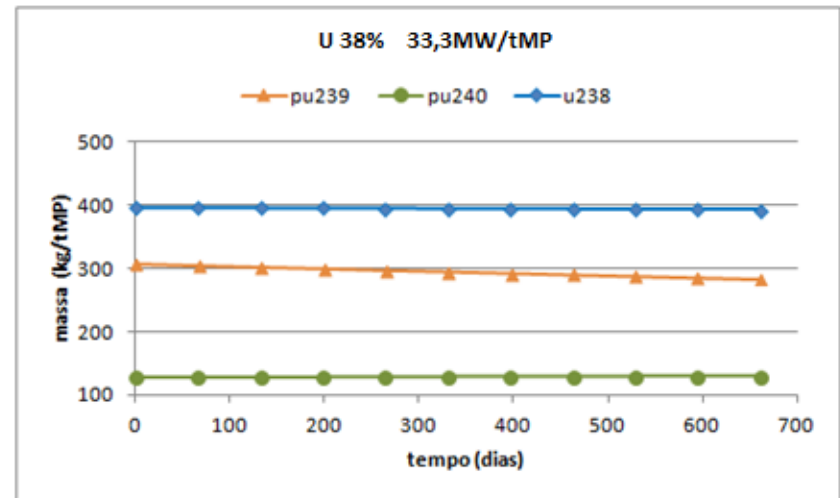
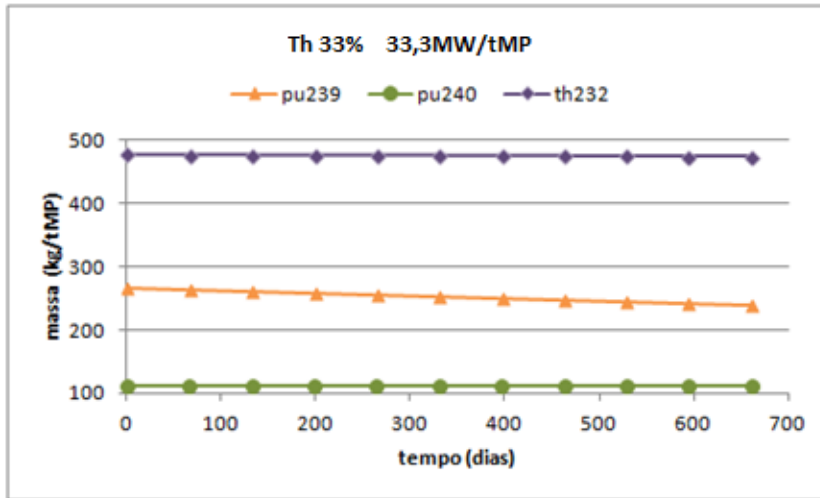


Fig. 4.10 (a) Variação da massa dos isótopos durante a queima (33,3 MW/tMP)

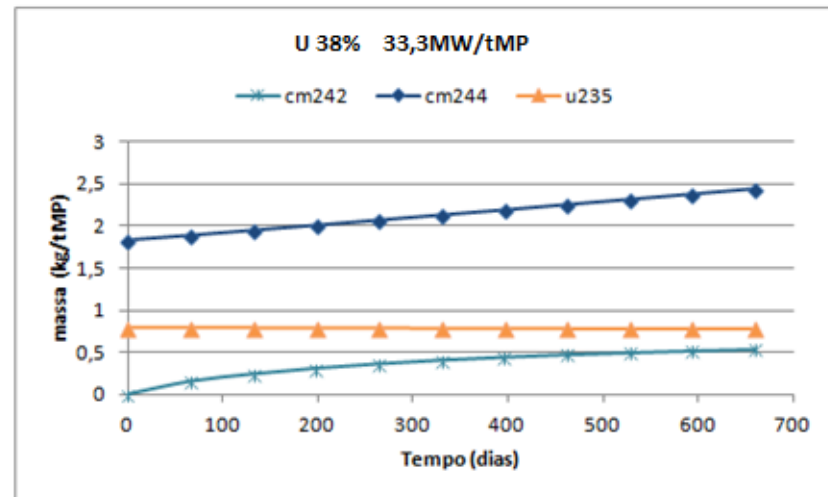
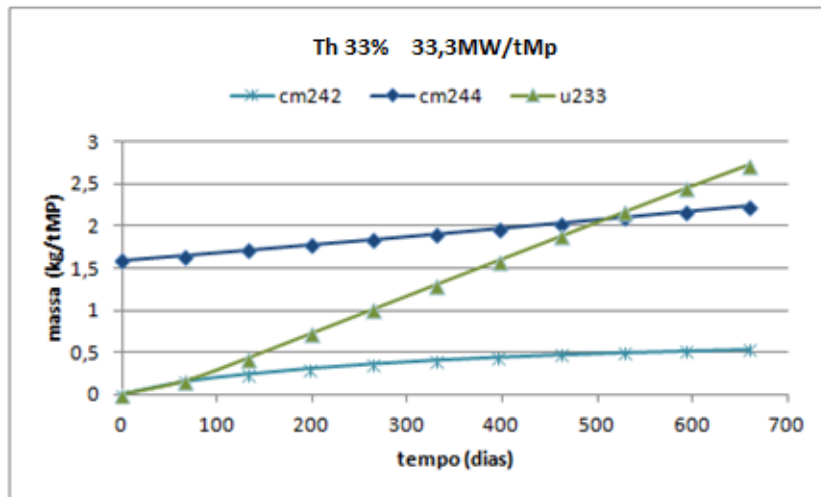
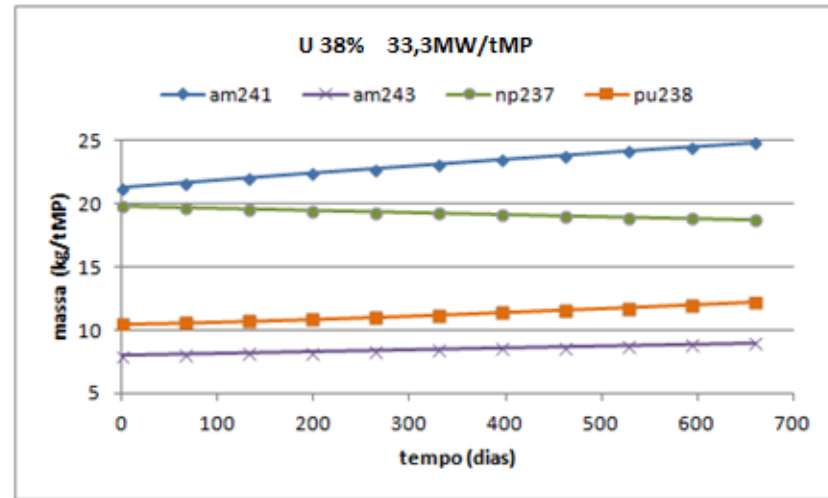
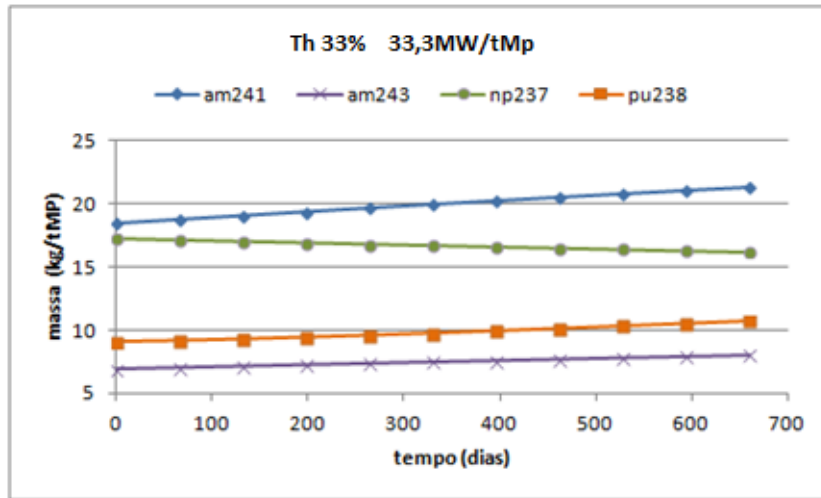


Fig. 4.10 (b) Variação da massa dos isótopos durante a queima (33,3 MW/tMP)

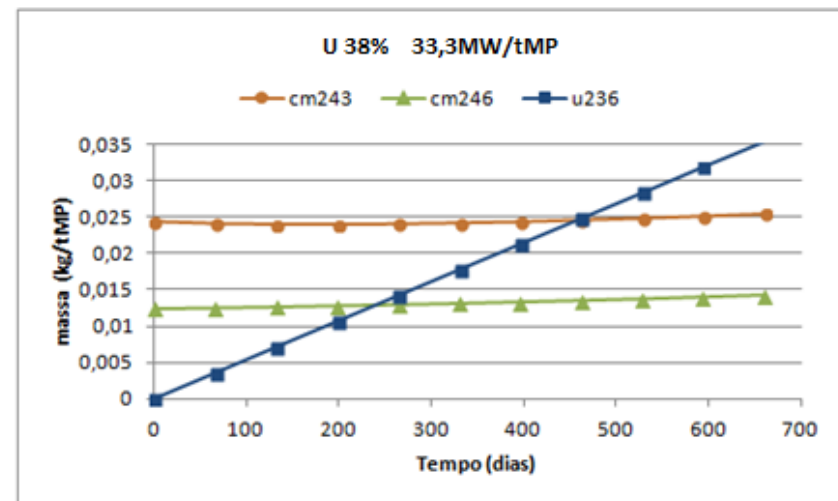
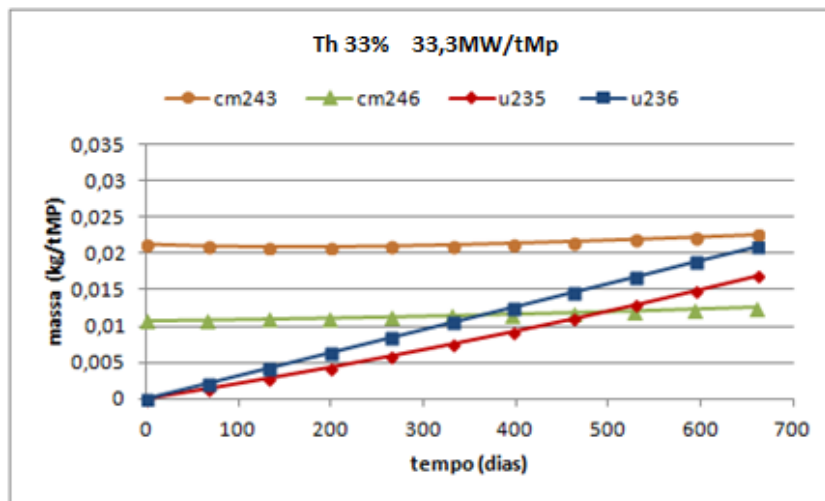
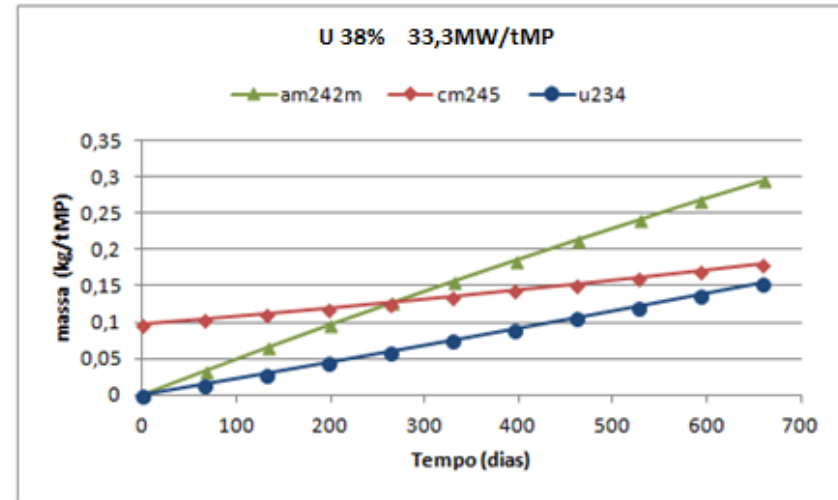
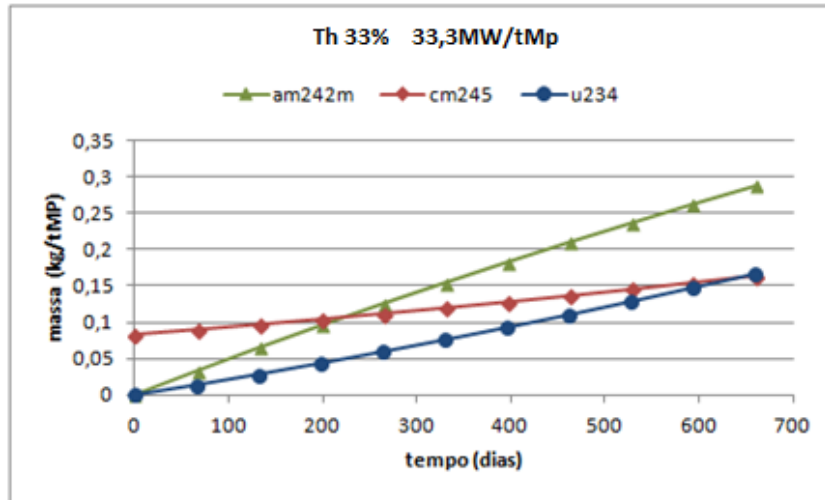


