

UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS ESCOLA DE ENGENHARIA DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA NUCLEAR PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES

SISTEMA HÍBRIDO FUSÃO-FISSÃO: AVALIAÇÃO NEUTRÔNICA DE REFRIGERANTES E DA CAMADA PRODUTORA DE TRÍTIO

Renato Vinícius Alvernaz Marques

Belo Horizonte - MG

2019



UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS ESCOLA DE ENGENHARIA DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA NUCLEAR PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES

SISTEMA HÍBRIDO FUSÃO-FISSÃO: AVALIAÇÃO NEUTRÔNICA DE REFRIGERANTES E DA CAMADA PRODUTORA DE TRÍTIO

Renato Vinícius Alvernaz Marques

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares como requisito parcial para obtenção do Mestrado em Ciências e Técnicas Nucleares.

Área de Concentração: Engenharia Nuclear e da Energia.

Orientador: Prof. Dr. Carlos Eduardo Velasquez Cabrera Coorientador: Prof^a. Dr^a. Claubia Pereira Bezerra Lima

Belo Horizonte - MG

2019

M357s	Marques, Renato Vinícius Alvernaz. Sistema híbrido fusão-fissão [manuscrito] : avaliação neutrônica de refrigerantes e da camada produtora de trítio / Renato Vinícius Alvernaz Marques 2019. xiii, 119 f., enc.: il.
	Orientador: Carlos Eduardo Velasquez Cabrera. Coorientadora: Claubia Pereira Bezerra Lima.
	Dissertação (mestrado) - Universidade Federal de Minas Gerais, Escola de Engenharia.
	Anexos: f. 68-119.
	Bibliografia: f. 62-67.
	1. Engenharia nuclear - Teses. 2. Trítio - Teses. 3. Combustíveis nucleares - Teses. 4. Elementos transurânicos - Teses. I. Cabrera, Carlos Eduardo Velasquez. II. Lima, Cláubia Pereira Bezerra. III. Universidade Federal de Minas Gerais. Escola de Engenharia. III. Título.
	CDU: 621.039(043)



UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS



PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES

FOLHA DE APROVAÇÃO

SISTEMA HÍBRIDO FUSÃO-FISSÃO: AVALIAÇÃO NEUTRÔNICA DE REFRIGERANTES E DA CAMADA PRODUTORA DE TRITÍO

RENATO VINÍCIUS ALVERNAZ MARQUES

Dissertação submetida à Banca Examinadora designada pelo Colegiado do Programa de Pós-Graduação em CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES, como requisito parcial para obtenção do grau de Mestre em CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES, área de concentração ENGENHARIA NUCLEAR E DA ENERGIA.

Aprovada em 01 de fevereiro de 2019, pela banca constituída pelos membros:

Prof. Carlos Eduardo Velasquez Cabrera - Orientador Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

mahn

Profa. Claubia Pereira Bezerra Lima - Coorientaora Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

Dr. Fernando Pereira de Faria UFMG

Janil de A. M. Impolina Dr. Daniel de Almeida Magalhães Cámpolina CDTN/CNEN

Maria Auxiliadora Fartim Viloso Profa. Maria Auxiliadora Fortini Veloso Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

Belo Horizonte, 1 de fevereiro de 2019.

DEDICATÓRIA

Ao meu irmão, Pp. Sempre estará em meu coração e em meus pensamentos. "Força!"

AGRADECIMENTOS

Aos meus pais, Renato e Gessilda, por me incentivarem e me apoiarem sempre.

A minha amada, Patrícia, por fazer parte da minha vida e por ajudar a me tornar a cada dia um homem melhor, me fazendo olhar para cima e para frente, ser grande tanto profissionalmente quanto pessoa.

Às minhas irmãs, Cíntia e Janaína, minha vó Maria, e a todos os meus cunhados e familiares, pelo carinho.

À Prof^a. Dr^a. Claubia Pereira, pelo apoio antes e durante todo o mestrado.

Ao Prof. Dr. Carlos Eduardo, pelo apoio incondicional, compreensão e também pela paciência.

Aos demais professores do Departamento de Engenharia Nuclear pelo apoio e afeto. Aos amigos incondicionais que fiz durante todo o mestrado, Carlos, Michel, Victor, Janine, Gláucia Danielle e Márcia, que, mesmo em pouco tempo, já se encontram em meu coração.

Aos meus eternos amigos, Evandro, Raissa, Lucas, pela fraternidade e irmandade que tem por minha pessoa.

Ao CNPq, CAPES E FAPEMIG pelo suporte financeiro.

RESUMO

O Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak vem sendo estudado com o propósito de transmutação de transurânicos, os quais possuem uma longa meia-vida e alta radiotoxicidade. O sistema constitui-se de um reator de fusão nuclear acoplado a um cobertor de fissão subcrítico denominado camada transmutadora. Estudos preliminares indicaram o melhor posicionamento para a camada transmutadora considerando espectro endurecido e alto fluxo de nêutrons. Nos estudos anteriores, o refrigerante utilizado para a camada transmutadora foi a liga de lítio-chumbo enriquecida em lítio-6 a 20%, que além de refrigerar é responsável pela geração de trítio, necessário para suprir as reações de fusão nuclear.

Neste trabalho, partindo do modelo preliminarmente desenvolvido, e com o objetivo de aumentar a eficiência na transmutação de transurânicos através de reações de fissão nuclear, diferentes refrigerantes foram considerados para a camada transmutadora. Foram analisados metais líquidos usados como refrigerantes para reatores rápidos, tais como chumbo, sódio, e ligas de sódio-potássio, chumbo-bismuto, magnésio-chumbo e logicamente a liga de lítio-chumbo com o viés de comparação. Avaliando os parâmetros neutrônicos, tais como o fator de multiplicação efetivo e o fluxo de nêutrons, e a capacidade de transmutação de transurânicos, a liga eutética de chumbo-bismuto apresentou o melhor comportamento considerando a transmutação de transurânicos.

Entretanto, o uso do refrigerante chumbo-bismuto diminui as taxas de reação para a produção de trítio devido à falta de lítio no sistema, prejudicando o fornecimento de trítio necessário para as reações de fusão. Portanto, foi avaliada a inserção de uma camada produtora de trítio para diferentes materiais produtores em distintos posicionamentos no sistema com o novo refrigerante escolhido tendo como finalidade uma maior produção de trítio. A avaliação consiste em encontrar o melhor posicionamento e o melhor material a ser usado na camada produtora de trítio sem afetar de maneira significativa a transmutação de transurânicos. Foram analisadas as probabilidades de produção e o fluxo de nêutrons na camada produtora e a capacidade de transmutação para cada posicionamento da camada e produtor utilizado. Baseado nos resultados obtidos, a camada produtora de trítio foi posicionada antes da camada transmutadora, sendo composta por lítio enriquecido em lítio-6 a 20%.

Todas as análises foram realizadas utilizando o código MONTEBURNS que executa de forma conectada os códigos MCNP e ORIGEN. Os dados neutrônicos foram obtidos pelo código MCNP e os dados de queima e variação da composição do combustível foram obtidos pelo ORIGEN.

Palavras-chave: Sistema Fusão-Fissão, Tokamak, Transmutação, Refrigerante, Trítio, Produtor de Trítio.

ABSTRACT

The Fusion-Fission Hybrid System based on Tokamak has been studied with the transmutation purpose of transuranic nuclides, which have long half-life and high radiotoxicity. The system consists in a nuclear fusion reactor coupled to a subcritical fission blanket - called transmutation layer. Previous studies indicated the best location to place the transmutation layer, which should have a harden neutron spectrum allowing to increase the probability of fission reactions over the transuranic nuclides. The material used for cooling the transmutation layer in the system was a lithium-lead alloy, which has 20% lithium-6 enrichment on its composition for tritium generation purpose, element necessary to supply the nuclear fusion reactions.

Based on the previous studies, this work analyzed the use of different coolant materials for the transmutation layer in the hybrid system with the purpose to increase the capacity in the transuranic transmutation through fission reactions. Liquid metals are proposed to be used as coolant materials for fast reactors. The analyzed material for cooling the transmutation layer was lead, sodium, and sodium-potassium, lead-bismuth, lead-magnesium and, of course, lithium-lead alloys for comparison purpose. It was evaluated neutronic parameters, such as the effective multiplication factor, neutron flux, and nuclide composition after a fuel burnup. Among them, the lead-bismuth eutectic alloy presented the highest transmutation values. It was analyzed the reaction rates for tritium production, as well as, the neutron flux and nuclide composition for each breeder location and material.

However, the use of the lead-bismuth as coolant decreases the reaction rates for tritium production due to the lack of lithium in the system, decreasing the tritium amount required to supply the fusion reactions. Therefore, it was evaluated the insertion of a tritium breeder layer at distinct locations in the system for different breeder materials with the purpose to achieve high tritium production in the system using the chosen coolant. In addition, the evaluation consists in finding the best location to place the tritium breeder layer and also the most suitable material to be used as a tritium breeder in the layer that produces a significant amount of tritium without significantly affecting transuranic transmutation. Based on the results obtained, the tritium breeder layer was placed before the transmutation layer and was composed by lithium with 20% lithium-6 enrichment on its composition.

All analyzes were performed using the MONTEBURNS code, which links the MCNP and ORIGEN codes. The neutronic parameters were obtained from the MCNP code and the fuel burnup data, which includes the buildup, decay and processing of radioactive materials were obtained from ORIGEN.

Keywords: Fusion-Fission System, Tokamak, Transmutation, Coolant, Tritium, Tritium Breeder.

SUMÁRIO

DEDICATÓRIA	i
RESUMO	iii
ABSTRACT	V
LISTA DE FIGURAS	ix
LISTA DE TABELAS	xii
LISTA DE ACRÓNIMOS, ABREVIAÇÕES E SÍMBOLOS	xiii
1. INTRODUÇÃO	1
2. SISTEMA HÍBRIDO FUSÃO-FISSÃO BASEADO NO TOKAMAK	4
2.1. DESCRIÇÃO DO SISTEMA	4
2.2. SISTEMA MODELADO	7
2.3. PROPOSTA DO TRABALHO	11
3. REFRIGERANTES	13
3.1. PROPRIEDADES DOS REFRIGERANTES	13
3.1.1. Físico-Químicas	13
3.1.2. Neutrônicas	14
3.2. GEOMETRIA DO SISTEMA	19
3.3. COMBUSTÍVEL NUCLEAR	19
3.4. RESULTADOS E ANÁLISES DOS REFRIGERANTES	
3.5. CONCLUSÃO	
4. PRODUTORES DE TRÍTIO ANALISADOS	
4.1. PROPRIEDADES DOS PRODUTORES	
4.1.1. Físico-Químicas	
4.1.2. Neutrônicas	
4.2. GEOMETRIA DO SISTEMA	
4.3. COMBUSTÍVEL NUCLEAR	
4.4. RESULTADOS E ANÁLISES DOS PRODUTORES DE TRÍTIO	
4.4.1. Camada Produtora de Trítio inserida após a Camada Transmutado	ora42
4.4.2. Camada Produtora de Trítio inserida antes da Camada Transmuta	adora47

4.5. CONCLUSÃO	54
5. ANÁLISE FINAL	56
6. CONCLUSÃO FINAL	60
REFERÊNCIAS	62
ANEXOS	68
I. TAXAS DE REAÇÃO, PRODUÇÃO DE TRÍTIO ANUAL E	
TRANSMUTAÇÃO DE TRU NO SISTEMA HÍBRIDO PARA OS MATERIAIS	
REFRIGERANTES E PRODUTORES DE TRÍTIO	68
II. TRABALHOS APRESENTADOS EM CONGRESSO	70

viii

LISTA DE FIGURAS

Figura 20. Taxas reação para a produção de trítio para os refrigerantes	31
Figura 21. Seção de choque microscópica para a reação (n,T) para ⁶ Li e ⁷ Li	36
Figura 22. Seções de choque microscópicas para a reação (n,T) dos produtores de trítio à	
base de Li	37
Figura 23. Seções de choque microscópicas para a reação (n,T) dos produtores de trítio Li	
1-2, FLiBe 1-2, BeCl ₂ e B ₂ O ₃	38
Figura 24. Camada produtora de trítio inserido antes da camada transmutadora no	
Sistema Híbrido Fusão-Fissão	39
Figura 25. Sistema Híbrido Fusão-Fissão com camada produtora de trítio inserida após a	
camada transmutadora	41
Figura 26. Reações nucleares para os produtores de trítio Li 1-2, FLiBe 1-2, B ₂ O ₃ e	
BeCl ₂	43
Figura 27. Taxa de reação para a produção de trítio para Li 1-2, FLiBe 1-2, B ₂ O ₃ e BeCl ₂	43
Figura 28. Espectro neutrônico sobre a camada produtora de trítio para Li 1-2, FLiBe 1-2,	
B ₂ O ₃ e BeCl ₂	43
Figura 29. Valores de k _{eff} durante a queima do combustível para Li 1-2, FLiBe 1-2, B ₂ O ₃	
e BeCl ₂	44
Figura 30. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com os	
produtores Li 1-2, FLiBe 1-2, B ₂ O ₃ e BeCl ₂ : a) E<100 eV; b) 100eV <e<100kev; 100<="" c)="" td=""><td></td></e<100kev;>	
keV <e<1 1="" d)="" mev;="" mev<="" mev<e<20="" td=""><td>45</td></e<1>	45
Figura 31. Percentual de reações para o ²³² Th após absorção de nêutrons para Li 1-2,	
FLiBe 1-2, B ₂ O ₃ e BeCl ₂	46
Figura 32. Quantidade total de ²³³ U produzida após a queima do combustível para Li 1-2,	
FLiBe 1-2, B ₂ O ₃ e BeCl ₂	46
Figura 33. Quantidade total de redução de massa dos TRUs no final da queima do	
combustível para o sistema com os produtores Li 1-2, FLiBe 1-2, B ₂ O ₃ e BeCl ₂	46
Figura 34. Reações nucleares causadas pela irradiação de nêutrons nos produtores: a) Li	
1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B ₂ O ₃ e BeCl ₂	47
Figura 35. Taxas de reação para a produção de trítio na camada produtora para os	
produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B_2O_3 e	
BeCl ₂	48

Figura 36. Espectro neutrônico sobre a camada produtora de trítio para os produtores: a) Li 1-2, Figura 37. Valores de k_{eff} durante a queima do combustível para o sistema com os produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂. 50 Figura 38. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com os produtores Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2: c) 100 keV<E<1 MeV; d) 1 Figura 39. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com os produtores Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂: a) E<100 eV; b) 100 eV<E<100 keV; c) 100 keV<E<1 MeV: Figura 40. Percentual de reações para o ²³²Th após absorção de nêutrons para os produtores no sistema: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, Figura 41. Quantidade total de ²³³U produzida após a queima do combustível para o sistema com os produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, Figura 42. Quantidade total de redução de massa dos actinídeos no final da queima do combustível para o sistema com os produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; Figura 43. Valores de k_{eff} durante a queima do combustível para Li 2 e o sistema sem a Figura 44. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com o Li 2 e o sistema sem a camada produtora: a) E<100 eV; b) 100 eV<E<100 keV; c) 100 keV<E<1 Figura 45. Percentual de reações para o ²³²Th após absorção de nêutrons para Li 2 e o sistema sem a camada produtora......58

LISTA DE TABELAS

Tabela 1. Parâmetros do Sistema Híbrido baseado no Tokamak [4].
Tabela 2. Materiais e dimensões para os diferentes componentes do Sistema Híbrido
Fusão-Fissão [4, 13, 14] 10
Tabela 3. Composição do material combustível com 20% de material fissil [4].
Tabela 4. Propriedades físico-químicas dos materiais refrigerantes [22-29]14
Tabela 5. Composição do material combustível com 10% de material físsil.20
Tabela 6. Propriedades físico-químicas dos materiais produtores [34-55]
Tabela 7. Materiais e dimensões para os diferentes componentes do Tokamak alterados
com a inserção da camada produtora de trítio antes da camada transmutadora
Tabela 8. Materiais e dimensões para os diferentes componentes do Tokamak com a
inserção da camada produtora de trítio após a camada transmutadora40
Tabela 9. Composição do material combustível com 11,5% de material físsil.42
Tabela 10. Produção de ²³³ U a partir do ²³² Th para Li 2 e o sistema sem a camada
produtora
Tabela 11. Quantidade total de redução de massa de TRUs após a queima do combustível
para Li 2 e o sistema sem a camada produtora
Tabela 12. Transmutação de TRUs e taxas de reação para produção de trítio no sistema
com cada refrigerante
Tabela 13. Transmutação de TRUs e taxas de reação para produção de trítio no sistema
com cada produtor de trítio para a camada produtora de trítio posicionada após a camada
transmutadora
Tabela 14. Transmutação de TRUs e taxas de reação para produção de trítio no sistema
com cada produtor de trítio para a camada produtora de trítio posicionada antes da
camada transmutadora

LISTA DE ACRÓNIMOS, ABREVIAÇÕES E SÍMBOLOS

LWR - Light Water Reactor

- AM Actinídeo Menor
- TRU Transurânico
- eV-elétron-Volt
- keV kilo elétron-Volt
- MeV Mega elétron-Volt
- E Energia
- γ Raio gama
- g gramas
- ITER International Thermonuclear Experimental Reactor
- MCNP Monte Carlo N-Particle
- K Kelvin
- °C graus Celsius
- n nêutron
- cm centímetro
- m³ metro cúbico
- MW Mega Watt
- GW-Giga Watt
- s segundo
- α Partícula alfa
- β Partícula beta
- keff Fator de Multiplicação Efetivo
- $\sigma_{\rm f}-$ Seção de choque microscópica de fissão
- σ_{γ} Seção de choque microscópica de fissão de captura
- wt Porcentagem (fração) em massa (weight fraction)
- t Tonelada

1. INTRODUÇÃO

O desenvolvimento de reatores nucleares de potência tem sido um importante ponto em relação à geração de energia elétrica para suprir a demanda mundial atual de energia. Em um reator nuclear há o controle e a liberação de energia por meio da fissão de núcleos do átomo de urânio (U) causada pela irradiação de nêutrons. A maioria das usinas nucleares comerciais atuais, tais como os Reatores Refrigerados à Água Leve - Light Water Reactor (LWR), utilizam de 3 a 5% de enriquecimento de U (aumento na composição de ²³⁵U) como combustível. A probabilidade de fissão após a absorção de nêutrons é alta para nêutrons na faixa térmica de energia (em torno de 0,025 eV) no ²³⁵U. O isótopo mais abundante no reator é ²³⁸U com aproximadamente 95% da composição do combustível 'fresco'. Além disso, esses reatores podem usar combustível nuclear reprocessado, nos guais se recupera o urânio e o plutônio para serem reutilizados nos reatores ao invés de serem estocados como resíduos nucleares [1]. Após as reações de fissão nos nuclídeos que compõem o combustível são gerados os produtos de fissão. A maioria dos produtos de fissão é instável decaindo e, portanto, produzindo outros nuclídeos. O combustível nuclear sob irradiação também gera nuclídeos por absorção de nêutrons, especialmente no 238U, os quais possuem alta radiotoxicidade e meia-vidas muito longas, constituindo uma fonte de radiação significativa por centenas de milhares de anos. Esses nuclídeos são chamados transurânicos (TRU), como Neptúnio (Np), Plutônio (Pu), Amerício (Am) e Cúrio (Cm). O Np, Am e Cm são chamados de Actinídeos Menores (AM). Os TRU juntamente com U, os produtos de fissão e também seus 'filhos' integram o combustível nuclear queimado ou rejeito nuclear.

Os TRU presentes nos combustíveis queimados representam um problema devido à sua meia-vida longa e alta radiotoxicidade [2]. Por outro lado, eles são fissionáveis dependendo da faixa de energia dos nêutrons incidentes. Os TRUs podem ser recuperados do combustível nuclear queimado usando técnicas de reprocessamento, tais como UREX+, PUREX, DIAMEX, SANEX, GANEX, e sendo então reinseridos em sistemas seja para geração de energia, como, por exemplo, o combustível MOX em reatores do tipo LRW, seja para serem transmutados com objetivo principal de diminuição de sua radiotoxicidade e, portanto, de seu impacto ambiental. Dentro deste último contexto, propostas têm sido feitas,

tanto usando sistema híbrido ADS-fissão [3] quanto fusão-fissão [4]. A proposta desta dissertação está inserida na simulação de um sistema híbrido fusão-fissão.

O reator de fusão nuclear baseado em um sistema Tokamak desenvolvido pelo *International Thermonuclear Experimental Reactor* (ITER) é a abordagem mais promissora para alcançar o objetivo de fusão baseado no confinamento magnético. A fusão nuclear realizada no Tokamak, além da possibilidade de geração de energia elétrica, proporciona um espectro de nêutrons mais endurecido e também um elevado fluxo de nêutrons, que pode ser usado para a transmutação de actinídeos por reações de fissão nuclear [5].

O Departamento de Engenharia Nuclear da Universidade Federal de Minas Gerais (DEN/UFMG) vem desenvolvendo trabalhos de simulação computacionais no tema de transmutação de TRUs em diferentes reatores nucleares e sistemas híbridos como Accelerator-Driven Systems (ADS) - sistemas subcríticos movidos por acelerador de prótons e sistemas fusão-fissão (Confinamentos Magnético e Inercial). Anteriormente, trabalhos foram desenvolvidos pelo DEN/UFMG comparando a transmutação em dois sistemas diferentes de fusão-fissão: um Tokamak (confinamento magnético) e o outro um confinamento inercial. Os resultados mostraram que o sistema híbrido baseado em um Tokamak tem taxas de transmutação mais altas do que o confinamento inercial, o que o torna a escolha preferida. O sistema proposto nos trabalhos citados é um Tokamak acoplado a uma camada transmutadora [4]. Nos trabalhos de (Velasquez, 2013; 2016) [4, 6], foi avaliado o melhor posicionamento para a inserção da camada transmutadora no sistema, ou seja, a posição onde o fluxo de nêutrons é mais endurecido e suficientemente alto possibilitando uma maior transmutação de TRUs. Nestes trabalhos, a técnica de reprocessamento considerada foi a UREX+, com características não-proliferantes já que recupera conjuntamente Pu e os AMs (Am, Cm e Np). Como refrigerante da camada transmutadora, foi usada a liga de lítio-chumbo com enriquecimento de 20% em Li-6 (Li₁₇Pb₈₃) proposta [7]. O uso de lítio no refrigerante aumenta a probabilidade de produção de trítio. Entretanto, isto provoca alterações sobre o espectro de nêutrons no sistema, uma vez que o Li-6 é um absorvedor de nêutrons.

Como o principal objetivo do sistema híbrido fusão-fissão é usar os nêutrons provenientes da fusão para transmutar os TRUs por reações de fissão, o primeiro objetivo deste trabalho é analisar materiais candidatos a serem utilizados como refrigerante que potencializem a transmutação dos TRU no Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak. Dependendo da escolha do refrigerante, a produção de trítio, necessário para sustentar as reações de fusão no sistema, pode ser afetada. Para este fim, o segundo objetivo deste trabalho é analisar diferentes materiais que possam ser usados como produtores de trítio considerando a inserção de uma camada produtora de trítio em diferentes locais no sistema híbrido. O objetivo de tal análise é encontrar qual o melhor material para a produção de trítio, bem como a melhor localização para a camada produtora, avaliando os parâmetros neutrônicos de modo a manter uma alta taxa de transmutação dos TRUs.

Este trabalho está dividido na seguinte ordem:

 No Capítulo 2 é apresentada uma revisão bibliográfica sobre o Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak. Este capítulo também apresenta a descrição do sistema desenvolvido pelo DEN no qual este trabalho foi baseado, onde evidencia o local mais adequado para a camada transmutadora, o que aumenta a transmutação de nuclídeos TRUs; proposta do trabalho;

• No Capítulo 3 são descritos dados e propriedades sobre diferentes materiais refrigerantes, bem como análises neutrônica e de transmutação após os resultados obtidos para cada refrigerante no sistema; conclusão sobre o refrigerante mais adequado para o sistema;

 No Capítulo 4 são descritos dados e propriedades sobre diferentes materiais produtores de trítio, bem como análises neutrônica e de transmutação após os resultados obtidos para cada produtor em diferentes posicionamentos da camada produtora no sistema; conclusões sobre o melhor produtor e melhor posicionamento da camada produtora;

• No Capítulo 5 é descrita a análise final sobre o presente trabalho;

• No Capítulo 6 é apresentada a conclusão final sobre o presente trabalho.

2. SISTEMA HÍBRIDO FUSÃO-FISSÃO BASEADO NO TOKAMAK

2.1. DESCRIÇÃO DO SISTEMA

O Tokamak é derivado das palavras russas "TOroidal'naya KAmera s MAgnitnymi Katushkami", que significa câmara toroidal com bobinas magnéticas. A maioria dos dispositivos de fusão atual utilizados em todo o mundo baseia-se nesta tecnologia, tais como: T-15 Tokamak (Rússia), Tore Supra (França), ADITYA (Índia), FTU (Itália), ASDEX (Alemanha), ALCATOR C-mod e DIII-D (EUA), JT-60 (Japão), EAST (China), KSTAR (República da Coréia), JET (Reino Unido) e ITER [6, 8].

Os principais componentes do Tokamak baseados no ITER são: sistema do cobertor, sistema do diversor, a câmara de vácuo e o sistema magnético, formado pelos sistemas de campo toroidal e poloidal, solenoide central e o criostato. [8]. O recipiente a vácuo é um recipiente hermeticamente fechado que contém o plasma sem tocar a Primeira Parede. O cobertor é composto pelas paredes internas do dispositivo, como a primeira parede, dissipador de calor e bloco protetor. O diversor extrai as cinzas de hélio geradas e calor do dispositivo de fusão, estando situado na parte inferior do dispositivo. Os ímãs, como mencionado anteriormente, são compostos pelo sistema de campo toroidal e pelo sistema de campo poloidal. O ITER tem 18 magnetos de campo toroidais em forma de D rodeando a câmara de vácuo e a sua principal função é confinar as partículas de carga no plasma, produzindo um campo magnético de 11,8 Tesla. Por outro lado, o ITER tem 6 campos poloidais em forma de anel situados fora da estrutura toroidal, produzindo um campo magnético de 6 Tesla. O criostato deve fornecer um alto vácuo no sistema e é responsável pelo resfriamento dos ímãs supercondutores e do sistema [8]. O desenvolvimento do Tokamak é uma colaboração internacional e financeira apoiada por diferentes países: EUA, Rússia, França, UE, China, Japão, República da Coréia e Índia, onde o objetivo principal é alcançar a viabilidade científica e tecnológica para a fusão nuclear no planeta.

O Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak é uma maneira promissora de gerar energia através da fusão nuclear e diminuir rejeitos de alta radiotoxicidade, induzindo a transmutação dos mesmos. O propósito do sistema é utilizar o espectro de nêutrons

endurecido¹ produzidos em reações de fusão para induzir reações de fissão em actinídeos [9]. O sistema consiste em um reator de fusão nuclear acoplado a uma camada de fissão subcrítica, como mostrado na Figura 1. O dispositivo de fusão é formado por um plasma, que consiste em partículas carregadas de gás suscetíveis a interações eletromagnéticas permitindo o confinamento do plasma por campos magnéticos.



Figura 1. Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak [10].

A temperatura do plasma varia entre 10^8 a 10^9 K, o que é necessário para induzir reações de fusão entre o Deutério (²H ou D) e o Trítio (³H ou T) [7]. A taxa de reação de fusão D-T nesta temperatura é a mais alta e é suficiente para superar a força de repulsão Coulombiana entre os dois núcleos dos respectivos átomos, como mostrado na Figura 2.

¹Espectro de nêutrons endurecido: alto fluxo de nêutrons na faixa rápida de energia.



Figura 2. Taxas de reação de fusão nuclear [7].

A reação de fusão entre deutério e trítio, a qual é mostrada abaixo, é capaz de produzir um fluxo de nêutrons de aproximadamente 10^{14} n.cm⁻².s⁻¹ [7] com alta energia.

$$D + T \rightarrow \alpha (3.5 \, MeV) + \frac{1}{0}n (14, 1 \, MeV)$$
 (1),

onde α é o núcleo de um átomo de Hélio (${}_{2}^{4}He$).

O plasma do Tokamak é muito menos denso que os sólidos típicos; então pode-se supor que os nêutrons não colidem dentro do plasma. Assim, os nêutrons de 14,1 MeV de energia produzidos pela reação de fusão entre deutério e trítio saem do plasma depositando sua energia nos materiais das camadas mais externas do sistema, sendo de maior interesse a indução de reações de fissão nuclear na camada transmutadora.

Em resumo, o dispositivo de fusão funciona como uma fonte externa de nêutrons de alta energia para a camada subcrítica. Quando as reações de fusão são interrompidas no dispositivo de fusão, as reações de fissão na camada subcrítica diminuem até cessarem, o que permite o controle total do sistema em relação à população de nêutrons [10]. Portanto, o controle das reações de fissão é alcançado indiretamente pelo controle da reação de fusão, não

necessitando o uso de sistemas de controle de criticalidade, como venenos queimáveis ou barras de controle [11].

A camada de transmutação, que envolve o dispositivo de fusão, contém os nuclídeos TRUs produzidos por reatores nucleares convencionais, tais como LWRs. A probabilidade de fissão por nêutron absorvido ($\sigma_{f'}(\sigma_f + \sigma_{\gamma})$) para os TRUs aumenta para nêutrons com alta energia, como mostrado na Figura 3.