Fig. 4.10 (c) Variação da massa dos isótopos durante a queima (33,3 MW/tMp)

Tabela 4.6- Variação de massa dos nuclídeos pesados após a queima (kg/ tMP)

Potência	33,3 MW/tMP				100 MW/tMP						200 MW/tMP	
	Th		U		Th			U			Th	U
Diluição	33%	42,1%	38%	46,1%	33%	42,1%	56,1%	38%	46,1%	56,1%	42,1%	46,1%
% físsil	33%	42,1%	38%	46,1%	33%	42,1%	56,1%	38%	46,1%	56,1%	42,1%	46,1%
<sup>241</sup> Am	2,820	4,120	3,560	4,720	-1,060	0,000	1,770	-0,420	0,570	1,810	-5,390	-5,010
<sup>242</sup> Am	-0,046	-0,060	-0,054	-0,066	-0,041	-0,055	-0,075	-0,049	-0,061	-0,075	-0,049	-0,054
<sup>242m</sup> Am	0,287	0,308	0,294	0,310	0,519	0,612	0,709	0,578	0,633	0,704	0,687	0,762
<sup>243</sup> Am	1,108	1,069	1,041	1,022	3,051	3,010	2,840	2,937	2,902	2,770	5,410	5,332
<sup>242</sup> Cm	0,542	0,559	0,541	0,554	1,454	1,528	1,596	1,480	1,527	1,585	2,683	2,743
<sup>243</sup> Cm	0,001	0,001	0,001	0,000	0,028	0,026	0,024	0,025	0,026	0,024	0,095	0,094
<sup>244</sup> Cm	0,649	0,652	0,611	0,609	2,446	2,463	2,422	2,267	2,337	2,353	5,621	5,237
<sup>245</sup> Cm	0,081	0,086	0,083	0,087	0,352	0,355	0,353	0,329	0,351	0,350	0,993	0,911
<sup>246</sup> Cm	0,002	0,002	0,002	0,002	0,012	0,011	0,009	0,010	0,010	0,009	0,048	0,037
<sup>237</sup> Np	-1,010	-1,090	-1,040	-1,110	-3,010	-3,310	-3,650	-3,140	-3,390	-3,630	-6,370	-6,560
<sup>238</sup> Pu	1,653	1,730	1,670	1,720	4,653	4,970	5,300	4,780	5,020	5,260	8,830	9,100
<sup>239</sup> Pu	-26,800	-26,600	-22,900	-23,700	-76,200	-76,700	-76,900	-66,400	-68,800	-72,800	-144,100	-132,100
<sup>240</sup> Pu	0,400	0,900	1,000	1,200	-0,900	0,700	2,700	1,600	2,000	3,000	-4,000	0,700
<sup>241</sup> Pu	-2,380	-4,420	-3,560	-5,340	1,470	-1,180	-5,450	-0,080	-2,400	-5,390	1,230	0,290
<sup>242</sup> Pu	0,080	0,090	0,140	0,150	0,600	0,460	0,540	0,630	0,560	0,620	1,650	1,630
<sup>232</sup> Th	-3,100	-2,200	-	-	-9,400	-6,600	-2,400	-	-	-	-13,500	-
<sup>233</sup> U	2,724	1,945	0,000	0,000	7,476	5,389	2,001	0,000	0,000	0,000	9,554	0,000
<sup>234</sup> U	0,167	0,192	0,154	0,186	0,412	0,363	0,302	0,166	0,199	0,238	0,848	0,212
<sup>235</sup> U	0,017	0,021	-0,020	-0,001	0,043	0,039	0,037	-0,087	-0,040	0,008	0,126	-0,091
<sup>236</sup> U	0,021	0,027	0,035	0,036	0,021	0,027	0,036	0,055	0,049	0,043	0,030	0,065
<sup>238</sup> U	0,000	0,000	-4,100	-3,000	0,000	0,000	0,000	-12,300	-9,200	-4,600	0,000	-18,400
<b>Total</b>	-22,785	-22,669	-22,542	-22,621	-68,075	-67,892	-67,836	-67,618	-67,707	-67,721	-135,604	-135,102



Tabela 4.7 Resumo da variação de massa por categorias de nuclídeos após a queima (kg/ tMP)

Potência	33,3 MW/tMP				100 MW/tMP						200 MW/tMP	
Diluição	Th		U		Th			U			Th	U
% físsil	33%	42,1%	38%	46,1%	33%	42,1%	56,1%	38%	46,1%	56,1%	42,1%	46,1%
Massa total	-22,79	-22,67	-22,54	-22,62	-68,08	-67,89	-67,84	-67,62	-67,71	-67,72	-135,60	-135,10
Massa de físséis*	-26,07	-28,66	-26,10	-28,64	-66,31	-71,46	-79,23	-65,63	-70,23	-77,10	-131,42	-130,13
Massa de não físséis	3,28	5,99	3,56	6,02	-1,76	3,57	11,39	-1,98	2,52	9,38	-4,19	-4,97
<b>Por elemento (metais pesados)</b>												
Am	1,35	1,32	1,28	1,27	3,53	3,57	3,47	3,47	3,47	3,40	6,05	6,04
Cm	1,27	1,30	1,24	1,25	4,29	4,38	4,40	4,11	4,25	4,32	9,44	9,02
Np	-1,01	-1,09	-1,04	-1,11	-3,01	-3,31	-3,65	-3,14	-3,39	-3,63	-6,37	-6,56
Pu	-27,05	-28,30	-23,65	-25,97	-70,38	-71,75	-73,81	-59,47	-63,62	-69,31	-136,39	-120,38
Th	-3,10	-2,20	-	-	-9,40	-6,60	-2,40	-	-	-	-13,50	
U	2,93	2,18	-3,93	-2,78	7,95	5,82	2,38	-12,17	-8,99	-4,31	10,56	-18,21
<b>Transurânicos</b>												
AM	1,61	1,53	1,48	1,41	4,81	4,64	4,23	4,44	4,34	4,09	9,12	8,50
Pu+ AM	-25,43	-26,77	-22,17	-24,56	-65,57	-67,11	-69,58	-55,03	-59,28	-65,22	-127,27	-111,88

\*nuclídeos físséis considerados:  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Cm}$ ,  $^{245}\text{Cm}$

Na tabela 4.7 há o resumo da variação de massa para categorias de classificação. A perda de massa total é aproximadamente a mesma para uma mesma potência de operação, como não poderia deixar de ser, pois foi estipulado um tempo de funcionamento de 660 dias a potência constante.

A diferença entre a massa total e a massa de materiais físséis queimadas corresponde à criação de massa de materiais pesados não físséis. Aqui considera-se como físséis o  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{242\text{m}}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Cm}$  e  $^{245}\text{Cm}$ .

Tabela 4.8.- Variação percentual dos TRUs e dos AM

	Th – 33%	U -38%	Th - 42,1%	U -46,1%
33 MW/tMP				
AM	+ 3,6%	+ 2,9%	+ 2,7%	+ 2,4%
Pu + AM	- 4,9%	- 3,7%	- 4,0%	- 3,4%
100 MW/tMP				
AM	+ 9,4%	+ 8,6%	+ 8,2%	+ 7,5%
Pu + AM	- 12,5%	- 9,1%	- 10,0%	- 8,2%
200 MW/tMP				
AM	-	-	+ 6,6%	+ 5,6%
Pu + AM	-	-	- 19,8%	- 16,0%

Comparando pares de combustíveis com o mesmo  $k_{\text{eff}}$  inicial (Th–33% com U-38% e Th-42,1% com U-46,1%) para as mesmas potências nota-se alguns fatos sobre o comportamento dos combustíveis:

- A massa físsil inicial destruída e a criação de massa não físsil são comparáveis para o mesmo  $k_{\text{eff}}$  inicial.
- Nas misturas com tório há maior criação de amerício e cúrio e menor destruição de netúnio resultando em maior criação de actínídeos menores que nas misturas com urânio.
- A destruição de plutônio é consideravelmente menor nas misturas com urânio que com tório.
- A destruição total de TRUs é maior nas misturas com tório.

As variações percentuais observadas são resumidas na tabela 4.8.

Em vista do comportamento observado do keff das misturas, pode-se inferir que, para um mesmo conteúdo físsil inicial, o keff das misturas com Th situa-se acima do das misturas com U. Portanto, a diluição com Th proporcionará maior extensão da queima. Deste modo, a diluição com Th produzirá maior redução na quantidade total de Pu e de TRUs tanto em termos absolutos quanto percentuais. Pode-se concluir que a diluição com Th proporciona melhor aproveitamento dos recursos naturais, produzindo mais energia para a mesma quantidade inicial de TRUs.

Cumpra observar que as conclusões acima se aplicam às condições de queima estabelecidas para este trabalho e não devem ser generalizadas sem um estudo de otimização.

#### 4.6 Coeficiente de Temperatura do Combustível

A avaliação das condições de segurança de funcionamento do reator exige que seja analisada a variação na reatividade do reator devido a variação em alguma condição de funcionamento. Dentre estas, a resposta à variação na temperatura é a primeira condição a ser analisada por sua influência nas condições dinâmicas do reator.

O coeficiente de temperatura da reatividade,  $\alpha_T$ , mede a resposta da reatividade à mudança na temperatura e deve ser negativo durante toda a queima, garantindo a estabilidade na potência do reator.

O coeficiente de temperatura da reatividade pode ser avaliado através da equação:

$$\alpha_T = \frac{\Delta\rho}{\Delta T} = \frac{1}{\Delta T} \left[ \frac{(k_2 - k_1)}{k_2 \cdot k_1} \right] \quad (4.1)$$

onde ( $\Delta\rho$ ) é a variação na reatividade,  $k_1$  o coeficiente de multiplicação na temperatura de trabalho e  $k_2$  o coeficiente de multiplicação na nova temperatura.

Neste trabalho, o coeficiente de temperatura do combustível foi calculado com a equação (4.5.1) a partir de simulações da queima do combustível à temperatura de trabalho (1130 K) e nas temperaturas de 1230 K e 1030 K. Estas simulações foram realizadas para todos os casos estudados que apresentaram comportamento geral muito similar de acordo com as observações que serão feitas a seguir. Dois exemplos de casos são mostrados nas figuras Fig. 4.11, Fig.4.12, Fig. 4.13 e Fig. 4.14.

Nos resultados do cálculo, o  $k_{\text{eff}}$  permaneceu sempre negativo porém com uma grande dispersão dos dados. A justificativa para esta dispersão encontra-se no método estocástico utilizado pelo código KENO para os cálculos de criticidade. A precisão dos resultados é dependente do número de histórias de nêutrons utilizado. Devido ao tempo de execução dos cálculos nas máquinas de que dispomos, foi necessário reduzir o número de partículas e a consequência foi um maior desvio no valor do  $k_{\text{eff}}$  e, portanto, maior dispersão nos coeficientes de temperatura calculados. Um exame dos gráficos de evolução do  $k_{\text{eff}}$  durante a queima nas diferentes temperaturas demonstra a tendência de aumento no  $k_{\text{eff}}$  com a diminuição de temperatura, continuando, porém, negativo até o final da queima fixada (660 dias). A extrapolação desta tendência leva a crer que, para um tempo de queima maior, o coeficiente de temperatura do combustível deve tornar-se positivo.

A tendência de variação no valor absoluto do coeficiente de temperatura do combustível é de diminuição na direção do aumento da queima.