Figura 3. Probabilidade de fissão por neutron absorvido para TRU [12].

Além de geração de energia, as reações de fissão causadas nos TRUs poderiam reduzir a radiotoxicidade dos resíduos nucleares. Nos reatores térmicos comerciais, como os LWRs, o espectro de nêutrons no núcleo do reator não é tão endurecido. Portanto, estes reatores não são eficazes para transmutar TRUs. O Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak pode fornecer um espectro de nêutrons mais endurecido e um alto fluxo de nêutrons pelas reações de fusão entre deutério e trítio, aumentando a probabilidade de reações de fissão em TRUs.

2.2. SISTEMA MODELADO

O Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseia-se nos materiais e também nas dimensões radiais propostos pelo ITER [8]. No entanto, algumas dimensões foram modificadas nos trabalhos desenvolvidos no DEN/UFMG [4, 13, 14] para a inserção da camada transmutadora no interior do ITER, considerando a necessidade de estudos complementares quanto à

viabilidade dessas modificações. Estes trabalhos mostraram a posição ideal dentro das dimensões do ITER para colocar a camada transmutadora [6, 12-14].

Outros trabalhos sobre este tema analisaram diferentes espessuras para a camada transmutadora usando $Li_{17}Pb_{83}$ (liga de lítio-chumbo com 20% de enriquecimento em ⁶Li) como material refrigerante da camada transmutadora. Além de se obter altas taxas de transmutação e possibilidade de geração de energia elétrica pela retirada do calor gerado pelas reações de fissão, o $Li_{17}Pb_{83}$ produz, concomitantemente, trítio para suprir as reações de fusão ocorridas no plasma.

A Figura 4 mostra a camada transmutadora dentro do sistema, limitada pelo Dissipador de Calor - dispositivo responsável por diminuir a temperatura do sistema ao lado do plasma e da Primeira Parede que circunda o plasma - e o Bloco Protetor - separa a camada transmutadora de dispositivos mais externos, como câmara de vácuo e as bobinas de campo toroidal, protegendo estes materiais contra irradiação de nêutrons. A geometria usa a interseção de cilindros e planos para delimitar os limites do reator de fusão e da camada transmutadora no dispositivo de fusão. Além disso, permite simular parte do dispositivo individualmente. A Tabela 1 as principais especificações dos parâmetros do plasma do sistema baseados no ITER. A Tabela 2 mostra as dimensões do sistema utilizadas nos trabalhos anteriores [4, 13, 14].



Figura 4. Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak [4].

Parâmetros	Valor
Raio menor, r (m)	2
Raio maior, R (m)	6,21
Alongamento do plasma	1,85
Triangularidade	0,33
Campo magnético toroidal (T)	5,3
Corrente de plasma (mA)	15
Temperatura do plasma (keV)	10
Tipo de plasma	D-T
Volume câmara de plasma (m ³)	837
Potência de Fusão (MW)	250-500
Potência de Fissão (MW)	3000

Tabela 1. Parâmetros do Sistema Híbrido baseado no Tokamak [4].

Sistema	Componente	Distância Radial (cm) Material		
Solenoide	Módulo de inserção	80 a 90	27% Nb3Sn + 30% Incoloy 908 + 30% SS316 + 10% resinas +3% Al ₂ O ₃	
Central	Supercondutor e isolantes	90 a 180	45% Nb3Sn + 5% Al ₂ O ₃ + 50% Incoloy 908	
	Suporte externo	180 a 200	SS316L(N)IG	
	Parede da caixa	220 a 229,5	SS316L(N)IG	
Bobinas de campo toroidal	Supercondutor e isolantes	229,5 a 310,5	45% Nb3Sn + 5% Al ₂ O ₃ + 50% Incoloy 908	
	Parede da caixa	310,5 a 320	SS316L(N)IG	
Proteção Térmica da Câmara de Vácuo	Parede	320,6 a 322,8	SS304L	
	Parede	322,8 a 328,8	SS316L(N)IG	
Camara de	Enchimento	328,8 a 350,5	SS304B7, 55 %; água, 45 %	
v acuo	Parede	350,5 a 356,5	SS316L(N)IG	
	Bloco protetor	357 a 399	SS316L(N)IG	
Cobertor	Dissipador	399 a 401	CuCrZr-IG	
	Primeira parede	401 a 402	W-1,1TiC	
Câmara do Plasma		402 a 853	Vácuo	
	Primeira parede	853 a 854	S-Be65	
	Dissipador	854 a 856	CuCrZr-IG	
Cobertor	Camada Transmutadora	856 a 896	Transurânicos diluídos em tório + refrigerante Li ₁₇ Pb ₈₃	
	Bloco Protetor	896 a 898	SS316L(N)IG	
C ²	Parede	898,5 a 904,5	SS316L(N)IG	
Vácuo	Enchimento	904,5 a 967,5	SS304B7, 55 %; água, 45 %	
	Parede	967,5 a 973,5	SS316L(N)IG	
Proteção Térmica da Câmara de Vácuo	Parede	973,5 a 975,5	SS304L	
	Parede da caixa	976 a 985,5	SS316L(N)IG	
Bobinas de campo toroidal	Supercondutor e isolantes	1085,5 a 1165,5	45% Nb3Sn + 5% Al2O3 + 50% Incoloy 908	
	Parede da caixa	1165,5 a 1176	SS316L(N)IG	
Criostato	Parede	1400 a 1410	SS304L	
Blindagem biológica	Parede	1455 a 1655	Concreto Br3	

Tabela 2. Materiais e dimensões para os diferentes componentes do Sistema Híbrido Fusão-

Fissão [4, 13, 14].

A composição do combustível na camada transmutadora utilizada nestes trabalhos foi obtida a partir de combustível nuclear queimado proveniente do reator nuclear Angra I (PWR) com enriquecimento inicial de 3,1%, após uma queima de 33 GWd/t e mantido durante 5 anos na piscina de combustível nuclear usado [15].

Esta matriz de combustível nuclear queimado foi reprocessada pela técnica de reprocessamento UREX+. Esta técnica de reprocessamento melhora a tecnologia PUREX devido à mistura do plutônio com actinídeos menores [16, 17]. Após o reprocessamento, a mistura de plutônio com AMs foi diluída em tório. A composição do combustível utilizada em [4] é mostrada na Tabela 3.

Nuclídeo	Fração em massa	Nuclídeo	Fração em massa	Nuclídeo	Fração em massa
²³² Th	5,9773E+01	²⁴² Pu	1,712E+00	²⁴⁴ Cm	8,616E-02
²³⁷ Np	9,2809E-01	²⁴¹ Am	9,9483E-01	²⁴⁵ Cm	4,5398E-03
²³⁸ Pu	4,9156E-01	^{242m} Am	2,6609E-03	²⁴⁶ Cm	5,843E-04
²³⁹ Pu	1,4344E+01	²⁴³ Am	3,7358E-01	¹⁶ O	1,2021E+01
²⁴⁰ Pu	6,0155E+00	²⁴² Cm	2,157E-05		
²⁴¹ Pu	3,2516E+00	²⁴³ Cm	1,1461E-03		

Tabela 3. Composição do material combustível com 20% de material físsil [4].

2.3. PROPOSTA DO TRABALHO

A primeira análise deste trabalho tem por objetivo o aumento da transmutação de TRUs utilizando diferentes materiais refrigerantes, sem considerar a produção de trítio. Os candidatos considerados para refrigerar o sistema foram sódio, chumbo, chumbo-bismuto, lítio-chumbo, sódio-potássio e magnésio-chumbo. A segunda análise, depois de encontrar o melhor refrigerante para a transmutação, avalia a melhor posição para a camada produtora de trítio para diferentes materiais como lítio, cloreto de berílio, óxido de boro e outras ligas contendo lítio. Finalmente, é apresentado um modelo que inclui os melhores materiais para refrigeração e para produção de trítio, bem como melhor local para posicionar a camada produtora de trítio no Sistema Híbrido Fusão-Fissão.

Neste trabalho, utilizou-se o NJOY [18] para gerar as seções de choque dos diferentes nuclídeos considerados à temperatura de trabalho determinada, conforme a metodologia proposta nos trabalhos desenvolvidos anteriormente [4,13,14]. Para a obtenção dos resultados requeridos, foi utilizado o código MONTEBURNS [19] que acopla os códigos *Monte Carlo N-Particle Transport Code - Version 5* (MCNP5) [20] e o ORIGEN2.1 [21].

Os parâmetros neutrônicos, tais como taxas de reação e fluxo de nêutrons, são obtidos a partir do MCNP e, em seguida, usados pelo ORIGEN para realizar a queima do combustível, o que inclui o *buildup*, decaimento e processamento de materiais radioativos do cálculo neutrônico colapsado para um grupo de energia. Em seguida, a composição isotópica obtida no ORIGEN retorna ao MCNP para calcular o fluxo da nova composição que é submetida à fonte de nêutrons, ambas as fontes de fusão e fissão no caso, e assim por diante, até o final de cada ciclo. Ao final de cada ciclo, o MONTEBURNS calcula valores a partir dos dados obtidos, como energia por fissão, normalização de fluxo, constantes físicas do reator, fator de multiplicação efetivo, potência, queima, dentre outros.

Todas as simulações foram realizadas no MCNP5 usando o registro de partículas da interação de nêutrons com a matéria e outros parâmetros neutrônicos, de modo a se calcular as taxas de reação, fluxo de nêutrons sobre superfícies e volumes utilizando uma fonte fixa de nêutrons provenientes das reações de fusão. Para este fim, o número de partículas (nps) foi definido como 10⁸ utilizando uma fonte externa genérica, devido às dimensões consideradas para os devidos cálculos serem pequenas comparadas com as dimensões do sistema, de modo a atingir um menor erro relativo dos valores calculados, garantindo maior precisão dos dados obtidos.

Para a análise da composição do combustível durante a queima, bem como para parâmetros neutrônicos, foi designado como 40 o número de ciclos internos e o número de etapas foi fixado em 10, onde cada etapa tem um intervalo de 365 dias. Assim, a queima de combustível foi realizada por 10 anos (3650 dias), sem interrupções e/ou recargas. Devido ao volume da camada transmutadora, não houve a necessidade de um maior número de histórias para o cálculo de parâmetros neutrônicos. Portanto, o nps foi definido como 10^6 .

3. REFRIGERANTES

Os reatores nucleares usam um material de refrigeração para remover o calor gerado pelas reações de fissão garantindo a segurança do sistema e também para a geração de energia elétrica. Devido ao fato de o Sistema Híbrido Fusão-Fissão apresentar um espectro de nêutrons mais endurecido, os materiais indicados para refrigeração da camada transmutadora são geralmente metais líquidos. Os metais líquidos possuem altos pontos de ebulição, não necessitando que o sistema seja pressurizado, boas propriedades de transferência de calor e condução térmica. Em relação às propriedades neutrônicas, eles apresentam baixa moderação de nêutrons, mantendo o espectro de nêutrons mais endurecido. Os refrigerantes analisados neste trabalho foram o chumbo (Pb), sódio (Na), e as ligas chumbo-bismuto (LBE), sódiopotássio (NaK 1 e NaK 2), lítio-chumbo (LiPb 1 e LiPb 2 - material refrigerante usado nos estudos anteriores sobre o Sistema Híbrido Fusão-Fissão desenvolvidos no DEN/UFMG nos quais este trabalho se baseia) e magnésio-chumbo (MgPb). Estas ligas metálicas são eutéticas, o que significa que o ponto de fusão da liga metálica é reduzido em comparação com o ponto de fusão mais elevado dentre os seus componentes, assegurando de maneira mais eficiente que o refrigerante permaneça no estado líquido. No sistema considerado neste trabalho, a temperatura média do refrigerante é de 613,15 K (340 °C).

3.1. PROPRIEDADES DOS REFRIGERANTES

3.1.1. Físico-Químicas

Os materiais de refrigeração propostos e suas propriedades, como porcentagem em massa da mistura, densidade, pontos de fusão e de ebulição são apresentados na Tabela 4. Os refrigerantes considerados possuem pontos de fusão abaixo da temperatura média do refrigerante no sistema (340 °C), garantindo sua permanência no estado líquido. Como a porcentagem de lítio nas ligas de lítio-chumbo é baixa, considerou-se não haver alterações nas propriedades físicas no LiPb 2 em comparação com LiPb 1.

Refrigerante	Porcentagem em	Densidade (g/cm ³)	Ponto de	Ponto de
	massa	$a \sim 400^{\circ}C$	Fusão (°C)	Ebulição (°C)
Na	-	0,856	97,8	881
Pb	-	10,51	327,5	1740
NaK 1	22%Na - 78%K	0,785	12.6	785
NaK 2	44%Na - 56%K	0,812	6.9	812
LBE	45%Pb - 55%Bi	10,19	125	1670
LiPb 1	0,7%Li-99,3%Pb	9,33	235	1665
LiPb 2 *	0,7%Li – 99,3%Pb	9.33	235	1665
	$(\operatorname{com} 20\% \operatorname{de} {}^{\circ}\operatorname{Li})$			
MgPb	2,5%Mg-97,5%Pb	9,21	248	1610

Tabela 4. Propriedades físico-químicas dos materiais refrigerantes [22-29].

3.1.2. Neutrônicas

No sistema considerado, o material refrigerante deve apresentar uma baixa seção de choque de espalhamento elástico (ou também inelástico) de modo a não moderar de maneira significativa os nêutrons, principalmente os de fusão, diminuindo a probabilidade de fissão de TRUs especialmente AMs.

O refrigerante $Li_{17}Pb_{83}$ utilizado em [4], nomeado neste trabalho como LiPb 2, contêm 20% de ⁶Li em sua composição de modo a aumentar a produção de trítio no sistema. A composição isotópica natural do lítio é formada por 6,5 wt% de ⁶Li e 93,5 wt% de ⁷Li. As reações para produção de trítio por irradiação de nêutrons nos isótopos naturais de Li são:

⁶Li + n
$$\rightarrow$$
 T + α + 4,8 MeV (2),

onde a probabilidade para a reação ocorrer é maior para nêutrons térmicos, e

$$^{7}\text{Li} + n \rightarrow T + \alpha + n'$$
 (E_n > 2,5 MeV) (3),

sendo que o nêutron precisa de uma energia superior a 2,5 MeV para a reação ocorrer.

As imagens das seções de choque para as diferentes reações induzidas por nêutrons foram geradas usando o *Visual Editor* (Vised) para cada material refrigerante a partir das bibliotecas geradas a partir do NJOY para o MCNP, considerando a temperatura média de 613,15 K.