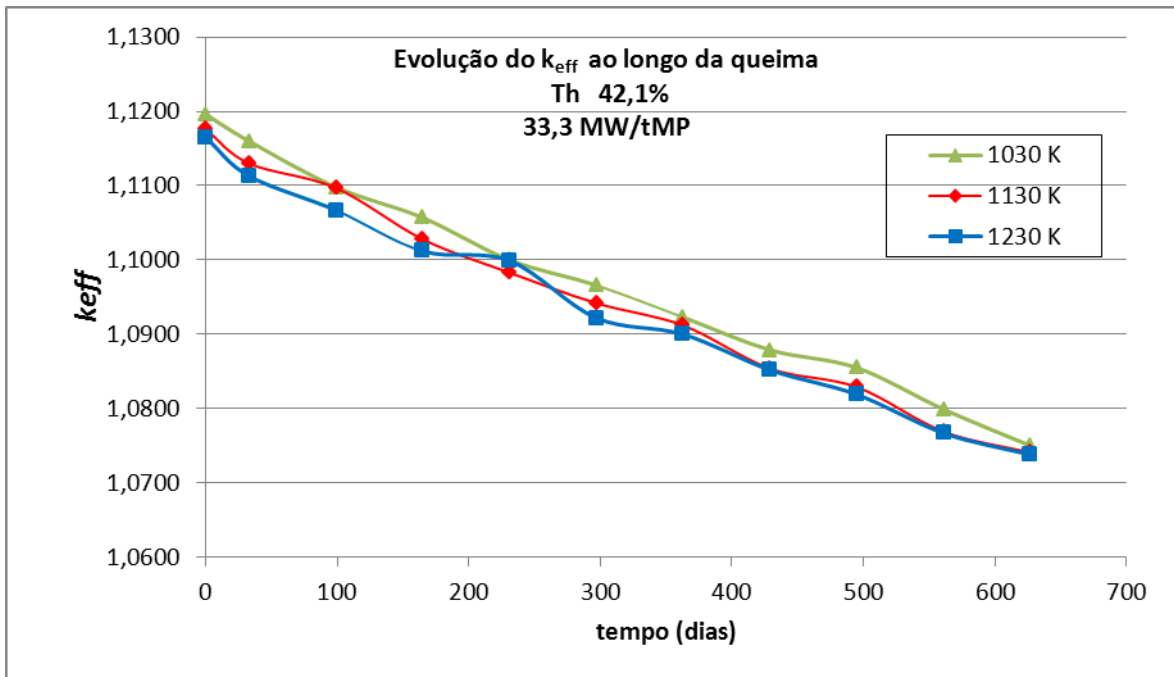


Fig. 4.11 Comparação do  $k_{eff}$  ao longo da queima para variações na temperatura do combustível (33,3 MW/tMP)

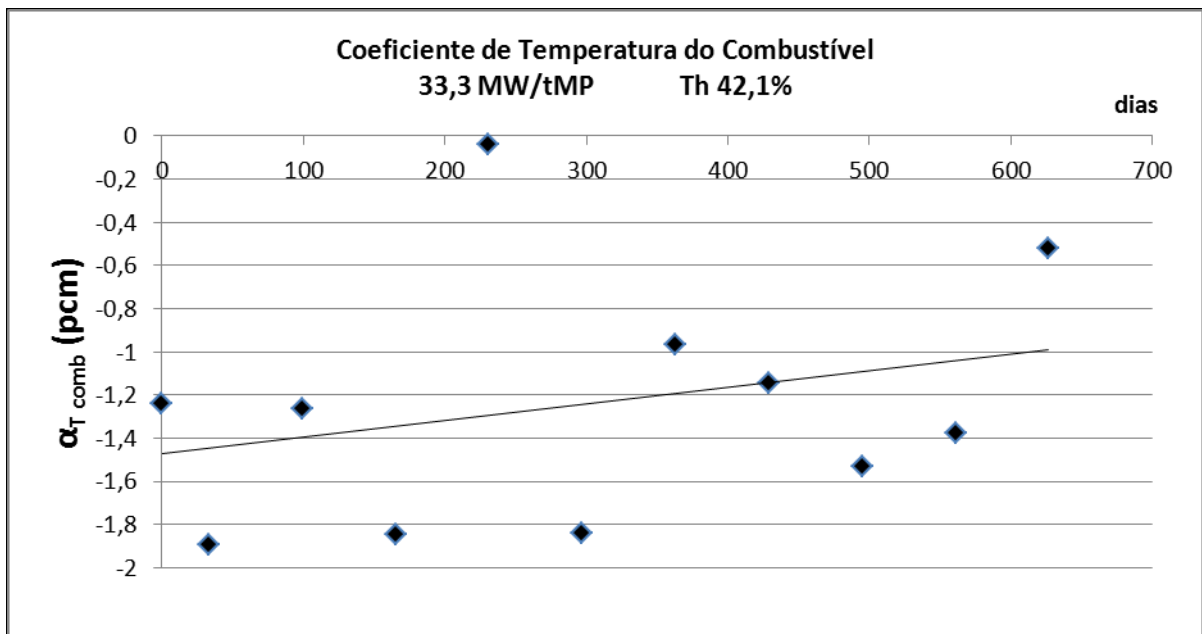


Fig. 4.12 Coeficiente de temperatura do combustível em  $T=1130\text{K}$  (33,3 MW/tMP)

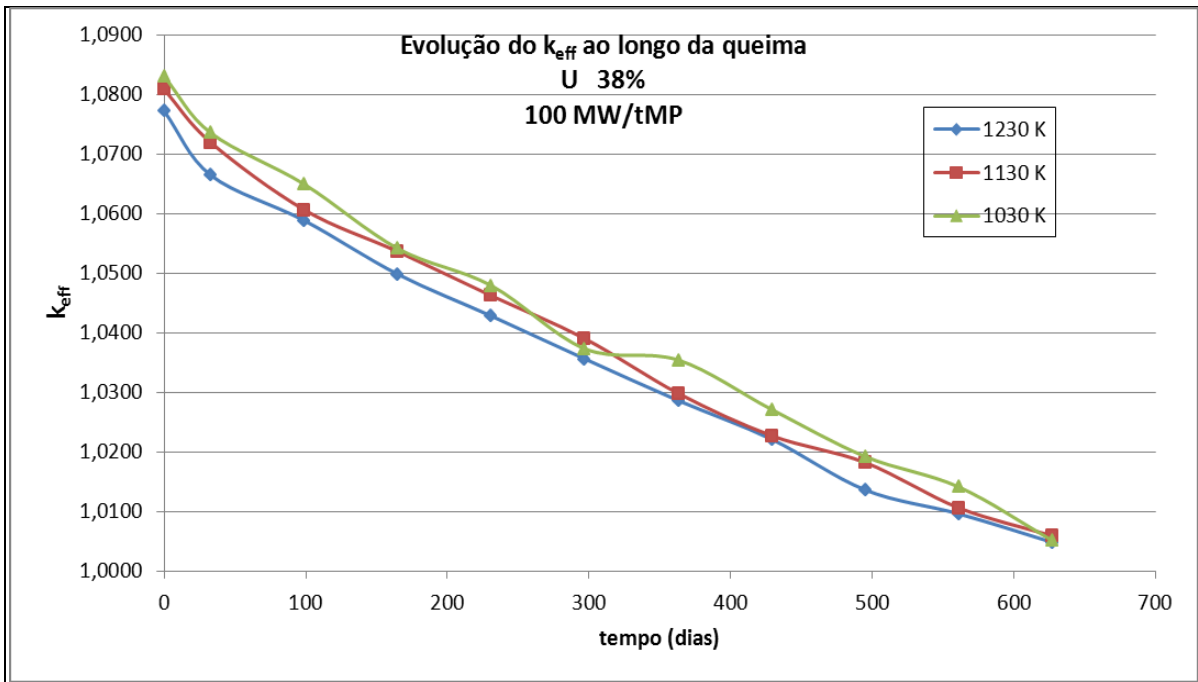


Fig. 4.13 Comparação do  $k_{eff}$  ao longo da queima para variações na temperatura do combustível (100 MW/tMP)

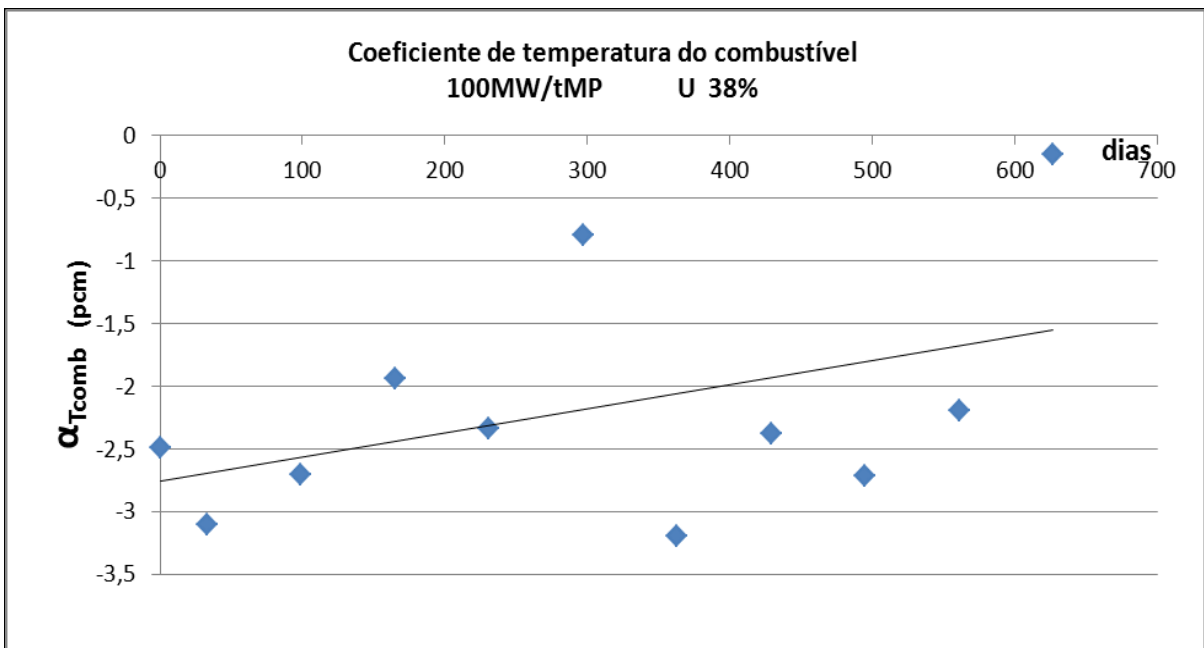


Fig. 4.14 Coeficiente de temperatura do combustível em  $T=1130$  K (100MW/tMP)

#### 4.7 Perfil do Fluxo de Nêutrons no Combustível

A razão  $\phi_R/\phi_T$ , fluxo rápido/fluxo total é uma medida do grau de endurecimento do fluxo de nêutrons em um material.

A evolução ao longo da queima do fluxo térmico e do fluxo total de nêutrons foi fornecida pelo código SCALE 6.0 para cada uma das 12 misturas de combustível com diferentes graus de enriquecimento que compõem o arranjo do núcleo do reator HTTR. A partir destes dados foi possível calcular a razão  $\phi_R/\phi_T$ , fluxo rápido/fluxo total no combustível. Os valores médios dos fluxos foram obtidos através da média do fluxo em todas as misturas ponderados pelo volume que cada uma ocupa no núcleo.

Exemplos do comportamento geral da razão  $\phi_R/\phi_T$  na mistura combustível são mostrados nas figuras Fig .4.15 e Fig. 4.16.