A Figura 5 mostra as seções de choque microscópicas (a) total, (b) de absorção e (c) de espalhamento elástico para o refrigerante Na e comparadas com o refrigerante utilizado como referência (LiPb 2). Na Figura 5-a, pode ser visto alguns picos na seção de choque total do Na acima do LiPb 2. A seção de choque de absorção de Na tem picos mais altos que LiPb 2 em torno de 10 MeV e na faixa entre 0,1 MeV de energia como mostrado na Figura 5-b. Por outro lado, para a seção de choque de espalhamento elástico (Figura 5-c), Na tem apenas um pico acima de LiPb 2 a 0,01 MeV de energia. O restante dos valores permanece abaixo de LiPb 2. Ou seja, o Na tem alguns picos específicos nos quais tem maior probabilidade de interação com nêutrons do que o LiPb 2, principalmente na faixa mais endurecida de energia.



Figura 5. Seções de choque microscópicas dos refrigerantes LiPb 2 Na: (a) total, (b) de absorção e (c) de espalhamento elástico.

A Figura 6 mostra a seções de choque microscópica (a) total, (b) de absorção e (c) de espalhamento elástico para os refrigerantes NaK 1 e NaK 2 avaliados e comparados com o usado como referência LiPb 2. A diferença na porcentagem de potássio faz com que alguns picos nas seções de choque ao longo do espectro de energia possam ser vistos claramente na Figura 6-a. A Figura 6-b mostra que ambos possuem maior seção de choque de absorção para energias acima de 1 MeV. NaK 1 e NaK 2 apresentam maiores picos na seção de choque de espalhamento na região de ressonância na faixa entre 10^{-2} a 0,1 MeV, onde no restante os valores de seção de choque para Na são maiores, como mostrado na Figura 6-c,



Figura 6. Seções de choque microscópica total dos refrigerantes LiPb 2, NaK 1 e NaK 2: (a) total, (b) de absorção e (c) de espalhamento elástico.

A Figura 7 mostra a seções de choque microscópicas (a) total, (b) de absorção e (c) de espalhamento elástico para os refrigerantes Pb e LBE avaliados e comparados com o de referência LiPb 2. A Figura 7-a mostra que LiPb 2 possui uma maior seção de choque total do que Pb e LBE nas energias térmicas, mas menor na faixa rápida. LiPb 2 também possui uma maior seção de choque de absorção no espectro térmico e na maior parte da região de ressonância do que Pb e LBE; entretanto, LiPb 2 possui seção de choque de absorção de

nêutrons ligeiramente menor do que LBE e Pb na faixa de 14,1 MeV de energia como mostrado na Figura 7-b. Além disso, o espalhamento elástico mostrado na Figura 7-c do refrigerante LiPb 2 é relativamente menor sobre todo o espectro de nêutrons do que LBE e Pb.



Figura 7. Seções de choque microscópica dos refrigerantes LBE, Pb e LiPb 2: (a) total, (b) de absorção e (c) de espalhamento elástico.

A Figura 8 mostra as seções de choque microscópicas (a) total (b) de absorção e (c) de espalhamento elástico para os refrigerantes MgPb e LiPb1 avaliados e comparados com o usado como referência LiPb 2. A Figura 8-a mostra que o LiPb 2 possui uma maior seção de choque total do que LiPb 1 e MgPb nas energias térmicas até aproximadamente 10⁻⁴ MeV. Em relação à seção de choque de absorção (Figura 8-b), MgPb possui menores valores do que LiPb 1 e LiPb 2 na região de energias térmicas, mas para energias em torno de 10 MeV de energia, o valores de seção de choque de absorção são maiores que ambas. Em contrapartida, o espalhamento elástico não mostrou diferença significativa, como pode ser visualizado na Figura 8-c.



Figura 8. Seções de choque microscópica dos refrigerantes LiPb 2, LiPb 1 e MgPb: (a) total, (b) de absorção e (c) de espalhamento elástico.

Aparentemente, os refrigerantes que têm chumbo em sua composição podem ser bons candidatos para a refrigeração da camada transmutadora do sistema híbrido, levando em consideração suas menores seções de choque de absorção no espectro mais endurecido, mantendo uma maior população de nêutrons no sistema e, portanto, na camada transmutadora. Embora a seção de choque de espalhamento seja maior nesses refrigerantes, a perda de energia da colisão de nêutrons com átomos de chumbo é menor devido à maior massa nuclear. Assim, também é esperado que a moderação de nêutrons seja menor nesses refrigerantes.

Os refrigerantes da camada transmutadora foram escolhidos de acordo com suas propriedades favoráveis para uso em reatores rápidos. As misturas de metais tornam a composição eutética, isto é, a temperatura de fusão da mistura é inferior à temperatura de fusão de pelo menos um de seus elementos. Esta é uma vantagem porque uma menor quantidade de calor retirada do reator seria necessária para manter o refrigerante no estado líquido. Por exemplo, a mistura LBE tem um ponto de fusão de 125 °C, enquanto chumbo e bismuto têm pontos de fusão de 327,5 °C e 271,3 °C, respectivamente.

3.2. GEOMETRIA DO SISTEMA

O esboço do Sistema Híbrido Fusão-Fissão utilizado para análise do material refrigerante foi o mesmo que aquele utilizado no trabalho de referência, tanto quanto aos parâmetros de geometria do sistema quanto aos materiais utilizados [4, 6], de acordo com as diretrizes do ITER [30] e o artigo da *Fusion Engineering and Design* [31]. W-1,1TiC [32] foi utilizado como material interno para a Primeira Parede e S-Be65 como material externo da Primeira Parede.

3.3. COMBUSTÍVEL NUCLEAR

As simulações do Sistema Híbrido Fusão-Fissão para a análise do material refrigerante foram realizadas de tal forma que a composição do combustível foi de apenas 10% de material físsil, pois os efeitos da troca do material refrigerante poderiam causar um aumento de reatividade dependendo da quantidade de material físsil na camada transmutadora, o que poderia levar o sistema à criticalidade ou até mesmo à super criticalidade. Portanto, os baixos níveis de material físsil no combustível (em comparação com o trabalho de referência), reprocessado pela técnica UREX+, neste caso, implicam em uma maior segurança para manter o sistema na condição de subcriticalidade devido a menores seções de choque de espalhamento elástico e de absorção para determinados refrigerantes. A composição de combustível utilizada é apresentada na Tabela 5. Esta composição foi utilizada para todas as simulações realizadas em relação à análise do material refrigerante. Para cada análise, foi alterado apenas o material refrigerante, mantendo os parâmetros de composição do combustível e as características geométricas do reator.
Nuclídeo	Fração em massa	Nuclídeo	Fração em massa	Nuclídeo	Fração em massa
²³² Th	7,3836E+01	²⁴² Pu	8,5552E-01	²⁴⁴ Cm	4,3057E-02
²³⁷ Np	4,6379E-01	²⁴¹ Am	4,9714E-01	²⁴⁵ Cm	2,2687E-03
²³⁸ Pu	2,4565E-01	^{242m} Am	1,3297E-03	²⁴⁶ Cm	2,9199E-04
²³⁹ Pu	7,1683E+00	²⁴³ Am	1,8669E-01	¹⁶ O	1,2068E+01
²⁴⁰ Pu	3,0061E+00	²⁴² Cm	1,0781E-05		
²⁴¹ Pu	1,6249E+00	²⁴³ Cm	5,7274E-04		

Tabela 5. Composição do material combustível com 10% de material físsil.

3.4. RESULTADOS E ANÁLISES DOS REFRIGERANTES

A Figura 9 apresenta a evolução temporal do k_{eff} para diferentes materiais refrigerantes. Inicialmente, pode ser observado que a porcentagem de material físsil no combustível foi adequada devido aos valores de k_{eff} , os quais se mantiveram bem abaixo de condições críticas em razão da baixa porcentagem de material físsil proposta para as simulações. Por outro lado, se fosse aplicado 20% de material físsil no combustível como foi realizado em [4], o sistema poderia atingir valores críticos ou até supercríticos devido à mudança do material refrigerante. O fator de multiplicação efetivo do sistema para diferentes refrigerantes apresentou comportamento similar durante a queima, apesar de ser observada uma diferença significativa nos valores de k_{eff} para cada material refrigerante. Além disso, a simulação realizada mostrou que o sistema com o refrigerante (Li₁₇Pb₈₃) usado em [4], aqui denominado como LiPb 2, apresentou menores valores de k_{eff} do que o sistema com os refrigerantes LBE, Pb, MgPb e LiPb 1.

O sistema com o refrigerante NaK 1 apresentou os valores de k_{eff} mais baixos devido à concentração de potássio, que aumenta a probabilidade de absorção de nêutrons, como mostrado pela seção de choque microscópica de absorção. Os valores de k_{eff} apresentados pelo sistema com o refrigerante Na foram maiores do que com os refrigerantes NaK 1 e NaK 2, devido à alta absorção de nêutrons do potássio, principalmente em se tratando de um espectro de nêutrons mais endurecido. O sistema híbrido usando o refrigerante LiPb 2

apresentou valores de k_{eff} maiores em relação ao sistema com refrigerantes com sódio em sua composição.

O sistema com o refrigerante LiPb 1 apresentou maiores valores de k_{eff} do que com os refrigerantes à base de sódio e também do que com LiPb 2, devido à sua menor absorção de nêutrons pela menor concentração de ⁶Li em sua composição. Foi observado na Figura 10 que o sistema com o uso de outros refrigerantes apresenta valores de k_{eff} superiores aos do sistema com o LiPb 1, os quais foram LBE, Pb e MgPb, respectivamente. Esses materiais apresentam baixa seção de choque de absorção de nêutrons na faixa térmica, o que permite uma maior probabilidade de fissão de nuclídeos fisseis no combustível, resultando no aumento da população de nêutrons do sistema. O sistema híbrido usando o refrigerante MgPb apresentou menores valores de k_{eff} do que Pb e LBE, devido a alta probabilidade de absorção de nêutrons em torno de 10 MeV de energia no MgPb. Em relação ao sistema com aos refrigerantes Pb e LBE, os valores de k_{eff} tiveram uma evolução similar ao longo do tempo, assim como o comportamento de suas seções de choque, exceto para a seção de choque total do LBE que apresentou um pico de ressonância em aproximadamente 1 keV de energia.



Figura 9. Evolução temporal de k_{eff} no sistema com diferentes refrigerantes.

O fluxo de nêutrons na camada transmutadora em função do tempo é mostrado na Figura 10 para o sistema com cada material refrigerante em diferentes faixas de energia. A Figura 10-a mostra o fluxo de nêutrons para E<100 eV. O fluxo diminui devido à absorção de nêutrons térmicos no sistema. A Figura 10-b apresenta o fluxo de nêutrons na faixa epitérmica, onde o sistema com os refrigerantes compostos por sódio reportaram valores maiores. Considerando a faixa de energia entre 100 eV<E<100 keV o maior fluxo corresponde ao sistema com o refrigerante Na, o que provoca aumento na probabilidade de captura radioativa no tório, reduzindo a população de nêutrons do sistema e, consequentemente, os valores de k_{eff}. O espectro de nêutrons mais endurecido, como mostrado na Figura 10-d, favorece a transmutação de transurânicos, dado a alta probabilidade de fissão. O sistema com os refrigerantes LiPb 1 e LiPb 2 apresentaram alto fluxo de nêutrons com espectro endurecido. Apesar disso, os valores de k_{eff} não foram maiores do que o sistema com outros refrigerantes, devido à alta absorção de nêutrons térmicos nestes refrigerantes pela presença do lítio, diminuindo a probabilidade de reações de fissão em nuclídeos fisseis - 233 U, 235 U, 239 Pu e 241 Pu.



Figura 10. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com cada refrigerante: a) E<100 eV; b)100 eV<E<100 keV; c) 100 keV<E<1 MeV; d) 1 MeV<E<20 MeV.

A Figura 11-a representa a diferença de massa entre a composição do combustível após a queima e a composição inicial. Os isótopos acompanhados na composição do combustível após 10 anos de queima foram: ²³²Th, ²³³Th, ²³¹Pa, ²³²Pa, ²³²U, ²³³U, ²³³U, ²³⁵U, ²³⁶U, ²³⁶U, ²³⁷U, ²³⁸U, ²³⁷Np, ²³⁸Np, ²³⁸Np, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴²Pu, ²⁴¹Am, ²⁴²Am, ²⁴³Am, ²⁴²Cm, ²⁴³Cm, ²⁴⁴Cm, ²⁴⁵Cm e ²⁴⁶Cm. Estes isótopos foram acompanhados devido ao propósito do trabalho de se obter uma maior transmutação de TRUs otimizando o sistema a partir do uso de diferentes materiais refrigerantes para a camada transmutadora. O comportamento apresentado por cada elemento analisado foi similar independentemente do refrigerante considerado. Os valores apresentam um aumento da quantidade de massa do amerício e principalmente do urânio. O plutônio e tório apresentaram alta redução de massa em comparação com a quantidade inicial. O cúrio apresentou um aumento na quantidade de massa em comparação com a quantidade inicial irrelevante em comparação com os outros elementos analisados. Dentre os AMs, o amerício apresentou o maior valor de aumento de massa em relação à sua composição inicial.

A Figura 11-b apresenta os nuclídeos que, dentre os analisados, tiveram as maiores variações de massa em cada caso, representando quase a variação total da massa do respectivo elemento. Como já apresentado, o amerício influenciou mais na variação de massa dos AMs do que o neptúnio e o cúrio, sendo o ²⁴¹Am o isótopo predominante no crescimento de amerício e também na variação da massa dos AMs. Embora o ²³⁹Pu tenha tido uma maior influência na redução de massa do plutônio devido à sua transmutação, também houve uma grande contribuição na redução da quantidade de massa do plutônio causada pelo ²⁴¹Pu. O ²³³U foi o isótopo predominante em relação à produção de urânio no combustível.



Figura 11. Variação da massa de actinídeos após a queima do combustível para o sistema com cada refrigerante: a) elemento e b) isótopo.

A Figura 12 representa o percentual de reações de ²³²Th após a absorção de nêutrons, de acordo com as seções de choque das reações. Considerou-se a razão entre a produção dos isótopos ²³³Th, ²³³Pa e ²³³U e a partir da redução da quantidade de massa do ²³²Th. As reações de fissão no ²³²Th também foram acompanhadas. Os produtos de fissão não foram acompanhados durante a queima do combustível em nenhuma etapa neste trabalho. A captura radioativa pode ser considerada insignificante devido à baixa formação do ²³³Th (cerca de 5x10⁻⁴% das reações consideradas para todos os casos). A produção de ²³³U é predominante no sistema para todos os materiais refrigerantes. Houve uma pequena formação de ²³³Pa no sistema sendo similar para todos os refrigerantes utilizados. O ²³³Pa tem uma meia-vida de aproximadamente 27 dias e se converte em ²³³U pela reação de decaimento β. O sistema com os refrigerantes à base de sódio apresentaram maior percentual de produção de ²³³U, principalmente para o sistema com o refrigerante Na, comparados ao sistema com os refrigerantes à base de chumbo.



Figura 12. Percentual de reações do ²³²Th após a absorção de nêutrons no sistema para cada refrigerante.