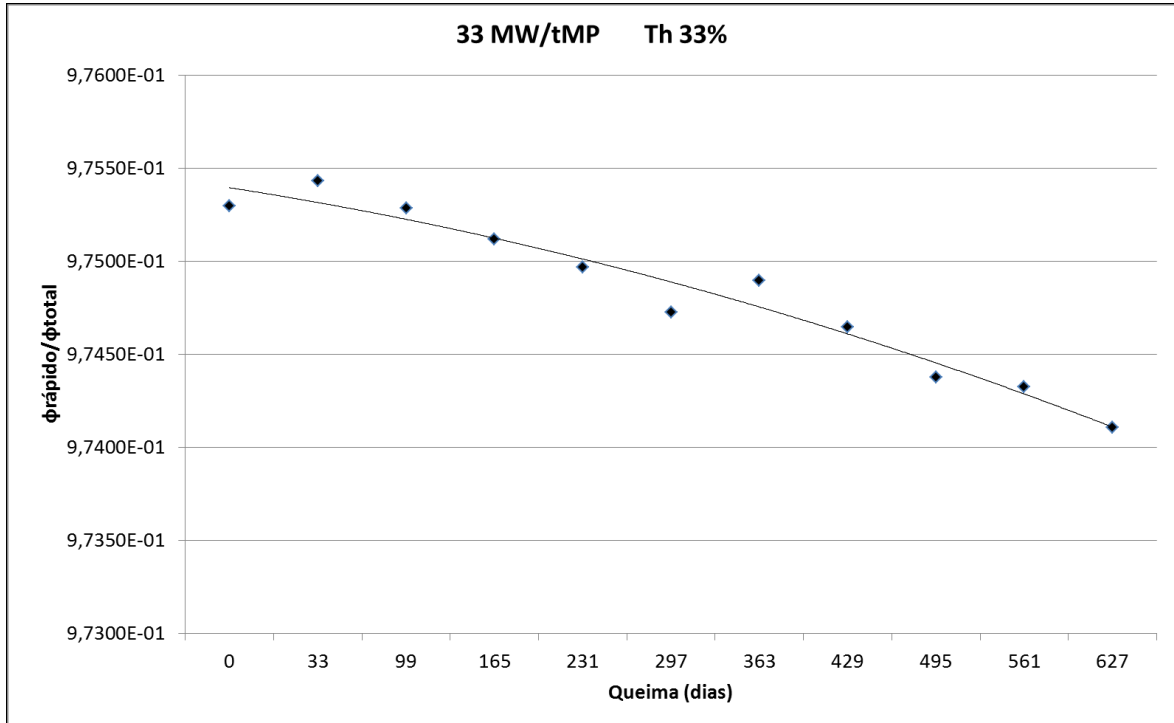


Fig. 4.15 Variação da razão  $\phi_R/\phi_T$  durante a queima (Th)

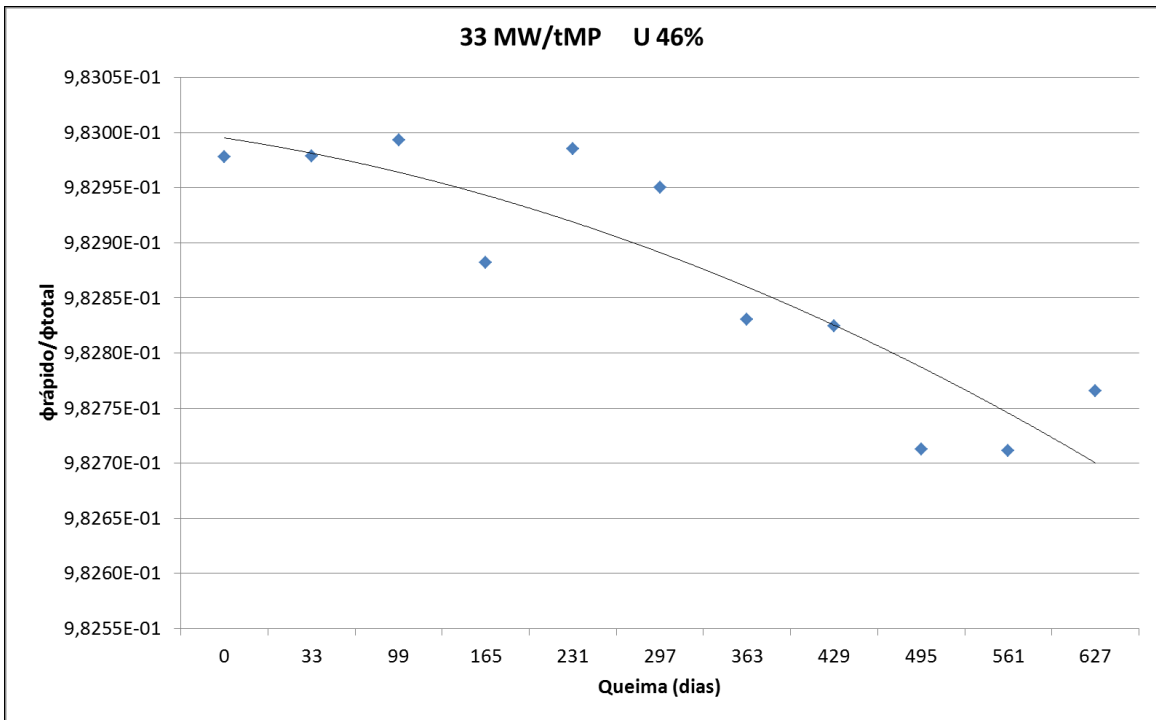


Fig. 4.16 Variação da razão  $\phi_R / \phi_T$  durante a queima (U)

Os valores encontrados para a razão  $\phi_R / \phi_T$  da região do combustível são muito altos, situando-se acima de 97% em todas as simulações. No modelo do HTRR construído no SCALE 6.0, a região do combustível é a mistura homogeneizada do material das partículas TRISO e da grafite do compacto de combustível. Trata-se, portanto, de uma região altamente submoderada. Isótopos transurânicos com alta seção de choque de absorção para nêutrons térmicos, como por exemplo o  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{231}\text{Am}$ , representam fração considerável da composição do combustível e atuam removendo os nêutrons térmicos provenientes do bloco de moderador que entram na mistura, provocando a depressão do fluxo térmico na região do combustível.



#### 4.8 Radiotoxicidade do Combustível Após a Queima

Para efeito da comparação dos dois tipos de combustível estudados no que tange ao possível efeito sobre os seres vivos e também sobre o planejamento dos repositórios, é importante a avaliação da radiotoxicidade no curto, médio e longo prazos.

O código SCALE 6.0, utilizando o programa ORIGEN S, permitiu obter o cálculo da radiotoxicidade por ingestão dos combustíveis, para cada isótopo em particular e em conjunto, durante e após a queima.

Por ter sido desenvolvido pelo Laboratório de Oak Ridge, a unidade utilizada no código ORIGEN-S para a radiotoxicidade por ingestão é “*m<sup>3</sup> de água por tonelada de material*”. Esta unidade é definida como a quantidade de água necessária para diluir uma tonelada do material à máxima concentração permitida para consumo humano de forma contínua (Stacey, 2007). No caso é considerada a máxima concentração permitida definida pelas normas americanas. Nesta base, a radiotoxicidade do urânio natural é de  $1,572 \times 10^7$  m<sup>3</sup>/t [León, 2002].

Os resultados da radiotoxicidade após a queima para os produtos de fissão e os actínídeos é mostrado na Tabela 4.9.

Pode-se utilizar como referência na avaliação do significado de determinada quantidade de radiotoxicidade de um combustível aquela da quantidade de urânio natural (ou tório) que foi utilizada para produzi-lo. Estimamos que a quantidade média de urânio natural necessária para produzir 1 tonelada dos combustíveis simulados é de cerca de 300 toneladas de urânio natural correspondentes a uma radiotoxicidade de aproximadamente  $5 \times 10^9$  m<sup>3</sup>/t.

Tabela 4.9 Radiotoxicidade por ingestão do rejeito após a queima (m<sup>3</sup> de água/ tMP)

Combustível	Potência MW/tMP		Tempo de Decaimento (anos)											
			0	1	10	30	100	500	1000	5000	10000	30000	50000	100000
Th 33 %	33	Prod. fissão	4,3E+12	3,7E+11	7,3E+10	4,5E+10	8,5E+09	1,8E+06	8,4E+05	8,2E+05	8,1E+05	7,7E+05	7,3E+05	6,5E+05
		Actínídeos	6,8E+12	6,1E+12	5,8E+12	5,3E+12	4,2E+12	2,0E+12	1,1E+12	4,0E+11	2,9E+11	1,1E+11	5,7E+10	1,9E+10
Th 33 %	100	Prod. fissão	1,3E+13	1,1E+12	2,2E+11	1,3E+11	2,5E+10	4,9E+06	2,4E+06	2,4E+06	2,3E+06	2,2E+06	2,1E+06	1,9E+06
		Actínídeos	9,1E+12	7,1E+12	6,4E+12	5,8E+12	4,4E+12	2,0E+12	1,1E+12	3,6E+11	2,5E+11	9,1E+10	4,8E+10	1,8E+10
Th 42,1%	33	Prod. fissão	4,3E+12	3,7E+11	7,3E+10	4,5E+10	8,5E+09	1,8E+06	8,4E+05	8,3E+05	8,2E+05	7,7E+05	7,4E+05	6,5E+05
		Actínídeos	8,3E+12	7,7E+12	7,3E+12	6,7E+12	5,3E+12	2,5E+12	1,5E+12	5,1E+11	3,7E+11	1,4E+11	7,4E+10	2,4E+10
Th 42,1%	100	Prod. fissão	1,3E+13	1,1E+12	2,2E+11	1,3E+11	2,5E+10	5,0E+06	2,5E+06	2,4E+06	2,4E+06	2,3E+06	2,1E+06	1,9E+06
		Actínídeos	1,1E+13	8,7E+12	7,9E+12	7,2E+12	5,5E+12	2,5E+12	1,4E+12	4,8E+11	3,4E+11	1,2E+11	6,5E+10	2,3E+10
Th 42,1%	200	Prod. fissão	2,6E+13	2,3E+12	4,4E+11	2,7E+11	5,1E+10	9,3E+06	4,7E+06	4,6E+06	4,6E+06	4,3E+06	4,1E+06	3,6E+06
		Actínídeos	1,4E+13	1,0E+13	8,8E+12	7,8E+12	5,8E+12	2,5E+12	1,4E+12	4,2E+11	2,9E+11	9,9E+10	5,3E+10	2,2E+10
U 38%	33	Prod. fissão	4,3E+12	3,7E+11	7,3E+10	4,5E+10	8,5E+09	1,8E+06	8,4E+05	8,3E+05	8,2E+05	7,7E+05	7,3E+05	6,5E+05
		Actínídeos	7,6E+12	7,0E+12	6,6E+12	6,1E+12	4,8E+12	2,2E+12	1,3E+12	4,6E+11	3,3E+11	1,3E+11	6,6E+10	2,2E+10
U 38%	100	Prod. fissão	1,3E+13	1,1E+12	2,2E+11	1,3E+11	2,5E+10	5,0E+06	2,4E+06	2,4E+06	2,4E+06	2,2E+06	2,1E+06	1,9E+06
		Actínídeos	9,8E+12	7,9E+12	7,2E+12	6,5E+12	5,0E+12	2,2E+12	1,3E+12	4,2E+11	3,0E+11	1,1E+11	5,7E+10	2,0E+10
U 46,1%	33	Prod. fissão	4,3E+12	3,7E+11	7,3E+10	4,5E+10	8,5E+09	1,8E+06	8,5E+05	8,3E+05	8,2E+05	7,8E+05	7,4E+05	6,6E+05
		Actínídeos	9,0E+12	8,4E+12	7,9E+12	7,3E+12	5,8E+12	2,7E+12	1,6E+12	5,6E+11	4,0E+11	1,5E+11	8,1E+10	2,7E+10
U 46,1%	100	Prod. fissão	1,3E+13	1,1E+12	2,2E+11	1,3E+11	2,5E+10	5,0E+06	2,5E+06	2,4E+06	2,4E+06	2,3E+06	2,1E+06	1,9E+06
		Actínídeos	1,1E+13	9,3E+12	8,5E+12	7,8E+12	6,0E+12	2,7E+12	1,6E+12	5,3E+11	3,7E+11	1,4E+11	7,2E+10	2,5E+10
U 46,1%	200	Prod. fissão	2,6E+13	2,3E+12	4,3E+11	2,7E+11	5,0E+10	9,4E+06	4,7E+06	4,7E+06	4,6E+06	4,3E+06	4,1E+06	3,6E+06
		Actínídeos	1,5E+13	1,1E+13	9,4E+12	8,5E+12	6,3E+12	2,7E+12	1,5E+12	4,7E+11	3,3E+11	1,1E+11	5,9E+10	2,3E+10

#### 4.8.1 Radiotoxicidade dos produtos de fissão

A Fig 4.17 mostra a variação na radiotoxicidade final dos produtos de fissão com a taxa de queima. Nas simulações realizadas, o *burnup* final (MWd/tMP) foi o mesmo para todos os combustíveis a uma mesma taxa de queima. A quase totalidade das fissões se dão nos isótopos físeis do Pu dado a sua predominância na composição do combustível. Consequentemente, a uma dada taxa de queima, o número de fissões, a quantidade de núcleos de produtos de fissão, sua composição e radiotoxicidade são praticamente as mesmas para todos os combustíveis.

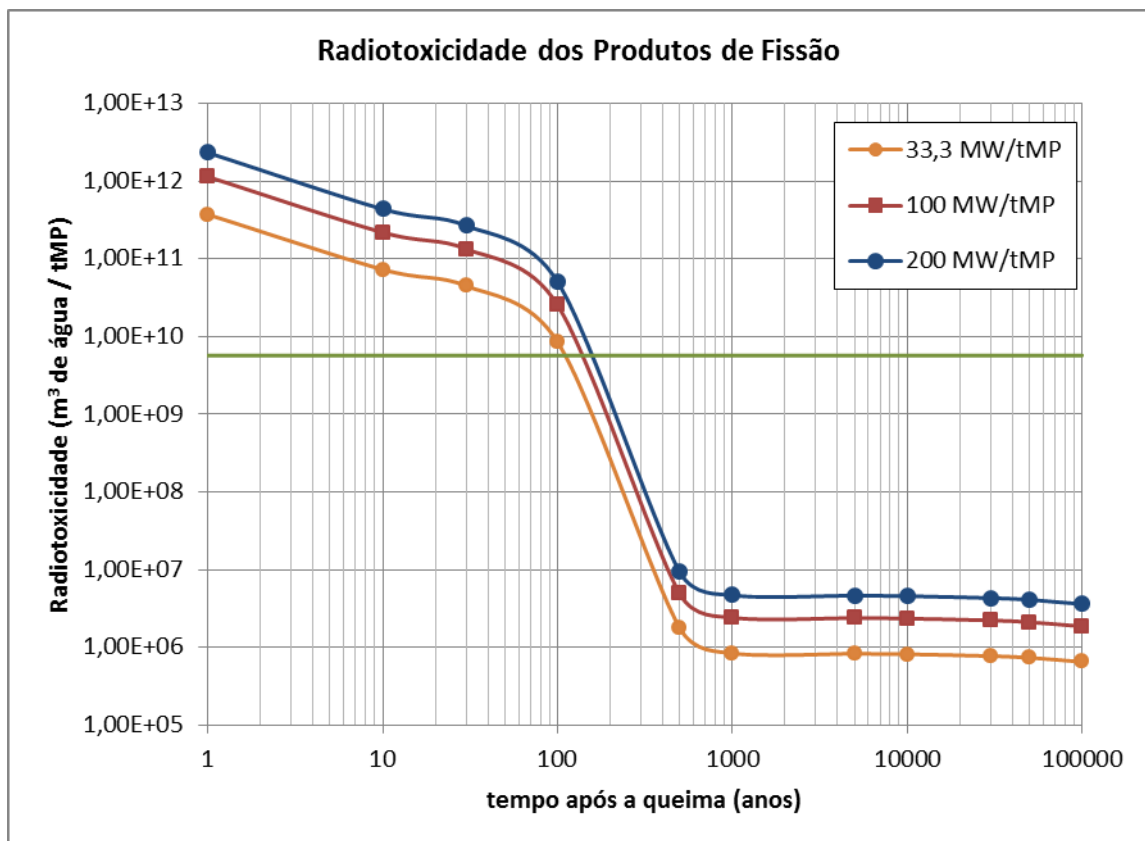


Fig. 4.17 Evolução da radiotoxicidade dos produtos de fissão após a queima

A radiotoxicidade dos produtos de fissão cai abaixo da referência do urânio natural entre 100 e 200 anos.

#### 4.8.2 Radiotoxicidade dos actínídeos

Pelos dados apresentados na tabela 4.9, nota-se que, logo ao final da queima, a radiotoxicidade devida aos actínídeos é da mesma ordem de grandeza daquela dos produtos de fissão mas em 10 anos já é de cerca de duas ordens de grandeza menor. Rapidamente, os actínídeos passam a dominar a radiotoxicidade total do combustível queimado.

As Fig. 4.18 a 4.21 mostram a evolução da radiotoxicidade do combustível queimado devida aos actínídeos para os combustíveis diluídos com Th e com U empobrecido respectivamente.

A influência da extensão da queima é mostrada nas figuras 4.18 e 4.19 para os combustíveis diluídos com Th e com U empobrecido respectivamente.

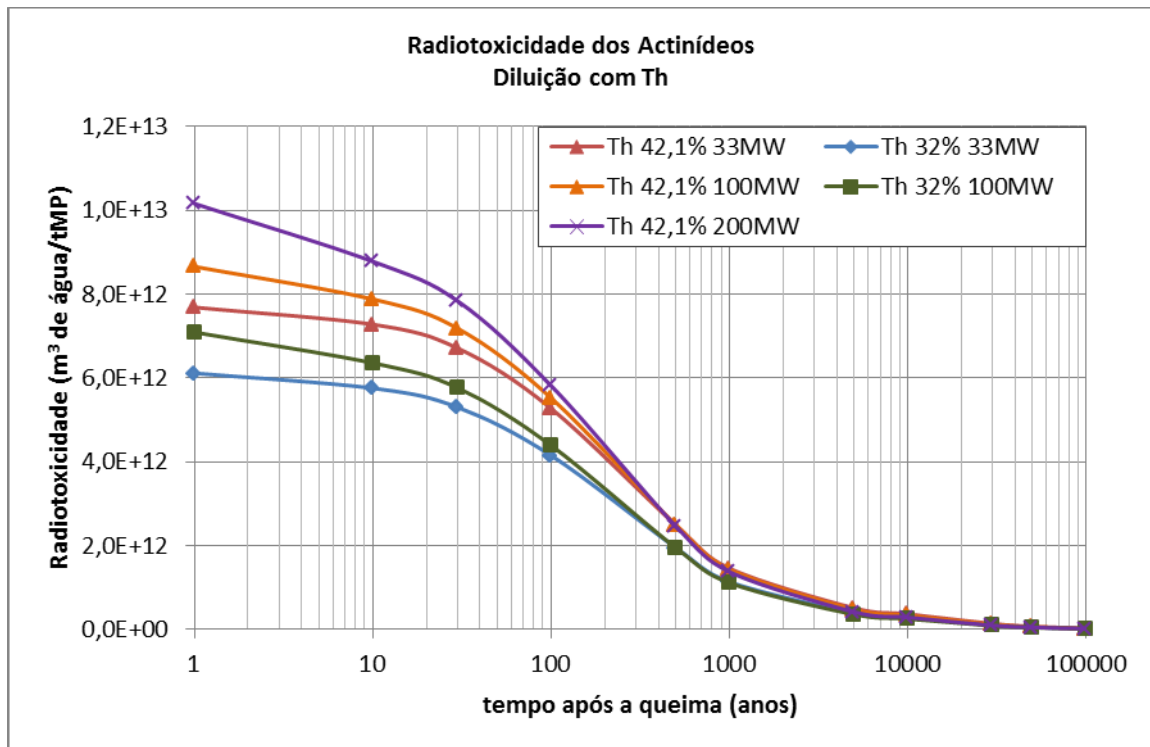


Fig. 4.18 Evolução da radiotoxicidade dos actínídeos após a queima de combustíveis diluídos com Th

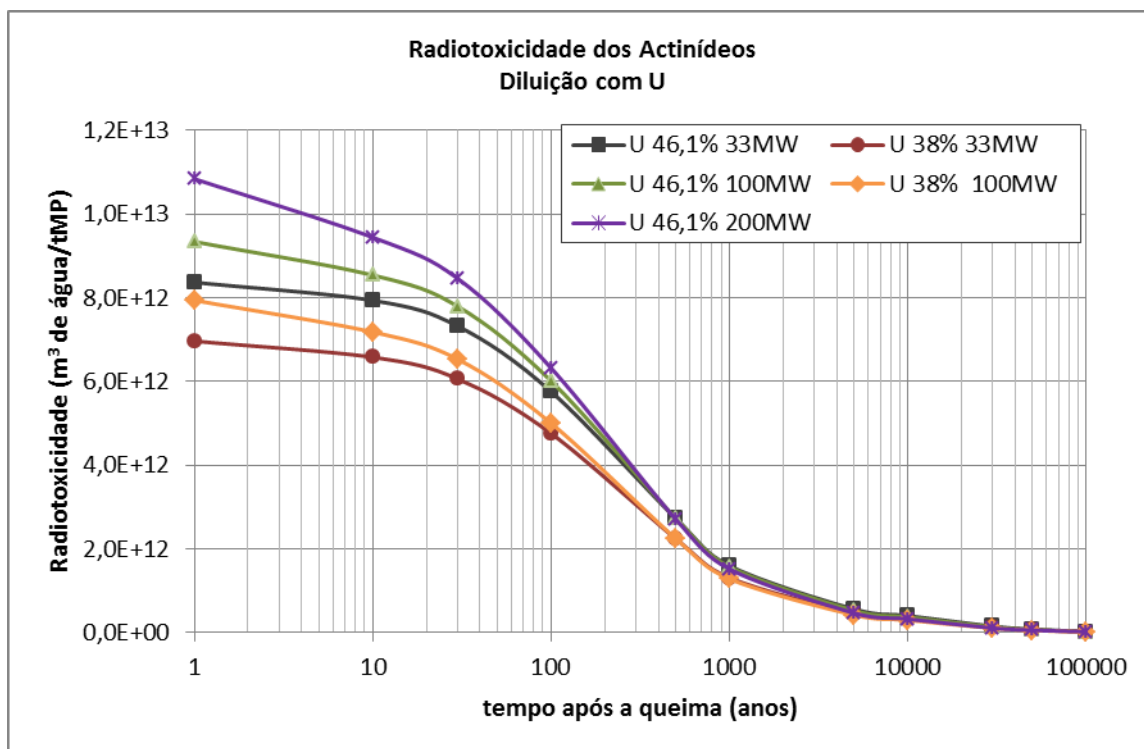


Fig. 4.19 Evolução da radiotoxicidade dos actínídeos após a queima de combustíveis diluídos com U empobrecido

Para uma dada composição do combustível, a radiotoxicidade logo após a queima é tanto maior quanto maior o *burnup* sofrido. Em cerca de 500 anos há uma inversão neste comportamento: os casos de menor *burnup* apresentam maior radiotoxicidade conforme exemplificado no detalhe da Fig 4.20.

Os actínídeos do combustível queimado são compostos pelos sobreviventes do combustível inicial e por aqueles formados nas absorções de nêutrons durante a queima. Como visto no item 4.4, com maior *burnup*, há maior queima de transurânicos e maior formação de novos actínídeos menores a partir de absorções nos núcleos do combustível inicial devido à exposição a um fluxo de nêutrons maior. A tendência é que estes novos isótopos formados, com números de massa acima do daqueles presentes no combustível inicial, tenham meia vida mais curta, resultando em aumento com o *burnup* da radiotoxicidade logo após a queima. Com o decaimento destes isótopos a tendência é de que sua importância em relação à quantidade de actínídeos

sobreviventes da queima diminua levando à menor radiotoxicidade para maiores *burnups*.

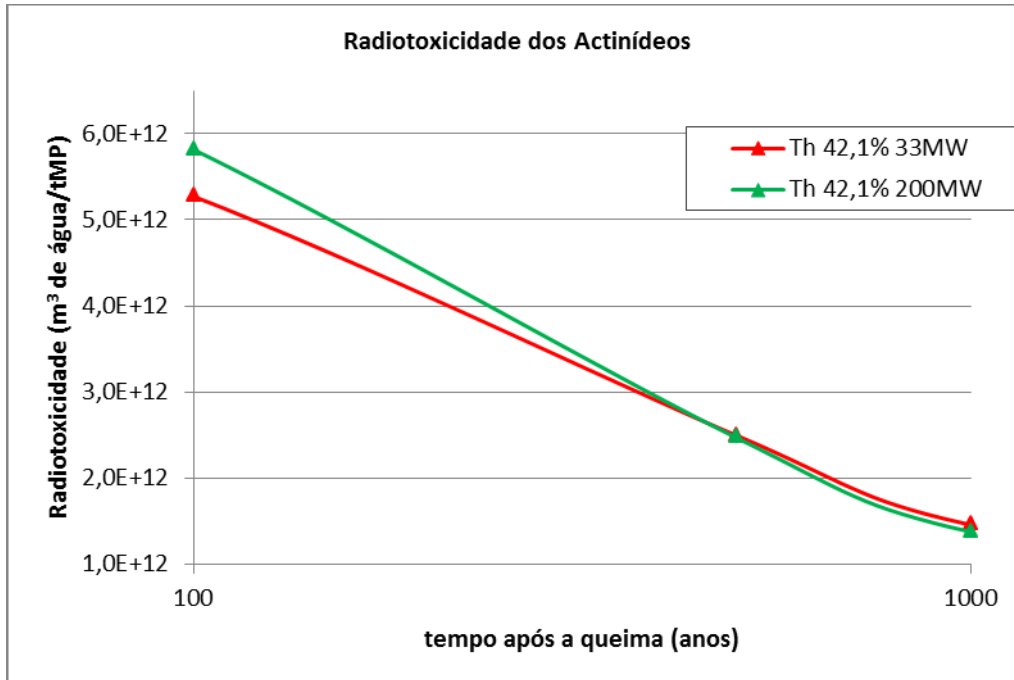


Fig. 4.20 Detalhe da inversão na dependência da radiotoxicidade com o *burnup*.