Por outro lado, como resultado de alta probabilidade de reações de fissão do ²³²Th em um espectro de nêutrons endurecido, como mostrado na Figura 13, os percentuais de fissão no sistema com os refrigerantes à base de sódio são menores do que o sistema com os refrigerantes à base de chumbo, devido a um menor fluxo de nêutrons rápidos na camada transmutadora com o uso de refrigerantes à base de sódio (Figura 10-d).



Figura 13. Seções de choque de captura radioativa e fissão do ²³²Th.

A Figura 14-a mostra o aumento do isótopo ²³³U após a queima de combustível para o sistema com cada refrigerante. O sistema com o refrigerante Na apresentou maiores valores de produção de ²³³U que os demais refrigerantes devido ao seu elevado fluxo de nêutrons na faixa de energia 100 eV<E<100 keV, o que favorece reações de captura radioativa no ²³²Th, levando a produção de ²³³U. O sistema com os refrigerantes NaK 2 e o NaK 1 também

apresentaram alta produção de ²³³U pelo mesmo motivo - alto fluxo de nêutrons epitérmicos favorecendo a geração de ²³³U por meio do ²³²Th. Apesar desta vantagem, eles não apresentaram valores de k_{eff} tão altos quanto o sistema com os refrigerantes à base de chumbo, o que também pode ser explicado pelas maiores reações de decaimento β do que reações de fissão após a absorção de nêutrons pelo ²³²Th em refrigerantes à base de sódio.

A Figura 14-b indica um aumento de ²³⁵U após a queima para o sistema considerando todos os materiais refrigerantes. A quantidade produzida de ²³⁵U é insignificante em comparação com ²³³U, mas ambos são importantes porque são isótopos físseis de urânio que podem ser usados como combustível em reatores de água leve (LWR), principalmente pelo fato de que a quantidade de ²³³U produzida está em ordem de grandeza de toneladas.



Figura 14. Quantidade total produzida no sistema de: a) ²³³U e b) ²³⁵U.

A Figura 15 mostra a quantidade de urânio não físsil produzida. A análise considerou a soma da quantidade de massa gerada dos isótopos ²³²U, ²³⁴U, ²³⁶U, ²³⁷U e ²³⁸U. Dentre eles, ²³⁴U foi o isótopo que mais contribuiu para crescimento do urânio não físsil. Os refrigerantes à base de sódio induziram uma maior produção desses isótopos de urânio do que os refrigerantes à base de chumbo. Isso poderia indicar que há mais nuclídeos absorvedores no sistema, diminuindo a população de nêutrons e sua capacidade de transmutação do sistema para estes refrigerantes.



Figura 15. Produção total de U não físsil no sistema para cada refrigerante.

A Figura 16 mostra a diminuição da quantidade de plutônio físsil para cada refrigerante. Independentemente do sistema com cada refrigerante analisado, houve uma considerável redução de plutônio físsil, especialmente para o ²³⁹Pu. Os sistema com os referidos refrigerantes apresentaram valores de redução de massa semelhantes tanto para o ²³⁹Pu quanto para o ²⁴¹Pu, com exceção do sistema com o Na que apresentou maior redução dos referidos isótopos, principalmente para o ²³⁹Pu. Como os valores de k_{eff} são distintos entre o sistema com os refrigerantes, a probabilidade de fissão após a absorção de nêutrons é diferente entre eles. A redução de massa de ²³⁹Pu foi maior do que de ²⁴¹Pu devido à suscetibilidade de reação de captura radioativa no ²³⁹Pu, que poderia levar a formação de ²⁴¹Pu.



Figura 16. Redução total de Pu físsil no sistema com cada refrigerante.

A Figura 17 mostra o aumento da quantidade de massa gerada de plutónio não físsil para cada refrigerante. A análise considerou a soma de massa final dos isótopos ²³⁸Pu, ²⁴⁰Pu e ²⁴²Pu. Embora o refrigerante Na tenha apresentado a maior redução de ²³⁹Pu no final da queima do combustível, houve maior produção de plutônio não físsil no sistema com refrigerantes à base de sódio do que com refrigerantes à base de chumbo, especialmente para o Na, representando menor probabilidade de fissão de plutônio em refrigerantes à base de sódio do que refrigerantes à base de chumbo.



Figura 17. Quantidade total de Pu não físsil produzida no sistema com cada refrigerante.

A quantidade de AMs após a queima de combustível para cada material refrigerante é mostrada na Figura 18. A análise considerou a soma das quantidades de massa gerada e reduzida dos isótopos ²³⁷Np, ²³⁸Np, ²³⁹Np, ²⁴¹Am, ²⁴²Am, ²⁴³Am, ²⁴²Cm, ²⁴³Cm, ²⁴⁴Cm, ²⁴⁵Cm e ²⁴⁶Cm. Dentre eles, o isótopo ²⁴¹Am é o que mais contribuiu no montante final de AMs, como já foi mostrado neste trabalho. Os refrigerantes à base de sódio tiveram menor contribuição na quantidade de AMs produzidos do que os refrigerantes à base de chumbo, principalmente em Na, devido ao alto fluxo de nêutrons epitérmicos, o que indica que há mais absorções de nêutrons nas regiões de ressonância do tório, produzindo ²³³U em maior quantidade do que contribuindo para a formação de AMs. As maiores produções de AMs foram apresentadas pelos sistemas com refrigerantes à base de sódio, o que contribui para a formação de amerício (principalmente ²⁴¹Am) por decaimento β.



Figura 18. Quantidade total de actinídeos menores produzidos no sistema com cada refrigerante.

A Figura 19 apresenta a diferença de massa em relação à composição do combustível após a queima e composição inicial de AMs, actinídeos maiores e também do protactínio (isótopos mencionados anteriormente, acompanhados durante a queima) no sistema com cada refrigerante, não sendo considerado o tório. O sistema com o refrigerante Na apresentou um valor positivo na variação da massa dos transurânicos, o que indica uma baixa transmutação de TRU em relação às reações de fissão. Embora o sistema com o Na tenha o menor valor no aumento da quantidade de AMs, ele teve uma maior produção de ²³³U pela absorção de nêutrons no tório. Assim, o sistema com o refrigerante Na poderia ser um bom candidato para refrigerar a camada transmutadora do Sistema Híbrido Fusão-Fissão se o propósito fosse a produção de material físsil e também transmutação de AMs. Isso também ocorre, em menor escala, para os refrigerantes NaK 1 e principalmente NaK 2, o qual possui maior fração de massa de sódio em sua composição do que NaK 1. Por outro lado, o sistema com os refrigerantes à base de sódio aumentam a quantidade de urânio e, principalmente, de plutônio não físsil por absorção de nêutrons, causando menos reações de fissão se comparado ao sistema com os refrigerantes à base de chumbo, como pode ser observado nos valores de k_{eff} durante a queima do combustível. Como resultado, a diferença de TRUs transmutados por reações de fissão no sistema com o Na atinge quase 750 kg a menos do que o sistema com o refrigerante LBE. Resumindo, o sistema com os refrigerantes à base de sódio não são efetivos para transmutar os TRUs por reações de fissão, principalmente no plutônio fissil, em comparação com o sistema com os refrigerantes à base de chumbo, que apresentaram a maior redução de TRUs.

O sistema com os refrigerantes Pb e LBE apresentou os maiores valores de redução da quantidade de massa de TRUs, sendo ambos os valores similares. O sistema com o MgPb, que tem o valor mais próximo ao sistema com o Pb e LBE, tem uma diferença de aproximadamente 48 kg em relação a eles, uma quantidade considerável de massa, principalmente levando em consideração os requisitos de não-proliferação de armas nucleares devido ao Pu físsil não transmutado. Portanto, Pb e LBE representam as escolhas mais adequadas para resfriar a camada transmutadora do Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak devido à maior transmutação do TRUs do que os outros refrigerantes analisados.



Figura 19. Variação total de massa dos TRUs para cada refrigerante no final da queima do combustível.

Um fator importante a ser analisado é a taxa de reação para produção de trítio para cada refrigerante, como mostrado na Figura 20. Os valores foram obtidos através do código MCNP5 para o cálculo da taxa de reação total para a produção de trítio, considerando o fluxo de nêutrons característico na região do material refrigerante. Os cálculos foram realizados para o estado estacionário antes da queima do combustível. Os refrigerantes que contêm lítio em sua composição apresentam as maiores taxas de produção de trítio, principalmente o refrigerante LiPb 2 devido à sua alta quantidade de ⁶Li. Os refrigerantes à base de sódio não apresentaram taxas de reação para a produção de trítio, o que representa uma grande desvantagem em relação aos demais refrigerantes que o produzem. Por outro lado, o LBE apresenta o maior valor de taxa de reação para a produção de trítio do que os refrigerantes MgPb e Pb (quase cem vezes a mais), o que mostra ser a melhor escolha para refrigerar a

camada transmutadora do Sistema Híbrido Fusão-Fissão tanto em relação à transmutação de TRUs quanto na produção de trítio dentre os materiais refrigerantes estudados. Uma comparação mais detalhada entre os materiais refrigerantes é apresentada na Tabela 12 no ANEXO – 1.



Figura 20. Taxas reação para a produção de trítio para os refrigerantes.

3.5. CONCLUSÃO

Como primeira análise, o melhor material refrigerante considerado neste trabalho foi aquele que induzisse maiores reações de fissão nos actinídeos e, portanto, maiores valores de k_{eff} . As seções de choque e análise do fluxo de nêutrons foram enfatizadas para a faixa do espectro de nêutrons mais endurecida. O sistema com o refrigerante Na produz uma maior quantidade de ²³³U, que pode ser utilizado como material combustível em reatores térmicos comerciais como os LWRs. No entanto, uma maior geração de ²³³U implica uma menor capacidade de transmutação de TRUs por reações de fissão, diminuindo a população de nêutrons e, assim, os valores de k_{eff} . O sistema apresentou os maiores valores de fator de multiplicação efetivo durante a queima do combustível com os refrigerantes LBE e Pb. O sistema com refrigerantes que apresentaram os maiores valores de k_{eff} também apresentaram as maiores quantidades de TRUs transmutados. O sistema com o refrigerante LBE apresentou transmutação de actinídeos por reações de fissão de aproximadamente 175 kg a mais do que o refrigerante LiPb 2 utilizado em trabalhos anteriores. Portanto, o chumbo ou o chumbo-

bismuto são as melhores escolhas para o material de refrigeração da camada transmutadora no Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak dentre os analisados neste trabalho, devido a sua maior transmutação de actinídeos por reações de fissão. O uso desses refrigerantes otimizaria o sistema em relação aos parâmetros neutrônicos e às quantidades finais de nuclídeos transmutados por reações de fissão. Os altos valores de transmutação são causados pela transmutação de plutônio, principalmente plutônio físsil (²³⁹Pu e ²⁴¹Pu), o que mostra que o sistema representa uma boa opção em favor à não proliferação de armas nucleares.

O LBE possui um ponto de fusão muito menor do que o Pb, sendo necessário uma menor quantidade de calor para manter este refrigerante no estado líquido. Logo, a liga de chumbo-bismuto eutética é a melhor escolha de material para refrigeração da camada transmutadora em comparação com o chumbo. Entretanto, o problema da escolha desse refrigerante é a diminuição da produção de trítio necessário para as reações de fusão no sistema devido às baixas taxas de reação para produção de trítio nesse refrigerante em comparação com LiPb 2.

4. PRODUTORES DE TRÍTIO ANALISADOS

Deutério e trítio são dois isótopos de hidrogênio usados como combustível para a reação de fusão no ITER. Enquanto deutério poderia ser extraído da água do mar - aproximadamente 33 miligramas por metro cúbico (mg/m³), o fornecimento de trítio disponível é muito limitado. Na natureza, o trítio é encontrado apenas em quantidades muito baixas. Os efeitos dos raios cósmicos nas camadas externas da atmosfera terrestre produzem poucos gramas (g) por ano (estimativas essas que podem variar). Poucos quilogramas também são dissolvidos nos oceanos como resultado de testes nucleares realizados entre 1945 e 1980. O trítio também é produzido por reatores nucleares do tipo CANDU, cerca de 100 g por ano para um reator de 600 MW ou cerca de 20 kg por ano globalmente, o que poderia ser combustível suficiente para abastecer o ITER durante quinze anos de operação. No entanto, é necessário desenvolver soluções para a produção de trítio em larga escala. Estima-se que cada reator de fusão requer da ordem de 100 a 200 kg de trítio por ano. Na verdade, estima-se que, nas condições operacionais do ITER, a capacidade máxima de produção de cada um dos módulos de teste seja da ordem de 20 mg/dia [33].

Em resumo, a produção externa de trítio não é suficiente para auto sustentar o desenvolvimento de reações de fusão em larga escala além do ITER. Portanto, o desenvolvimento bem-sucedido da produção de trítio é essencial para o futuro da energia baseada na fusão nuclear. O trítio pode ser produzido dentro do Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak quando os nêutrons que escapam do plasma interagem com o lítio ou outro material contido no cobertor. Este material deve conter em sua composição nuclídeos que possam produzir trítio a partir da irradiação de nêutrons. O conceito de produção de trítio durante a reação de fusão é importante para as necessidades do próprio sistema [9].

Com base nos resultados já obtidos neste trabalho, a escolha do melhor material para refrigerar a camada transmutadora, de modo a melhorar a eficiência na transmutação de TRUs, afeta diretamente a produção de trítio no sistema, a qual era desempenhada pelo refrigerante Li₁₇Pb₈₃ considerado em trabalhos anteriores. Portanto, com o propósito de produção de trítio, foi analisada neste trabalho a inserção de uma camada produtora de trítio com diferentes produtores em dois locais diferentes no Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak. Foi avaliado no sistema o uso de diferentes produtores de trítio. O sistema foi

analisado para cada caso separadamente utilizando o material refrigerante LBE escolhido no primeiro objetivo do presente trabalho, melhorando a eficiência na transmutação de TRUs a partir da escolha do refrigerante para a camada transmutadora.

4.1. PROPRIEDADES DOS PRODUTORES

4.1.1. Físico-Químicas

Os materiais escolhidos para serem utilizados na camada produtora de trítio foram fluoreto de lítio - fluoreto de berílio (FLiBe 1 e FLiBe 2), cloreto de berílio (BeCl₂), óxido de boro (B₂O₃), lítio-chumbo (LiPb 1 e LiPb 2), lítio-estanho (LiSn 1 e LiSn 2), lítio-magnésio (LiMg 1 e LiMg 2) e lítio (Li 1 e Li 2), sendo Li a mais promissora fonte de trítio. Os materiais que possuem lítio em sua composição foram testados tanto com lítio natural quanto com enriquecimento de 20% de ⁶Li devido às suas grandes seções de choque microscópicos para produção de trítio principalmente para nêutrons térmicos, como será apresentado neste trabalho. Os materiais com 20% de enriquecimento de ⁶Li em sua composição foram todos nomeados com o número 2. A liga LiPb também foi usada como produtor de trítio e já foi descrita na seção anterior.