Na Fig 4.21 pode-se ver uma comparação da radiotoxicidade dos actínídeos de acordo com o material de diluição utilizado. Para os casos com um mesmo  $k_{eff}$  inicial, representados pelos pares Th33%-U38% e Th42,1%-U46,1%, a radiotoxicidade dos combustíveis diluídos com U é maior que na diluição com Th. Isto deve-se ao fato de que o conteúdo inicial de transurânicos provenientes do combustível reciclado do PWR é menor nas misturas com Th que nas misturas com U correspondentes, significando que, para um mesmo *burnup*, um percentual maior de metal pesado será consumido por fissões na diluição com Th, sendo substituídos por produtos de fissão, restando menor quantidade de actínídeos no combustível queimado do HTTR comparado com a diluição com U.

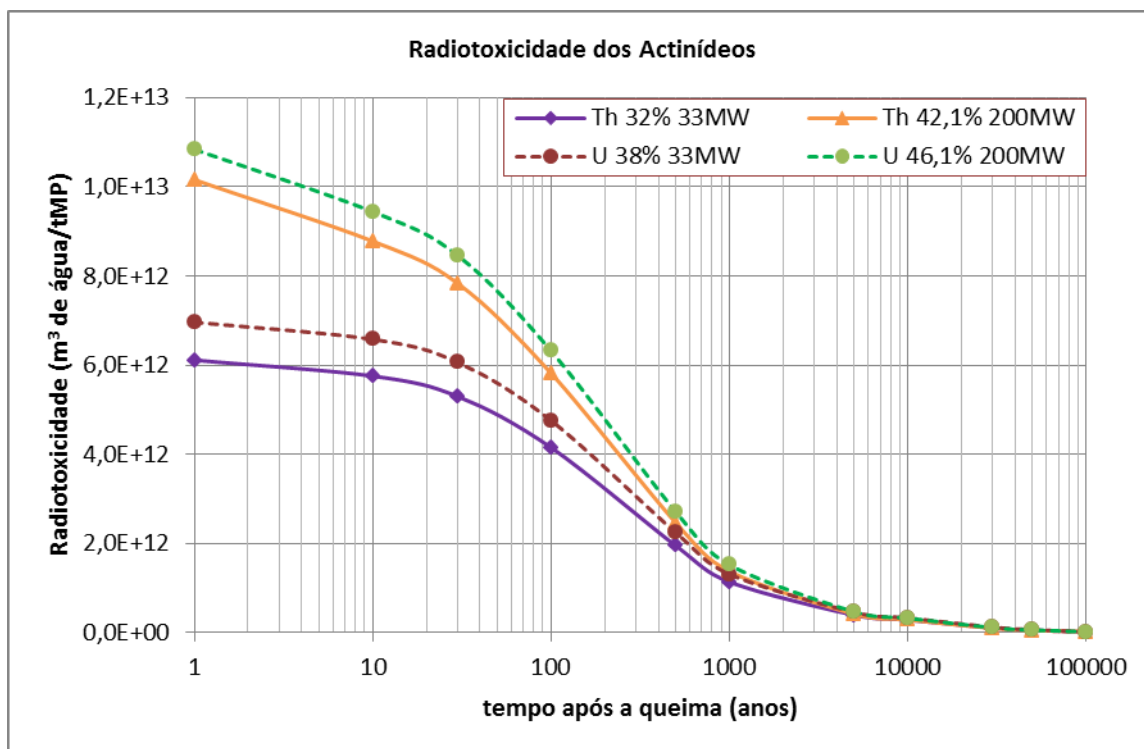


Fig. 4.21 Comparação da radiotoxicidade dos actinídeos de combustíveis diluídos com Th ou U empobrecido

Com o passar do tempo em direção ao horizonte de 100 mil anos, há a convergência das radiotoxicidades de todas as simulações. Embora haja uma vantagem em termos de menor radiotoxicidade dos combustíveis diluídos com Th no período inicial, os dados de radiotoxicidade obtidos não permitiram destacar uma clara vantagem de um dos combustíveis com Th ou U sobre o outro no longo prazo, após 10.000 anos, no que diz respeito à radiotoxicidade do combustível queimado.

#### 4.8.2.1 Principais actinídeos responsáveis pela radiotoxicidade do combustível queimado.

Entre os diversos actinídeos presentes no combustível queimado, pode-se identificar, num horizonte de até 100.000 anos, 7 radionuclídeos como os principais responsáveis pela radiotoxicidade do combustível queimado, em todos os casos estudados. São eles o  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ . Ao final da queima, sua radiotoxicidade representa acima de 97% da

radiotoxicidade total dos actínídeos e mantém-se acima de 90% até além de 50.000 anos.

Na Tabela 4.10 estão as meias vidas e os modos de decaimento destes isótopos e de outros que participam das transformações intermediárias importantes para que se acompanhe as transformações dos nuclídeos.

Tabela 4.10.- Característica de decaimento de alguns radioisótopos do combustível queimado.

isótopo	Meia vida	Modo de decaimento	Cadeia natural de decaimento
$^{238}\text{U}$	$4,46 \cdot 10^9$ anos	$\alpha$	$4n + 2$
$^{234}\text{U}$	$245,5 \cdot 10^3$ anos	$\alpha$	$4n+2$
$^{238}\text{Pu}$	87,7 anos	$\alpha$	$4n + 2$
$^{239}\text{Pu}$	$24,1 \cdot 10^3$ anos	$\alpha$	$4n+1$
$^{240}\text{Pu}$	$6,6 \cdot 10^3$ anos	$\alpha$	$4n$
$^{241}\text{Pu}$	14,35 anos	$\beta^-$	$4n+1$
$^{242}\text{Pu}$	$3,73 \cdot 10^3$ anos	$\alpha$	$4n+2$
$^{241}\text{Am}$	432,2 anos	$\alpha$	$4n+1$
$^{242}\text{Cm}$	162,8 d	$\alpha$	$4n+2$
$^{244}\text{Cm}$	18,1 anos	$\alpha$	$4n$

As figuras Fig 4.22, Fig 4.23 e Fig 4.24 são exemplos do comportamento das radiotoxicidades individuais dos radionuclídeos mais importantes após a queima. É interessante notar que, tanto nos combustíveis diluídos com Th como com U, as curvas para todos os radionuclídeos citados exibem exatamente o mesmo comportamento.

No início, sua radiotoxicidade representa acima de 97% da radiotoxicidade total dos actínídeos e mantém-se acima de 90% até além de 50.000 anos.



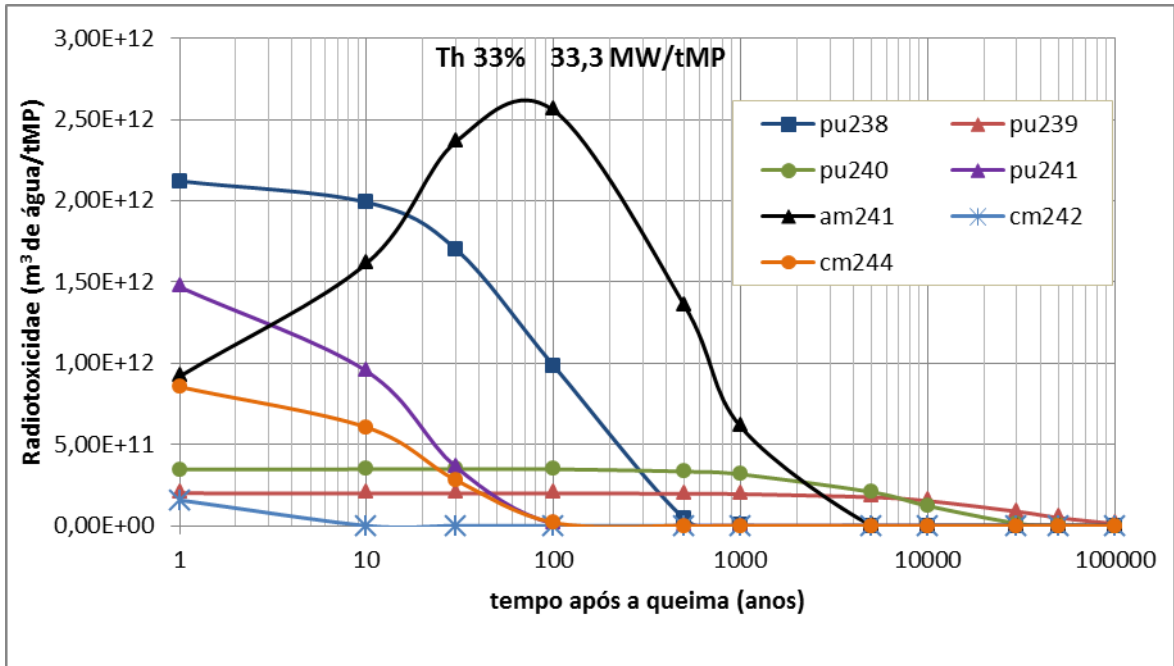


Fig. 4.22 Evolução das radiotoxicidades individuais dos principais actinídeos.  
(Th33% - 33,3 MW/tMP)

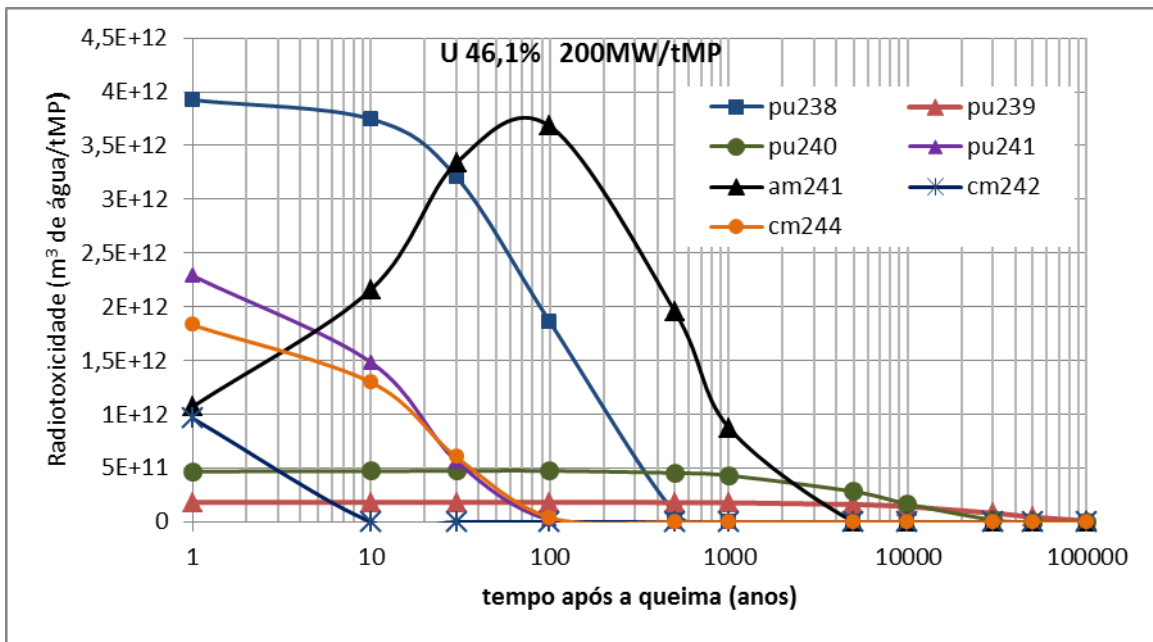


Fig. 4.23 Evolução das radiotoxicidades individuais dos principais actinídeos.  
(U46,1% - 200 MW/tMP)

Imediatamente após a queima, a predominância é da radiotoxicidade dos isótopos  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ , devido à sua alta concentração e relativamente

pequena meia vida. Há também uma contribuição significativa do  $^{241}\text{Am}$  cuja concentração cresce rapidamente com o tempo pelo decaimento  $\beta^-$  do  $^{241}\text{Pu}$ , atingindo um máximo antes de 100 anos. A radiotoxicidade do  $^{241}\text{Am}$  é dominante entre 15 e 2.000 anos.