A Tabela 6 mostra algumas propriedades dos materiais produtores de trítio analisados. Eles foram escolhidos devido à produção de trítio por absorção de nêutrons nos núcleos de lítio, boro e berílio. Todos os materiais estão em estado líquido nas temperaturas em torno de 400 °C (671,15 K) e 450 °C (723,15 K), onde são analisadas a camadas produtoras no sistema. A importância de estarem no estado líquido é a possibilidade de usá-los também para a refrigeração do sistema. Além disso, danos estruturais no material por meio de deslocamentos por átomo (dpa) pela irradiação de nêutrons são desconsiderados no material quando em estado líquido.

Produtor de	Densidade média (g/cm ³)	Densidade (g/cm ³)	Ponto de	Ponto de
Trítio	[400-450°C]	a ~ 340 °C	Fusão (°C)	Ebulição (°C)
Li 1	0,474	0,495	180,54	1347
Li 2	0,466	0,486	183,8	1350,3
FLiBe 1	2,22	2,27	430	N/A
FLiBe 2	2,19	2,248	439	N/A
B ₂ O ₃	1,67	2,46	447	1860
BeCl ₂	1,54	1,9	399	520
LiMg 1	-	1,51	210	N/A
LiMg 2	-	1,496	210,7	N/A
LiSn 1	-	6,28	320	N/A
LiSn 2	-	6,274	320	N/A

Tabela 6. Propriedades físico-químicas dos materiais produtores [34-55]

N/A: Não Avaliado

4.1.2. Neutrônicas

Em relação às características neutrônicas, o material produtor deve possuir uma alta seção de choque que favoreça a reação (n,T) após a irradiação de nêutrons, com a finalidade de produção de trítio. Por outro lado, a economia de nêutrons também deve ser levada em consideração devido a principal finalidade do sistema, que é a transmutação de TRUs. Um bom material produtor deve contemplar estas duas características, ou seja, produzir trítio sem influenciar de maneira significativa o fluxo de nêutrons (principalmente na faixa de energia mais endurecida) na camada transmutadora.

Reações do tipo (n,T) poderiam ocorrer em alguns nuclídeos específicos, tais como: ⁶Li, ⁷Li, ¹⁰B e ⁹Be, onde o lítio é o material mais promissor quanto a produção de trítio. As reações para a produção de trítio a partir da irradiação de nêutrons no lítio foram descritas nas análises dos refrigerantes deste trabalho por meio das Equações (2) e (3). A seção de choque para a reação (n,T) no lítio tem duas contribuições como mostra a Figura 21: a de ⁶Li, sendo mais alta na faixa térmica de energia e possuindo um pico aproximadamente em 0,5 MeV, e a de ⁷Li, possuindo valores de seção de choque apenas numa faixa de energia mais endurecida, contendo um único pico em torno de 12 MeV de energia. Então, ambos Li 1 e Li 2 foram utilizados nos gráficos para comparação com os demais produtores de trítio considerados.



Figura 21. Seção de choque microscópica para a reação (n,T) para ⁶Li e ⁷Li.

Além da probabilidade de produção de trítio a partir da absorção de nêutrons no lítio, o trítio poderia ser produzido a partir da irradiação de nêutrons no berílio e também no boro.

O berílio (Be) é usado como moderador de nêutrons em reatores nucleares de pesquisa. É um material importante para reatores tipo LWR e de fusão, sendo usado neste último como material de revestimento do plasma; também pode ser usado como um multiplicador de nêutrons. Sob irradiação de nêutrons, Be poderia produzir trítio, assim como seus precursores, como mostrado nas reações abaixo [44]:

$${}^{9}\text{Be} + n \rightarrow 2 n + 2 {}^{4}\text{He} \quad (\text{E}_{n} > 2,7 \text{ MeV})$$
 (4)

onde E_n é a energia do nêutron incidente;

$${}^{9}\text{Be} + n \rightarrow {}^{7}\text{Li} + T \quad (E_n > 10,5 \text{ MeV})$$
 (5)
 ${}^{7}\text{Li} + n \rightarrow T + {}^{4}\text{He} + n$

$${}^{9}\text{Be} + n \rightarrow {}^{6}\text{He} + T (E_{n} > 0.6 \text{ MeV}) \qquad (6)$$

$${}^{6}\text{He} \rightarrow {}^{6}\text{Li} + \beta^{-} + \text{antineutrino}$$

$${}^{6}\text{Li} + n \rightarrow {}^{4}\text{He} + T$$

Quando exposto à irradiação de nêutrons, o boro poderia sofrer as seguintes reações [51]:

$${}^{10}\text{B} + \text{n} \rightarrow {}^{7}\text{Li} + {}^{4}\text{He} + 2,6 \text{ MeV}$$
 (7)

onde ⁷Li pode produzir trítio absorvendo nêutron de alta energia, bem como o ¹⁰B pela seguinte reação:

$${}^{10}\text{B} + \text{n} \rightarrow 2 \,{}^{4}\text{He} + \text{T}$$
 (8)

As seções de choque microscópicas para a reação de produção de trítio para os produtores de trítio com Li em sua composição são mostradas na Figura 22. Todos os compostos apresentados para produção de trítio têm como predominância a seção de choque para a reação (n,T) do lítio. A maior produção de trítio em todo o espectro de energia é para o lítio enriquecido a 20% com ⁶Li (Li 2), depois o lítio natural (Li 1), em seguida o produtor LiSn 2 juntamente com o LiMg 2; LiPb 1, com lítio natural em sua composição, apresenta as seções de choque para a produção de trítio mais baixas dentre estes citados.



Figura 22. Seções de choque microscópicas para a reação (n,T) dos produtores de trítio à base de Li.

A Figura 23 apresenta as seções de choque para a produção de trítio para os produtores BeCl₂, B₂O₃, FLiBe 1 e FLiBe 2, em comparação com Li 1 e Li 2 a partir da irradiação de nêutrons. Para todos eles, a seção de choque para a produção de trítio é menor do que Li 1 e/ou Li 2. O cloreto de berílio produz trítio apenas para energias acima de 14 MeV e o óxido de boro tem produção de trítio em todo espectro de energia, mas a probabilidade de produção de trítio após absorção de nêutron é maior na faixa rápida de energia.

A maior probabilidade de produção de trítio é para nêutrons térmicos devido à presença de lítio em alguns materiais produtores. Em relação aos nêutrons rápidos, as figuras apresentam dois picos característicos, um a 0,5 MeV e outro a 12 MeV causados pela presença de ⁶Li e ⁷Li respectivamente, o que representa alta probabilidade de produção de trítio para nêutrons com alta energia, na faixa de 0,1 a 20 MeV.



Figura 23. Seções de choque microscópicas para a reação (n,T) dos produtores de trítio Li 1-2, FLiBe 1-2, BeCl₂ e B₂O₃.

4.2. GEOMETRIA DO SISTEMA

A análise dos produtores de trítio levou em consideração algumas modificações no sistema devido à adição da camada produtora. A Tabela 7 apresenta as novas dimensões do sistema após a inserção da camada produtora de trítio antes da camada transmutadora, de 2 cm de espessura, fazendo com que todas as paredes externas seguintes também fossem descoladas 2 cm, reajustando o sistema a 2 cm maior que no sistema de referência [4], de modo a manter as espessuras dos diferentes componentes no sistema. As outras dimensões especificadas no sistema de referência [4] não foram alteradas. A Figura 24 mostra a

representação do Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak após a inserção da camada produtora de trítio entre o dissipador de calor e a camada transmutadora, com um volume de 5,13 m³.

Sistema	Componente	Distância Radial (cm)	Material	
Cohortor	Camada produtora de trítio	856 a 858	Material a ser estudado	
Cobertor	Camada transmutadora	858 a 898	Transurânicos diluídos em tório	
	Bloco Protetor	898 a 900	SS316L(N)IG	
Câmoro do	Parede	900,5 a 906,5	SS316L(N)IG	
Vácuo	Enchimento	906,5 a 969,5	SS304B7, 55%; água, 45%	
v acuo	Parede	969,5 a 975,5	SS316L(N)IG	
Proteção Térmica da Câmara de Vácuo	Parede	975,5 a 977,5	SS304L	
	Parede da caixa	978 a 987,5	SS316L(N)IG	
Bobinas de campo toroidal	Supercondutor e isolantes	1087,5 a 1167,5	45% Nb3Sn + 5% Al ₂ O ₃ + 50% Incoloy 908	
	Parede da caixa	1167,5 a 1178	SS316L(N)IG	
Criostato	Parede	1402 a 1412	SS304L	
Blindagem biológica	Parede	1457 a 1657	Concreto Br3	

Tabela 7. Materiais e dimensões para os diferentes componentes do Tokamak alterados com a inserção da camada produtora de trítio antes da camada transmutadora.



Figura 24. Camada produtora de trítio inserido antes da camada transmutadora no Sistema Híbrido Fusão-Fissão.

A espessura e o volume da camada produtora neste segundo local foram de 2 cm e 5,37 m³, respectivamente, considerando o posicionamento da camada produtora de trítio entre a camada transmutadora e o bloco protetor. As paredes delimitadoras das camadas mais externas à camada produtora inserida foram deslocadas em 2 cm. É importante ressaltar que em ambos os casos não houve alteração no volume da camada transmutadora. A Tabela 8 apresenta as dimensões do sistema quando a camada produtora é inserida após a camada transmutadora e a Figura 25 mostra a representação esquemática desse sistema.

Tabela 8. Materiais e dimensões para os diferentes componentes do Tokamak com a inserçãoda camada produtora de trítio após a camada transmutadora.

Sistema	Componente	Distância Radial (cm)	Material	
	Camada transmutadora	856 a 896	Transurânicos diluídos em tório	
	Camada produtora de trítio	896 a 898	Material a ser estudado	
	Bloco Protetor	898 a 900	SS316L(N)IG	
Câmoro do	Parede	900,5 a 906,5	SS316L(N)IG	
Vácuo	Enchimento	906,5 a 969,5	SS304B7, 55%; água, 45%	
	Parede	969,5 a 975,5	SS316L(N)IG	
Proteção Térmica da Câmara de Vácuo	Parede	975,5 a 977,5	SS304L	
	Parede da caixa	978 a 987,5	SS316L(N)IG	
Bobinas de campo toroidal	Supercondutor e isolantes	1087,5 a 1167,5	45% Nb3Sn + 5% Al ₂ O ₃ + 50% Incoloy 908	
	Parede da caixa	1167,5 a 1178	SS316L(N)IG	
Criostato	Parede	1402 a 1412	SS304L	
Blindagem biológica	Parede	1457 a 1657	Concreto Br3	



Figura 25. Sistema Híbrido Fusão-Fissão com camada produtora de trítio inserida após a camada transmutadora.

4.3. COMBUSTÍVEL NUCLEAR

A composição do combustível - obtida por meio de combustível nuclear queimado reprocessado pela técnica UREX+ e, em seguida, diluído em tório - para as simulações do Sistema Híbrido Fusão-Fissão com análises dos produtores de trítio e do posicionamento da camada produtora está representada na Tabela 9. A porcentagem de material físsil considerada foi de 11,5% de modo a atingir $k_{eff} \approx 0,95$. Este valor representa a margem do limite de segurança estabelecido para o sistema híbrido fusão-fissão assegurando a subcriticalidade do sistema; outro fator a ser considerado é que o buckling geométrico do sistema será sempre maior que o buckling do material, permitindo uma maior concentração de TRUs no sistema e que possíveis inserções de reatividade positiva na camada transmutadora não tornem o sistema crítico [7, 52].

Nuclídeo	Fração em massa	Nuclídeo	Fração em massa	Nuclídeo	Fração em massa
²³² Th	7,1734E+01	²⁴² Pu	9,8402E-01	²⁴⁴ Cm	4,9524E-02
²³⁷ Np	5,3345E-01	²⁴¹ Am	5,7182E-01	²⁴⁵ Cm	2,6094E-03
²³⁸ Pu	2,8254E-01	^{242m} Am	1,5294E-03	²⁴⁶ Cm	3,3585E-04
²³⁹ Pu	8,2449E+00	²⁴³ Am	2,1473E-01	¹⁶ O	1,2053E+01
²⁴⁰ Pu	3,4577E+00	²⁴² Cm	1,24E-05		
²⁴¹ Pu	1,869E+00	²⁴³ Cm	6,5876E-04		

Tabela 9. Composição do material combustível com 11,5% de material físsil.

4.4. RESULTADOS E ANÁLISES DOS PRODUTORES DE TRÍTIO

4.4.1. Camada Produtora de Trítio inserida após a Camada Transmutadora

A análise dos produtores na camada produtora de trítio posicionada após da camada transmutadora levou em consideração os produtores Li 1, Li 2, FLiBe 1, FLiBe 2, B_2O_3 e BeCl₂. A Figura 26 mostra o percentual de reação de nêutrons para todos os produtores de trítio. A reação predominante é o espalhamento elástico. O percentual de produção de trítio é grande para os materiais que possuem lítio em sua composição, principalmente para o Li 2 e Li 1. Entretanto, as taxas de reação para o FLiBe 1 e o FLiBe 2 são muito semelhantes aos do Li 1 e Li 2 para esta configuração, como mostrado na Figura 27; mesmo com Li 1 e Li 2 apresentarem um maior percentual de reação para a produção de trítio.



As taxas de reação para a produção de trítio igualitárias entre os produtores Li 1-2 e FLiBe 1-2 pode ser explicada devido ao espectro de nêutrons na camada produtora, como mostrado na Figura 28. Os picos do fluxo de nêutrons na faixa de energia entre 0,01 e 1 MeV são maiores para os produtores FLiBe (principalmente FLiBe 1). Esses picos coincidem com os picos nas seções de choque para a produção de trítio (Figura 23), aumentando a probabilidade de produção de trítio para estes produtores.



Figura 28. Espectro neutrônico sobre a camada produtora de trítio para Li 1-2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

A influência da inserção da camada produtora após a camada transmutadora na população de nêutrons é considerável, como apresentado na Figura 29. A inserção da camada

nesta configuração diminui os valores de k_{eff} em comparação com os valores sem a camada produtora, por estarem próximos a 0,95 no início da queima do combustível. FLiBe 1 apresentou os maiores valores de k_{eff} durante o tempo, indicando que o sistema com este produtor alcança valores mais críticos. Li 2 apresentou os menores valores de k_{eff} , devido ao fato de um uso maior de nêutrons térmicos para a produção de trítio.



Figura 29. Valores de keff durante a queima do combustível para Li 1-2, FLiBe 1-2, B2O3 e BeCl2.