O peso inicial dos isótopos de curium,  $^{242}\text{Cm}$  e  $^{244}\text{Cm}$ , na radiotoxicidade deve-se mais a sua pequena meia vida que à sua quantidade. Ambos sofrem decaimento alfa produzindo  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{240}\text{Pu}$  respectivamente.

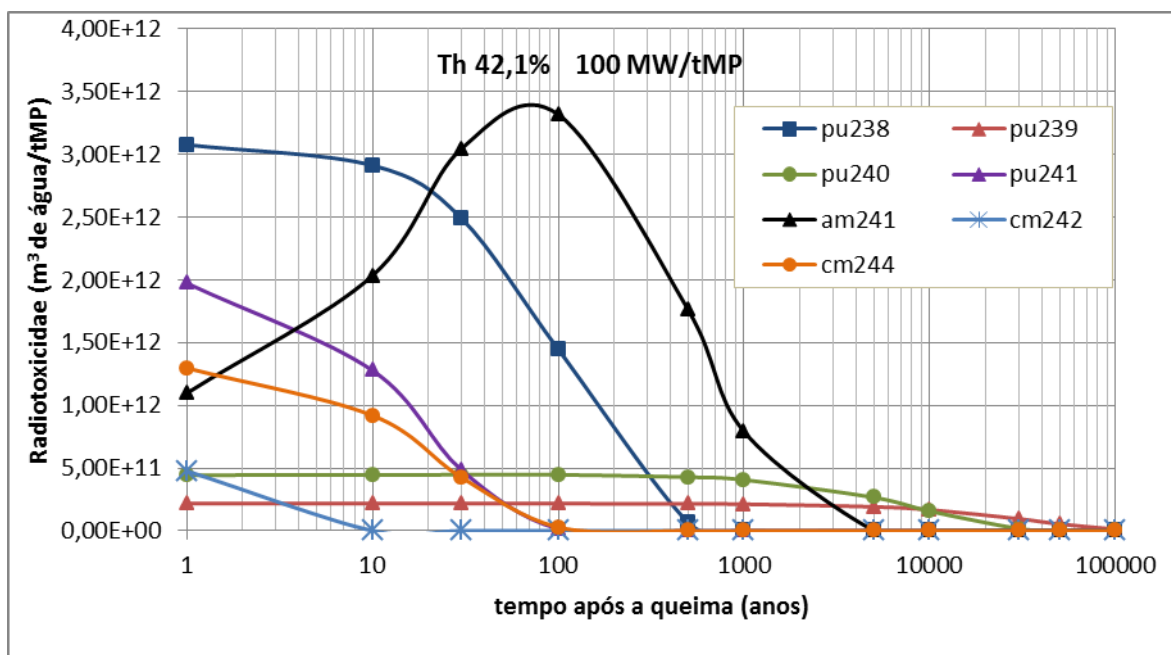


Fig. 4.24 Evolução das radiotoxicidades individuais dos principais actinídeos.  
(Th42,1% - 100 MW/tMP)

O peso inicial dos isótopos de curium,  $^{242}\text{Cm}$  e  $^{244}\text{Cm}$ , na radiotoxicidade deve-se mais a sua pequena meia vida que à sua quantidade. Ambos sofrem decaimento alfa produzindo  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{240}\text{Pu}$  respectivamente.

O  $^{239}\text{Pu}$  e o  $^{240}\text{Pu}$  mantêm uma radiotoxicidade bastante estável por longo período devido à sua grande meia vida. A partir de 2000 anos o  $^{240}\text{Pu}$  passa a ser dominante e em 10.000 anos é ultrapassado pelo  $^{239}\text{Pu}$ .

Em 100.000 anos a maior influência é a do  $^{239}\text{Pu}$ , representando ainda de 44% a 63%. Este percentual é tanto maior quanto menor tiver sido o *burnup*.

Próximo a 100.000 anos, começam a ficar importantes nuclídeos com número de massa mais baixos pertencentes às cadeias de decaimento dos actínídeos, começando pelo  $^{210}\text{Po}$  e  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{230}\text{Th}$ , da cadeia natural do urânio ( $4n+2$ ). Estes radionuclídeos são provenientes principalmente da cadeia iniciada com o decaimento  $\alpha$  do  $^{238}\text{Pu}$  em  $^{234}\text{U}$ .

## 5. CONCLUSÃO

Neste trabalho foi utilizado o modelamento do reator a gás de alta temperatura HTTR com o código SCALE 6.0 para estudar o comportamento do reator utilizando combustíveis à base de transurânicos em mistura com tório ou com urânio empobrecido.

Foi avaliado como o fator de multiplicação efetivo inicial é afetado pelo material usado na diluição dos transurânicos e pelo conteúdo físsil da mistura, concluindo que a diluição com urânio exige um maior conteúdo físsil inicial que a diluição com tório. A principal diferença na composição dos dois tipos de combustíveis é a presença do  $^{238}\text{U}$  ou do  $^{232}\text{Th}$ , sendo que a maior absorção nas ressonâncias do  $^{238}\text{U}$  é a responsável por este fato.

Um aspecto interessante dos combustíveis alternativos é a lenta e quase linear variação do  $k_{\text{eff}}$  dos combustíveis transurânicos em comparação com o do combustível de  $\text{UO}_2$  do projeto original do reator. Conclui-se que os transurânicos altamente absorvedores de nêutrons térmicos atuam como veneno queimável conferindo grande estabilidade ao  $k_{\text{eff}}$ , o que permite a obtenção de altos *burnups* sem recarregamento com a utilização dos TRUs como combustível.

Em vista do comportamento observado do  $k_{\text{eff}}$  das misturas, pode-se inferir que, para um mesmo conteúdo físsil inicial, o  $k_{\text{eff}}$  das misturas com Th situa-se acima do das misturas com U. Portanto, a diluição com Th proporcionará maior extensão da queima. Deste modo, a diluição com Th produzirá maior redução na quantidade total de Pu e de TRUs tanto em termos absolutos quanto percentuais. Pode-se concluir que a diluição com Th proporciona melhor aproveitamento dos recursos naturais de urânio, produzindo mais energia para a mesma quantidade inicial de TRUs vindas do PWR. No entanto, deve-se avaliar como a introdução do Th, com todas as instalações e operações associadas, impactará os aspectos econômicos e outras etapas do ciclo do combustível.

A razão entre o fluxo rápido e o fluxo total no combustível, fornecidos pelo código SCALE 6.0 mostra um alto grau de endurecimento do fluxo nesta região. Este fato é atribuído à alta submoderação do compacto de combustível aliada à presença de isótopos com alta seção de choque de absorção provocando forte depleção no fluxo térmico dentro do combustível.

Também foi realizado o estudo do coeficiente de temperatura de combustível para verificar as condições de segurança do HTTR com os combustíveis alternativos na temperatura de trabalho, que mostrou um comportamento satisfatório mantendo-se negativo ao longo da queima.

Para um mesmo  $k_{\text{eff}}$  inicial, nas misturas com Th houve maior queima de transurânicos que nas misturas com U, tanto em termos absolutos quanto percentuais. Nos casos simulados, foi detectada a criação líquida de massa total de actínideos menores. Curiosamente, contrariando as expectativas iniciais, nas misturas com Th houve maior aumento absoluto e percentual na massa de actínideos menores que nas misturas com U. Ressalta-se que estes resultados são válidos apenas para os casos aqui estudados, não devendo ser generalizados sem estudos de otimização.

Na avaliação da radiotoxicidade do combustível queimado constata-se que a radiotoxicidade dos produtos de fissão depende essencialmente do nível de *burnup* e dentro de 100 a 200 anos atinge o nível de radiotoxicidade do minério utilizado para produzi-lo.

Num horizonte de até 100.000 anos, a radiotoxicidade dos actínideos depende essencialmente de 7 isótopos:  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ . Ao final da queima, sua radiotoxicidade representa acima de 97% da radiotoxicidade total dos actínideos e mantém-se acima de 90% até além de 50.000 anos.

Imediatamente após a queima, a predominância é da radiotoxicidade dos isótopos  $^{238}\text{Pu}$  e  $^{241}\text{Pu}$ . O  $^{241}\text{Am}$  é dominante entre 15 e 2.000 anos. . A partir de 2000 anos o  $^{240}\text{Pu}$  passa a ser dominante e em 10.000 anos é ultrapassado pelo  $^{239}\text{Pu}$ . Próximo a 100.000 anos começa a crescer a influência de núclídeos

mais leves pertencentes às cadeias de decaimento dos actínídeos como o  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{230}\text{Th}$ , da cadeia natural do urânio (4n+2).

Comparando-se pelo tipo de diluição, a radiotoxicidade dos actínídeos é menor nos combustíveis diluídos em Th do que em U pra um mesmo  $k_{\text{eff}}$  inicial e mesmo burnup.

O maior nível de burnup tende a elevar a radiotoxicidade inicial do combustível queimado mas, após cerca de 500 anos, a radiotoxicidade tende a ser menor para um maior burnup devido à menor sobrevivência dos actínídeos do combustível original que têm, em média, maior meia vida que a dos transurânicos formados pelas absorções de nêutrons durante a queima.

No horizonte de tempo considerado, há uma tendência convergente da radiotoxicidade dos actínídeos, não sendo possível destacar clara vantagem de uma diluição sobre a outra no longo prazo.

## 5.1 Recomendações

Os cálculos realizados neste trabalho têm o caráter de um estudo preliminar na exploração do modelamento de reatores HTGR com o código SCALE 6.0 e necessitam vários aperfeiçoamentos como:

- Exploração da característica de lenta variação no  $k_{\text{eff}}$ , estendendo o tempo de queima das misturas na potência de projeto para pesquisar o *burnup* possível na queima mais lenta proporcionada pelos combustíveis TRUs.
- Realização de estudos de otimização variando, por exemplo, a fração de empacotamento e o percentual físsil das misturas.
- Comparação do comportamento dinâmico do modelo computacional com resultados de *benchmark* e de outros códigos.
- Exploração do modelo na configuração de novas geometrias para aplicações em geração potência.

## REFERÊNCIAS

BARROS G.P.; PEREIRA C.; VELOSO M.A.F.; COSTA A.L. Study of an ADS Loaded with Thorium and Reprocessed Fuel, **Science and Technology of Nuclear Installations**, 2012.<sup>a</sup>

BARROS G.P.; PEREIRA C.; VELOSO M.A.F.; CUNHA R.O.; COSTA A.L. Fast Accelerator Driven Subcritical System for Energy Production Using Burned Fuel, **Fusion Science and Technology**, 2012.<sup>b</sup>

BESS J.D.; FUJIMOTO N.; DOLPHIN B.H.; SNOJ L.; ZUKERAN A.. Evaluation of the Start-Up Core Physics Tests at Japan's High Temperature Engineering Test Reactor (Fully-Loaded Core). INL/EXT-08-14767, Idaho National Laboratory. USA, 2009.

M. BENEDICT, T.H. PIGFORD, H.W. LEVY, **Nuclear Chemical Engineering**, 2<sup>nd</sup> Edition, McGraw Hill, New York, 1981.

BOMBONI E.; CERULLO N.; FRIDMAN E.; LOMONACO G. ; CHWAGERAUS E. Comparison among MCNP-based depletion codes applied to burnup calculations of pebble-bed HTR lattices, **Nuclear Engineering and Design** 918–924, 2010.

CERULLO N.; BUFALINO D.; FORASASSI G.; LOMONACO G.; P. ROCCHI P.; ROMANELLO V.. An additional Performance of HTRS: The Waste Radiotoxicity Minimization, **Radiation Protection Dosimetry**. Vol. 115, No. 1–4, pp. 122–12, 2005.

CHANG H.; YANG Y., JING X. Thorium-Based Fuel Cycles in the Modular High Temperature Reactor, **Tsinghua Science and Technology**. Volume 11, No 6, pp731-738 ,Dezembro, 2006.

CHOI H.; BAXTER A. A comparative study on recycling spent fuels in gas-cooled fast reactors. **Annals of Nuclear Energy** **37**, 723–729, 2010.

COTA S.; PEREIRA C. Neutronic Evaluation of the Non-proliferating Reprocessed Nuclear Fuels in Pressurized Water Reactors **Annals of Nuclear Energy**, **24**, 1997.

DeHART M. D. **TRITON: A Two-Dimensional Transport and Depletion Module for Characterization of Spent Nuclear Fuel**. Nuclear Science and Technology Division. OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, Janeiro 2009.<sup>a</sup>

DeHART M. D. **NEWT: A New Transport Algorithm for Two-Dimensional Discrete Ordinates Analysis in Non-Orthogonal Geometries**. Nuclear Science and Technology Division. OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, Janeiro 2009.<sup>b</sup>

FEIVESON, H. MIAN, Z.; RAMANA M.V.; HIPPEL, F. **Spent Fuel from Nuclear Power Reactors**. IPMF-INTERNATIONAL PANEL on FISSILE MATERIALS 2011

GAULD I.C.; HERMANN O.W.; WESTFALL R.M. **ORIGEN-S: SCALE System Module to Calculate Fuel Depletion, Actinide Transmutation, Fission Product Buildup and Decay, and Associated Radiation Source Terms**. Nuclear Science and Technology Division. OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, ORNL/TM-2005/39, Version 6, Vol. II, Sect. F7, Janeiro 2009.

GOLAY M.W.; DULIK J.D.; FELDER F.A.; UTTON S.M. **Project on Integrated Models, Data Bases and Practices Needed for Performance-Based Safety Regulation**, MIT-ANP-TR-60, Dezembro, 1998.

GOLUOGLU S.; HOLLENBACH D.F.; PETRIE L.M.; **CSAS6: Control Module for Enhanced Criticality Safety Analysis with KENO VI**. Nuclear Science and Technology Division. OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, January 2009.

HÉMERY, D.; DEBIER, J. C.; DELÉAGE, J. P.; **Uma História da Energia**. Brasília, Editora Universidade de Brasília, 1993.

HOLLENBACH D. F.; PETRIE L. M.; GOLUOGLU S.; LANDERS N. F.; DUNN M. E.; **KENO-VI: A General Quadratic Version of the Keno Program**. Nuclear Science and Technology Division. OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, January 2009.

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Design and Evaluation of Heat Utilization Systems for the High Temperature Engineering Test Reactor**. IAEA-TECDOC-1236, ISSN 1011-4289, Vienna, 2001.<sup>a</sup>

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Current Status and Future Development of Modular High Temperature Gas-cooled Reactor Technology**. IAEA-TECDOC-1198. ISSN 1011-4289. IAEA, Vienna, February, 2001.<sup>b</sup>

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Evaluation of High Temperature Gas Cooled Reactor Performance : Benchmark Analysis Related to Initial Testing of the HTTR and HTR-10**, IAEA-TECDOC-1382, Vienna, 2003.

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Thorium Fuel Cycle – Potential Benefits and Challenges**. IAEA-TECDOC-1450. ISBN 92-0-103405-9. ISSN 1011-4289. IAEA, Vienna, May, 2005.

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Status of Minor Actinides Fuel**, IAEA NUCLEAR ENERGY SERIES No. NF-T-4.6, Vienna , 2009.<sup>a</sup>

IAEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Advanced Reactor Technology Options for Utilization and Transmutation of Actinides in Spent Nuclear Fuel**. IAEA-TECDOC-1626, ISBN 978-92-0-109309-7, ISSN 1011-4289, IAEA, VIENNA, 2009.<sup>b</sup>



IEA - INTERNATIONAL ENERGY AGENCY. **Electricity and Nuclear Power Estimates for the Period up to 2030**. Reference Data Series No. 1, IAEA, Vienna, 2006.

IEA – INTERNATIONAL ENERGY AGENCY. **Key World Energy Statistics 2013**. Disponível na internet em: <http://www.iea.org/publications>. Último acesso em 10/04/2014.

IPCC - INTERGOVERNAMENTAL PANEL ON CLIMATE CHANGE. **Climate change 2007: Mitigation**. Contribution of Working group III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [B. Metz, O. R. Davidson, P. R. Bosch, R. Dave, L. A. Meyer (eds)], Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2007.

KUIJPER J.C.; RAEPSAET X.; HASS J.B.M.; LENZA W.; OHLIG H.; RUETTEN J.; BROCKMANN H.; DAMIANB F.; DOLCI F.; BERNNAT W.; OPPE J.; KLOOSTERMAN J.L.; CERULLO N.; LOMONACO G.; NEGRINI A.; MAGILL J.; SEILER R., HTGR reactor physics and fuel cycle studies, **Nuclear Engineering and Design**, vol 236, pp 615 – 634, 2006.

LEÓN, P. T., SAPHIER, D, VAL, J. M. M., MÍNGUEZ E., PERLADO J. M., PIERA, M. **A Study on Once-Through Actinides Transmutation**. NEA Seventh Information Exchange Meeting on Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation, 2002, Korea

LEPPANEN J. ; DEHART M., HTGR Reactor Physics and Burnup Calculations Using the Serpent Monte Carlo Code, **Nuclear Engineering and Design**, vol 236, pp 615–634, 2006.

EPE- Empresa de Pesquisa Energética. **Plano Nacional de Energia**. 2007. Disponível em: [www.epe.gov.br](http://www.epe.gov.br); Último acesso em 10/04/2014.

MULDER E.; TEUCHERT E. Characteristics of a different fuel cycle in a PBMR-400 for burning reactor grade plutonium, **Nuclear Engineering and Design**, vol 238, pp 2893–2897, 2008.

NNL - NATIONAL NUCLEAR LABORATORY. **Comparison of Thorium and Uranium Fuel Cycles**. NNL (11) 11593 Issue 5, March, 2012.

NEA - NUCLEAR ENERGY AGENCY. **Physics and Safety of Transmutation Systems – A Status Report**. Nuclear Science. NEA No. 6090. OECD, 2006.

NEA - NUCLEAR ENERGY AGENCY. **Potential Benefits and Impacts of Advanced Nuclear Fuel Cycles with Actinide Partitioning and Transmutation**. Nuclear Science. NEA No. 6894. OECD, 2011.

NEA – NUCLEAR ENERGY AGENCY, **Minor Actinide Burning in Thermal Reactors**. NEA No. 6997, OECD, 2013.

NEA - NUCLEAR ENERGY AGENCY. **A Technology Roadmap Update for Generation IV Nuclear Energy Systems**, OECD- NEA ,2014

NICKEL H.; NABIELEK H.; POTT G.; MEHNER A.W. Long time experience with the development of HTR fuel elements in Germany, **Nuclear Engineering and Design**, Vol 217, pp 141–151, 2002.

ORNL – Oak Ridge National Laboratory. **SCALE: A Modular Code System for Performing Standardized Computer Analysis for Licensing Evaluations**, ORNL/TM-2005/39, Version 5.1, Vols. I-III, November 2006.

PEREIRA, C., VANDEGRIFT, G.F., REGALBUTO, M.C. et alli., **Lab-Scale Demonstration of the UREX + 2 Process Using Spent Fuel**. Proc. of WM'05, Tucson, AZ, 2005.

POHL C.; RUTTEN J.. Burning minor actinides in a HTR energy spectrum, **Nuclear Engineering and Design**, vol 248, pp 343– 349, 2012.

RODRIGUEZ C.; BAXTER A.; MCEACHERN D.; FIKANI M.; VENNERI F., Deep-Burn: making nuclear waste transmutation practical. **Nuclear Engineering and Design**, vol. 222, Issues 2-3, pp. 299-317, 2003.

ROMANO, A. Implications of Alternative Strategies for Transition to Sustainable Fuel Cycles,. **Nuclear Science & Engineering**, vol 154, pp. 1-27, 2006.

RUTTEN H.J.; HAAS K.A.; Research on the incineration of plutonium in a modular HTR using thorium-based fuel, **Nuclear Engineering and Design**, vol 195, pp 353–360, 2000.

SALVATORES M.; PALMIOTTI G.; Radioactive waste partitioning and transmutation within advanced fuel cycles: Achievements and challenges, **Progress in Particle and Nuclear Physics**, vol 66, pp 144–166, 2011.

SAITO S.; TANAKA T.; SUDO Y., Present Status of High-Temperature Engineering Test Reactor (HTTR). **Nuclear Engineering and Design**, vol 132, pp 85-93, 1991.

SILVA F.C.; PEREIRA C.; VELOSO M.A.F.; SILVA C.A.M.; CUNHA R.O.; COSTA A L., A Neutronic Evaluation of Reprocess Fuel and Depletion Study of VHTR Using MCNPX and WIMSD5 Code, **Fusion Science and Technology**, vol 61, pp 338, 2012.

SIMPSON M. F.; LAW J.D., **Nuclear Fuel Reprocessing**. INL/EXT-10-17753. Fuel Cycle Science and Technology Division. Idaho National Laboratory. Idaho Falls, Idaho 83415. February, 2010.

SOUSA R.V.; FORTINI A.; PEREIRA C.; CARVALHO F.R.; OLIVEIRA A.H.; A Preliminary Neutronic **Evaluation of the High Temperature Gas-Cooled Test Reactor HTR-10 Using the SCALE 6.0 Code** IN: INTERNATIONAL NUCLEAR NUCLEAR ATLANTIC CONFERENCE- INAC 2013, Recife, PE, Brazil. Anais: Associação Brasileira de Energia Nuclear – ABEN, November 24-29, 2013.

SOUSA R.V.; TANURE L.P.A.R.; COSTA D.F.; PEREIRA C.; VELOSO M.A. F.; OLIVEIRA A.H.; A preliminary neutronic evaluation of the high temperature nuclear reactor (HTTR) using reprocessed fuel. **Annals of Nuclear Energy** **65**, 232–238, 2014<sup>a</sup>.

SOUSA R.V.; FORTINI A.; PEREIRA C.; OLIVEIRA A.H.; CARVALHO F. R. ; **A Neutronic Evaluation of the HTTR using Thorium and Reprocessed Fuel**, Proceedings of ICAPP 2014, Charlotte, USA, Paper 14226, April 6-9, 2014<sup>b</sup>.

STACEY W.M. **Nuclear Reactor Physics**. Second Edition, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim ISBN978-3-527-40679-1, Germany, 2007.

TALAMO, A.; GUDOWSKI, W. A Deep Burn Fuel Management Strategy for the Incineration of Military Plutonium in the Gas Turbine–Modular Helium Reactor Modeled in a Detailed Three-Dimensional Geometry by the Monte Carlo Continuous Energy Burnup Code. **Nuclear Science and Engineering**. v.153, pp. 172–184, 2006.

TAIWO T. A.; KIM T. K.; YANG W. S.; KHALIL H. S.; TERRY W. K.; BRIGGS J. B.; NIGG D. W. , **Evaluation of High Temperature Gas-Cooled Reactor Physics Experiments as VHTR Benchmark Problems**, ANL-GenIV-059, 2005.

TANURE L.P.A.R.; SOUSA R.V.; COSTA D.F.; CARDOSO F.; VELOSO M.A.F.; PEREIRA C. A Preliminary Neutronic Evaluation of High Temperature Engineering Test Reactor Using the SCALE6 code. **Radiation Physics and Chemistry**, vol 95, pp 417–419, 2014.

US DOE . **A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems** , US DOE, 2002

VISOSKY M.; HEJZLAR, P.; SHWAGERAUS, E.; BOSCHER T.; KAZIMI M. S.; **Sustainable Actinide Management Strategies Using LWRs with CONFU Assemblies**. disponível em: <http://www.oecd-neo.org/pt/docs/iem/lasvegas04/12>. Último acesso em 10/04/2014.

WEC - WORLD ENERGY COUNCIL. **Energy Policy Scenarios to 2050.**, 2007. Disponível em: [www.worldenergy.org/scenarios\\_study\\_online\\_1.pdf](http://www.worldenergy.org/scenarios_study_online_1.pdf); Último acesso em 10/04/2014.

WILLIAMS M. L.; ASGARI M.; HOLLENBACH D.F., **CENTRM: A One-Dimensional Neutron Transport Code for Computing Pointwise Energy Spectra**. Nuclear Science and Technology Division. OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY, ORNL/TM-2005/39, Version 6 Vol. II, Sect. F18, January 2009<sup>a</sup>.

WILLIAMS M. L.;HOLLENBACH D.F., **PMC: A Program to Produce Multigroup Cross Sections Using Pointwise Energy Spectra from CENTRM**. ORNL/TM-2005/39, Version 6 Vol. II, Sect. F19, January 2009<sup>b</sup>.

ZHANG Z.; RAHNEMA F.; JUSTIN M.; POUNDERS, J. M.; ZHANG. D., **A Simplified 2D HTTR Benchmark Problem**, *International Conference on Mathematics, Computational Methods & Reactor Physics (M&C 2009)* Saratoga Springs, New York, 2009.