O espectro de nêutrons sobre a camada transmutadora para o sistema com cada produtor de trítio é mostrado na Figura 30. O fluxo de nêutrons na faixa térmica de energia (Figuras 30-a) é baixo para o sistema com o B_2O_3 e alto para o sistema com os produtores BeCl₂ e Li 1. O sistema com os produtores FLiBe 2 e B_2O_3 apresentou alto fluxo de nêutrons na faixa epitérmica (Figuras 30-b), contribuindo para a produção de ²³³U a partir do tório. Embora o fluxo de nêutrons na faixa térmica de energia seja baixo para o sistema com o produtor Li 2, ele apresentou alto fluxo de nêutrons na faixa de energia de 1 MeV<E<20 MeV durante o tempo (Figuras 30-d) assim como o sistema com o produtor B₂O₃, o que poderia aumentar a transmutação de TRUs, especialmente para os AMs.



Figura 30. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com os produtores Li 1-2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂: a) E<100 eV; b) 100eV<E<100keV; c) 100 keV<E<1 MeV; d) 1 MeV<E<20 MeV.

Os percentuais de reações após a absorção de nêutrons no ²³²Th são apresentados na Figura 31. A captura radioativa para produção de ²³³Th pode ser considerada insignificante comparando com as outras reações analisadas, sendo, portanto, negligenciada nesta análise. A produção de ²³³U a partir do ²³²Th é predominante para todos os materiais produtores de trítio no sistema.

Como resultado da diminuição do espectro de nêutrons na faixa rápida de energia, houve um aumento no fluxo de nêutrons epitérmicos, o que favoreceu a produção de 233 U, como apresentado na Figura 32. Devido ao maior fluxo de nêutrons na faixa epitérmica de energia, B₂O₃ apresentou os maiores valores de produção de 233 U, seguidos pelos produtores FLiBe 2 e FLiBe 1, respectivamente.





Figura 31. Percentual de reações para o ²³²Th após absorção de nêutrons para Li 1-2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

rigura 32. Quantidade total de ²³³U produzida após a queima do combustível para Li 1-2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

A Figura 33 mostra a redução da quantidade de TRUs na camada transmutadora para o sistema com cada material produtor. A soma levou em consideração a diferença entre a composição final e inicial de AMs, actinídeos maiores e também do protactínio (²³⁷Np, ²³⁸Np, ²³⁹Np, ²⁴¹Am, ²⁴²Am, ²⁴³Am, ²⁴²Cm, ²⁴³Cm, ²⁴⁴Cm, ²⁴⁵Cm, ²⁴⁶Cm, ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴²Pu, ²³¹Pa e ²³³Pa). A camada produtora de trítio inserida após a camada transmutadora tem uma influência significativa na transmutação de TRUs. O sistema com o produtor BeCl₂ apresentou uma maior transmutação de TRUs. Entretanto, ele apresentou baixa produção de trítio. Os produtores Li 1 e FLiBe 1 exibiram altos valores de transmutação de TRUs, juntamente com alta produção de trítio. Uma comparação mais detalhada entre os materiais produtores nesta configuração é apresentada na Tabela 13 no ANEXO – I.

8,7

8,6

Li 1

Li 2 FLiBe 1

FLiBe 2 B₂O₃

BeCl.



Figura 33. Quantidade total de redução de massa dos TRUs no final da queima do combustível para o sistema com os produtores Li 1-2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

4.4.2. Camada Produtora de Trítio inserida antes da Camada Transmutadora

A seguinte análise comparou alguns materiais para a produção de trítio na camada produtora inserida antes da camada transmutadora devido ao número de produtores avaliados. Nesta análise, considerando o LBE como refrigerante da camada transmutadora, foram considerados os produtores de trítio LiMg 1, LiMg 2, LiSn 1, LiSn 2, LiPb 1, LiPb 2, Li 1, Li 2, FLiBe 1, FLiBe 2, B₂O₃ e BeCl₂.. O produtores nomeados com o número 2 contêm em sua composição lítio enriquecido a 20% em ⁶Li. As análises foram dispostas de tal maneira que facilitasse a compreensão e entendimento dos resultados obtidos.

É possível verificar na Figura 34 as porcentagens de espalhamento elástico, produção de trítio e outras reações para cada material produtor de trítio. O espalhamento elástico é a reação predominante para todos os materiais na camada produtora, induzindo mudanças no fluxo de nêutrons, especialmente em um espectro de energia mais endurecido. As ligas de lítio-estanho exibiram maiores valores percentuais para outras reações nucleares, o que não é interessante do ponto de vista de produção de trítio. Por outro lado, Li 1 e Li 2 apresentaram altos valores percentuais para produção de trítio, principalmente para Li 2. Por outro lado, a reação (n,n'T) é alta para os produtores FLiBe, o que não causa uma diminuição na população de nêutrons.



Figura 34. Reações nucleares causadas pela irradiação de nêutrons nos produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

A taxa de reação para a produção total de trítio na camada produtora de trítio é mostrada na Figura 35. Em primeiro lugar, os materiais produtores de trítio com ⁶Li

enriquecido a 20% em sua composição apresentaram maiores valores de taxas de reação para produção de trítio do que seus respectivos análogos (com lítio natural em sua composição). O produtor Li 2 apresentou o maior valor de taxa de reação para a produção de trítio, que é quase o dobro do valor da taxa de reação do Li 1. Dentre eles, LiPb 1 apresenta o menor valor de taxa de reação para a produção de trítio, material já estudado neste trabalho como material refrigerante da camada transmutadora no sistema. Embora o percentual de produção de trítio seja mais alto para o Li 2, sua taxa de reação para a produção de trítio é quase a mesma comparada com a do FLiBe 2, devido às maiores reações de espalhamento elástico para os produtores FLiBe, causando uma maior moderação de nêutrons.



Figura 35. Taxas de reação para a produção de trítio na camada produtora para os produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

Na Figura 36 é mostrado o espectro de nêutrons antes da camada transmutadora, ou seja, na camada produtora de trítio para os diferentes produtores. Os materiais produtores de trítio que utilizam lítio natural apresentaram um fluxo de nêutrons maior do que aqueles com enriquecimento de ⁶Li devido ao espalhamento de nêutrons pelo ⁷Li. O Li 2 apresentou um menor espectro de nêutrons na faixa de energia apresentada pela figura, ocorrendo menores reações de espalhamento dos nêutrons de 14,1 MeV de energia provenientes das reações de fusão. O fluxo de nêutrons é alto para FLiBe 2 e especialmente para FLiBe 1 considerando o intervalo de energia entre 0,01 e 1 MeV. Isso promove uma alta produção de trítio devido aos picos nas seções de choque microscópicas para a produção de trítio na mesma faixa de

energia. O FLiBe 2 tem valores de taxa de reação mais altos do que o FLiBe 1 por apresentar maior quantidade de ⁶Li em sua composição.



Figura 36. Espectro neutrônico sobre a camada produtora de trítio para os produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

A Figura 37 mostra os valores de k_{eff} ao longo do tempo durante uma queima de combustível no sistema, considerando a camada produtora antes da camada transmutadora. O uso de nêutrons térmicos para produção de trítio na camada produtora com Li 2 causa menores reações de fissão nos nuclídeos físseis devido aos menores valores de k_{eff} . No entanto, os valores de k_{eff} de Li 2 não foram tão baixos em relação ao k_{eff} para o sistema considerado [56]. O produtor LiPb 1 apresentou os maiores valores de k_{eff} ao longo do tempo, considerando a Figura 37-a. Entretanto, ele apresentou a menor quantidade de produção de trítio porque tem uma menor concentração de lítio em sua composição.

Considerando a Figura 37-b, o sistema com o $BeCl_2$ e o FLiBe 1 apresentaram os maiores valores de criticalidade devido à menor absorção de nêutrons térmicos para produção de trítio, aumentando o espectro de nêutrons térmicos e, consequentemente, as reações de fissão em nuclídeos físseis. Entretanto, estes produtores apresentaram valores de k_{eff} maiores que 0,95, representando certa desvantagem quanto à segurança do sistema. Os menores valores de k_{eff} foram para os produtores B₂O₃ e Li 2, respectivamente.



Figura 37. Valores de k_{eff} durante a queima do combustível para o sistema com os produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

O espectro de nêutrons sobre a camada transmutadora para o sistema com cada produtor de trítio é mostrado na Figura 38 e também na Figura 39. O fluxo de nêutrons na faixa térmica de energia (Figuras 38 e 39 - a) é baixo para Li 2, devido à alta absorção de nêutrons térmicos para a produção de trítio na camada produtora. O LiMg 1 apresentou alto fluxo de nêutrons no intervalo epitérmico (Figuras 38 e 39 - b), contribuindo para a produção de ²³³U a partir do tório. Embora o fluxo de nêutrons térmicos seja baixo para o Li 2, ele apresentou alto fluxo de nêutrons na faixa de energia de 1 MeV<E<20 MeV durante o tempo (Figuras 38 e 39 - d), o que poderia aumentar a transmutação de TRUs, especialmente para os AMs.



Figura 38. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com os produtores Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2: a) E<100 eV; b) 100 eV<E<100 keV.



Figura 38. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com os produtores Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2: c) 100 keV<E<1 MeV; d) 1 MeV<E<20 MeV.



Figura 39. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com os produtores Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂: a) E<100 eV; b) 100 eV<E<100 keV; c) 100 keV<E<1 MeV; d) 1 MeV<E<20 MeV.

A porcentagem de reações após a absorção de nêutrons no ²³²Th é apresentada na Figura 40. A captura radioativa para produção de ²³³Th não foi considerada devido aos valores percentuais insignificantes. As porcentagens são muito semelhantes para todos os materiais produtores de trítio analisados no sistema. A produção de ²³³U é predominante para todos os materiais produtores de trítio.



Figura 40. Percentual de reações para o ²³²Th após absorção de nêutrons para os produtores no sistema: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

A Figura 41 mostra a produção de ²³³U proveniente do ²³²Th após a queima do combustível. Considerando a Figura 41-a, a produção de ²³³U é alta para o sistema com os produtores LiMg 1 e LiMg 2 devido aos seus altos fluxos de nêutrons na faixa epitérmica de energia (Figura 38-b), o que favorece a absorção de nêutrons no ²³²Th. Por outro lado, o produtor Li 2 apresentou a menor produção de ²³³U devido ao seu baixo espectro de nêutrons na faixa de energia epitérmica. Considerando a Figura 41-b, o sistema com os produtores FLiBe 1 e FLiBe 2 apresentaram a maior produção de ²³³U devido aos seus maiores fluxos de nêutrons no ²³²Th. Logo, os produtores FLiBe no sistema são os mais adequados para a produção de ²³³U.



Figura 41. Quantidade total de ²³³U produzida após a queima do combustível para o sistema com os produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

A transmutação total de TRUs após a queima de combustível é mostrada na Figura 42. Para o caso da Figura 42-a, embora o sistema com o produtor LiPb 1 tenha apresentado altos valores de transmutação de TRUs, ele não apresentou uma considerável produção de trítio em comparação com os demais, principalmente com Li 2. A diferença de produção de ²³³U entre o sistema com LiPb 1 e Li 2 é de 50 kg e a transmutação de TRU para o sistema com o LiPb 1 é quase 65 kg a mais que Li 2. Por outro lado, a produção de trítio no sistema com o Li 2 é quase dez vezes maior do que para o sistema com o LiPb 1.

Em relação à Figura 42-b, apesar do sistema com o produtor FLiBe 1 apresentar os maiores valores de k_{eff} , ele não apresentou uma alta transmutação de TRUs devido tanto ao seu baixo fluxo de nêutrons em um espectro mais endurecido, quanto à produção de ²³³U. O sistema com o Li 2 apresentou valores ligeiramente superiores do que o sistema com o B₂O₃ na transmutação de TRUs, mesmo sendo similares os fluxos de nêutrons no espectro mais endurecido. O sistema com o produtor BeCl₂ apresentou uma maior transmutação de TRUs do que os demais devido ao seu elevado fluxo de nêutrons térmicos sobre a camada transmutadora aumentando as reações de fissão em nuclídeos fisseis, principalmente no ²³⁹Pu e ²⁴¹Pu. No entanto, essa característica diminui a produção de trítio causada pela não absorção de nêutrons térmicos. O sistema com o BeCl₂ apresentou, aproximadamente, 44 kg à mais na transmutação de TRUs por reações de fissão do que o sistema com o Li 2. Uma comparação mais detalhada entre os materiais produtores nesta configuração é apresentada na Tabela 14 nos ANEXO – I.



Figura 42. Quantidade total de redução de massa dos actinídeos no final da queima do combustível para o sistema com os produtores: a) Li 1-2, LiMg 1-2, LiSn 1-2 e LiPb 1-2; b) Li 2, FLiBe 1-2, B₂O₃ e BeCl₂.

4.5. CONCLUSÃO

A produção de trítio foi estudada com o objetivo de ter uma quantidade aceitável de trítio como combustível para reações de fusão no Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak. A análise do fluxo de nêutrons mostrou a influência dos produtores de trítio no sistema Tokamak devido à moderação dos nêutrons de 14,1 MeV de energia, especialmente considerando a camada produtora de trítio após a camada transmutadora. Nessa situação, o sistema com o Li 1 e o FLiBe 1 apresentou alta produção de ²³³U e principalmente de trítio para auto sustentar as reações de fusão no sistema. Por outro lado, os valores de k_{eff} durante o tempo para sistema com o Li 1 são menores do que o sistema com os produtores FLiBe e BeCl₂. Apesar do sistema com outros produtores de trítio terem maior eficiência quanto à finalidade de transmutação, o sistema com FLiBe 1 apresentou alta redução de nuclídeos transurânicos. Por este motivo, ele é a melhor escolha para ser utilizado na da camada produtora posicionada após a camada transmutadora.

Em relação à camada produtora de trítio posicionada antes da camada transmutadora, o sistema com o produtor de trítio Li 2 apresentou as maiores taxas de reação para a produção de trítio. Embora o sistema com o Li 2 não tenha os maiores valores de k_{eff}, ele apresentou alta transmutação de actinídeos. Assim, considerando todos os parâmetros analisados, a melhor escolha para o produtor de trítio na camada produtora posicionada antes da camada transmutadora é o Li 2. Além disso, a camada produtora de trítio posicionada antes da camada

transmutadora (entre o dissipador de calor e a camada transmutadora) é o melhor local para a inserção da mesma no sistema.

De fato, quando a camada produtora está posicionada após a camada transmutadora os valores de k_{eff} durante a queima de combustível são diminuídos. As taxas de reação para produção de trítio são similares considerando os diferentes posicionamentos da camada produtora. Isso pode ser explicado devido ao fato do espectro de nêutrons térmicos ser maior na camada produtora posicionada depois da camada transmutadora, aumentando a probabilidade de produção de trítio devido às maiores seções de choque para a reação (n,T) na faixa térmica de energia. A transmutação de actinídeos é reduzida quase pela metade na camada produtora posicionada antes, o que é completamente adverso em relação ao propósito de transmutação. Esse fator pode ser explicado pela não reflexão dos nêutrons na camada produtora de trítio posicionada depois, não os fazendo retornar para a camada transmutadora para induzir reações nucleares no combustível.

Na configuração original do sistema [4], o Bloco Protetor, formado pelo material SS316L(N)IG, era o delimitador externo à camada transmutadora. O Bloco Protetor pode possuir uma taxa de reflexão de nêutrons maior do que na camada produtora (independente do material produtor). Portanto, este resultado instiga novos estudos para avaliar esse comportamento neutrônico na camada transmutadora devido ao material delimitador externo por meio das análises das seções de choque dos materiais do Bloco Protetor e da camada produtora, bem como do fluxo de nêutrons na devida região.

Embora o sistema com o Li 2 na configuração da camada produtora posicionada antes da camada transmutadora tenha apresentado valores de k_{eff} , ²³³U e transmutação de TRUs pouco menores em relação ao sistema com outros produtores, ele representa a melhor escolha em relação ao propósito da produção de trítio, devido ao fato de possuir uma taxa de reação para a produção de trítio extremamente maior do que os demais, questão importante que deve ser levada em consideração para o futuro do Sistema Híbrido Fusão-Fissão que, neste caso, é um fator determinante. Assim, o material produtor Li 2 foi escolhido para preencher a camada de produtor de trítio posicionada antes da camada transmutadora.
5. ANÁLISE FINAL

Esta seção tem por objetivo analisar os parâmetros neutrônico e de transmutação de TRUs para os sistemas sem a camada produtora de trítio e o sistema com a camada (inserida antes da camada transmutadora). O refrigerante LBE foi utilizado para ambos os sistemas. Para a configuração com a camada produtora de trítio, foi usado o produtor Li 2. Os valores de k_{eff} durante a queima do combustível são mostrados na Figura 43 para ambos os casos. Considerando o sistema com a camada produtora de trítio contendo o material Li 2, houve uma inserção de reatividade negativa de 1000 pcm (por cem mil) em comparação com o sistema sem a camada produtora de trítio. Para o sistema com os demais produtores de trítio, os valores de k_{eff} no início do ciclo são ainda maiores do que o sistema sem camada produtora (considerando-a na região antes da camada transmutadora), o que poderia resultar em condições desfavoráveis em relação aos parâmetros de segurança.



Figura 43. Valores de k_{eff} durante a queima do combustível para Li 2 e o sistema sem a camada produtora.

Em relação ao fluxo de nêutrons sobre a camada transmutadora, houve apenas uma diferença apreciável considerando os extremos do espectro de nêutrons - espectro de nêutrons térmico e rápidos - como mostrado na Figura 44. A diferença entre espectro térmico para os dois sistemas como mostra a Figura 44-a deve-se à produção de trítio pela absorção de nêutrons térmicos para o sistema com a camada produtora. A diferença no fluxo de nêutrons

na faixa de energia mais endurecida pode ser explicada pela menor moderação de nêutrons na camada produtora de trítio do que considerando o sistema sem a camada produtora, como mostrado nas Figuras 44-c e 44-d.



Figura 44. Espectro de nêutrons na camada transmutadora para o sistema com o Li 2 e o sistema sem a camada produtora: a) E<100 eV; b) 100 eV<E<100 keV; c) 100 keV<E<1 MeV; d) 1 MeV<E<20 MeV.

A Figura 45 apresenta o percentual de reações após a absorção de nêutrons no ²³²Th para os dois sistemas analisados. Uma vez mais, a formação de ²³³Th foi negligenciada por apresentar valores insignificantes em comparação às outras reações analisadas. As percentagens das quantidades geradas foram muito semelhantes. Como o fluxo de nêutrons na faixa epitérmica é mais alto para o sistema com a camada produtora em alguns intervalos (Figura 44-b), a produção de ²³³U é ligeiramente maior considerando o sistema com a camada transmutadora, como mostrado na Tabela 10. De fato, a quantidade de ²³³U produzida para o sistema com a camada produtora de trítio foi de 20 kg a mais do que o sistema sem a camada

produtora, o que não é muito em comparação com as quantidades absolutas de ²³³U produzidas.



Figura 45. Percentual de reações para o ²³²Th após absorção de nêutrons para Li 2 e o sistema sem a camada produtora.

Tabela 10. Produção de ²³³U a partir do ²³²Th para Li 2 e o sistema sem a camada produtora.

	Li 2	Sistema sem a camada produtora de trítio
Produção em toneladas (t)	7,87	7,85

Com relação à composição do combustível no final na queima, a transmutação de TRUs para os sistemas sem a camada produtora de trítio e o sistema com a camada é exibida na Tabela 11. Embora o sistema com a camada produtora tenha apresentado um fluxo de nêutrons um pouco mais endurecido durante a queima do combustível, ele alcançou valores de transmutação mais baixos do que o sistema sem a camada produtora.

Certamente, isso ocorre devido ao maior fluxo de nêutrons térmicos sobre a camada transmutadora para o sistema sem a camada produtora, contribuindo para o aumento das reações de fissão em nuclídeos físseis, principalmente no ²³⁹Pu e no ²⁴¹Pu. Obviamente, a camada produtora de trítio diminui as reações de fissão nestes nuclídeos físseis devido à absorção de nêutrons térmicos na camada produtora para a produção de trítio. A diferença entre os valores de transmutação de TRUs atingiu um valor de 58 kg, representando uma

redução na transmutação de TRUs de aproximadamente 3% para o sistema com a camada produtora de trítio posicionada anteriormente à camada transmutadora.

Tabela 11. Quantidade total de redução de massa de TRUs após a queima do combustível para Li 2 e o sistema sem a camada produtora.

	Li 2	Sistema sem a camada produtora de trítio
Redução de		
TRUs em	1,65	1,708
toneladas (t)		

6. CONCLUSÃO FINAL

Além de representar uma promissora alternativa para a geração de energia, o Sistema Híbrido Fusão-Fissão baseado no Tokamak também diminui os rejeitos de alta radiotoxicidade ao induzir reações de fissão nos nuclídeos transurânicos, os quais representam um desafio quanto ao seu gerenciamento e armazenamento nos dias atuais.

Este estudo mostrou-se muito relevante em relação à melhoria do Sistema de Fusão-Fissão baseado no Tokamak, pois a escolha do material refrigerante tem impacto direto nos parâmetros neutrônicos e na transmutação de nuclídeos transurânicos. Considerando os resultados de produção de urânio físsil para o sistema escolhido, houve uma produção média de oito toneladas de ²³³U em um período de dez anos no sistema, uma considerável quantidade de material físsil que poderia ser utilizada em reatores LWRs, resultando em uma diminuição considerável na quantidade necessária de urânio minerado e também nas necessidades de enriquecimento de urânio. Entretanto, essa produção depende do uso do tório que também deve ser minerado. Logo, estudos com outras composições de material combustível (como, por exemplo, o uso de urânio empobrecido para diluir os transurânicos) se fazem necessários.

Embora a camada produtora afete os parâmetros de transmutação, é importante suprir a necessidade de trítio necessário para as reações de fusão. Considerando o sistema sem a camada produtora e com o uso do refrigerante LBE, a produção de trítio é bastante reduzida. Portanto, a importância da inserção da camada produtora de trítio no Sistema Híbrido Fusão-Fissão pela escolha do refrigerante é muito importante.

Embora a escolha do refrigerante afete a produção de trítio, os resultados obtidos pela inserção de uma camada produtora de trítio antes da camada transmutadora são bastante encorajadores. Ao selecionar o lítio com vinte por cento de enriquecimento em ⁶Li, obteve-se um fornecimento de trítio de vinte e três gramas por dia, o qual é mil vezes superior às estimativas de produção pelo ITER, mostrando a relevância deste trabalho no que compete ao fornecimento de trítio necessário para as reações de fusão no próprio sistema. Entretanto, o uso do produtor FLiBe poderia ser uma alternativa para ser utilizado na camada produtora de trítio ao invés do lítio (Li 2). O FLiBe apresentou altas taxas de reação para a produção de trítio e também alta transmutação de transurânicos, além de possuir uma quantidade menor de

lítio em sua composição, e que poderia ser um fator determinante para o sistema devido ao preço do lítio no mercado.

Portanto, outros estudos necessitam ser realizados de modo a avaliar a viabilidade econômica do projeto devido à escolha dos materiais estudados neste trabalho, principalmente para o caso do lítio como produtor de trítio. Outro ponto seria o estudo da viabilidade factível de engenharia do sistema considerando as alterações na geometria do sistema proposto tanto para a transmutação de transurânicos quanto para a produção de trítio.

REFERÊNCIAS

[1] World Nuclear Association – Nuclear Power Reactors (2018), disponível em http://www.world-nuclear.org/information-library/nuclear-fuel-cycle/nuclear-power-reactors/nuclear-power-reactors.aspx [acessado em Agosto, 2018].

[2] Kenul, D. *et al*, Nuclear Fuel Reprocessing - Future Prospects and Viability (November 29, 2010), Energy and Energy Policy - Professors R. Stephen Berry and George S. Tolley, disponível em http://franke.uchicago.edu/bigproblems/Team7-1210.pdf [acessado em Novembro, 2017].

[3] Gilberti, M. et al. (2015), "Transuranics Transmutation Using Neutrons Spectrum from Spallation Reactions", Science and Technology of Nuclear Installations, v. 2015, p. 23.

[4] Velasquez, C.E. et al (2016), "Fusion–Fission Hybrid Systems for Transmutation", Journal of Fusion Energy, Volume 35 – Number 1, pg 1-134 (2016).

[5] Stott, P., & et al. (2003). Advanced Diagnostics for Magnetic and Inertial Fusion.Plasma Physics Controlled Fusion, 45 (182).

[6] Velasquez, C.E., Avaliação Neutrônica Da Inserção De Uma Camada Transmutadora Em Um Sistema Tokamak, Master's Thesis, (2013), 133 pages, Universidade Federal de Minas Gerais, Brasil, disponível em http://www.bibliotecadigital.ufmg.br/dspace/bitstream/handle/1843/BUOS-

978JZ3/disserta_o_carlos.pdf?sequence=1 [acessado em Junho, 2018].

[7] Stacey, W.M. (2005), "Fusion Plasma Physics", Physics Textbook, Wiley-VCH.

[8] ITER Organization - What is Tokamak (2018), disponível em https://www.iter.org/mach/Tokamak [acessado em Agosto, 2018].

[9] International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) Organization – Tritium Breeding (2018), disponível em https://www.iter.org/mach/TritiumBreeding [acessado em Julho, 2018].

[10] Gerstner, E. (2009), "The hybrid returns", Nature, Vol. 460.

[11] Reed, M. *et al* (2011), "A Fission-Fusion Hybrid Reactor in Steady-State L-Mode Tokamak Configuration with Natural Uranium", Plasma Science and Fusion Center, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge MA 02139 USA.

[12] Velasquez, C.E. *et al* (2012), "Axial Neutron Flux Evaluation in a Tokamak System: a Possible Transmutation Blanket Position for a Fusion Transmutation System", Nuclear Physics 42:237–247, Sociedade Brasileira de Física.

[13] Velasquez, C.E. *et al* (2015), "Layer thickness evaluation for transuranic transmutation in a fusion– fission system.", **Nucl. Eng. Des. 286**, 94–103.

[14] Velasquez, C.E. *et al* (2015), "Modelling effects on axial neutron flux in Tokamak device." **Prog. Nucl. Energy 78**, 388–395.

[15] Cota, S., Pereira, C. (1997), "Neutronic evaluation of the non-proliferating reprocessed nuclear fuels in pressurized water reactors", Annals of Nuclear Energy, Vol.24, n°10, pp. 829-834.

[16] Lagus, T.P. (2005), "Reprocessing of Spent Nuclear Fuel: A Policy Analysis", Washington Internships for Students of Engineering (WISE), 2005 WISE Intern University of Minnesota.

[17] Vandegrift, G.F. *et al* (2004), "Designing and Demonstration of the UREX+ Process Using Spent Nuclear Fuel", ATALANTE Conference, Nîmes-France.

[18] MacFarlane, R.E. (2012), "The NJOY Nuclear Data Processing System, Version 2012", Los Alamos National Laboratory, LA-UR-12-27079

[19] Poston, D., Trellue, H., User's Manual, Version 2.0 for Monteburns Version 1.0.LA-UR-99-4999 (1999).

[20] X-5 Monte Carlo Team, MCNP, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, vol. II. User's Guide University of California, Los Alamos National Laboratory (2003).

[21] Croff, A., A User's Manual for the Origen2 Computer Code. ORNL/TM-7175 (1980).

[22] Latgé, C. "Coolants for Fast Neutron Reactors", Physics and Technology of Innovative Nuclear Energy Systems for Sustainable Development, Trieste – Italy (2016).

[23] Nuclear Data Center at KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute),
 Nuclide Table – Sodium (2017), disponível em
 http://atom.kaeri.re.kr:8080/ton/index.html [acessado em Maio, 2017].

[24] Nuclear Data Center at KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute), Nuclide Table – Lead (2017), disponível em http://atom.kaeri.re.kr:8080/ton/index.html [acessado em Maio, 2017].

[25] Zhang J. (2013), Lead–Bismuth Eutectic (LBE): A Coolant Candidate for Gen. IV Advanced Nuclear Reactor Concepts, Advanced Engineering Materials, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim.

[26] Mas de les Valls, E. *et al* (2008), "Lead–lithium eutectic material database for nuclear fusion technology", Journal of Nuclear Materials, **Vol. 376**, 3rd edition, pp. 353-357.

[27] Wu, Y. and the FDS Team (2007), "Conceptual design and testing strategy of a dual functional lithium–lead test blanket module in ITER and EAST", IOP Publishing and International Atomic Energy Agency, **Nuclear Fusion 47**, pp. 1533–1539.

[28] Kim, Y. *et al* (2005), "Physics Study on Lead-Magnesium-Eutectic-Cooled fast reactor for TRU Transmutation", Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA): Organization for Economic Co-Operation and Development - Nuclear Energy Agency.

[29] Khairulin, R.A., Stankus, S.V. (2013), "Density of Liquid and Solid Mg–Pb Alloys", Journal of Engineering Thermophysics, **Vol. 22**, N^o. 1, pp. 7–19.

[30] ITER-Final Design Report (2001), disponível em http://www.naka.jaea.go.jp/ ITER/FDR/ [acessado em Junho, 2018].

[31] Wu, Y., F.D.S. Team (2009), "CAD-based interface programs for fusion neutron transport simulation." **Fusion Eng. Des. 84**, 1987–1992.

[32] Robinson, A., El Guebaly, L., Henderson, D. (2010), "W-Based Alloys For Advanced Divertor Designs: Detailed Activation And Radiation Damage Analysis", Fusion Technology Institute, University Of Wisconsin, Madison.

[33] International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) Organization – Tritium: Changing lead into gold (2016), disponível em https://www.iter.org/mag/8/56 [acessado em Julho, 2018].

[34] American Elements – The Advanced Materials Manufacturer ®, Lithium (2018),
disponível em https://www.americanelements.com/li.html [acessado em Agosto,
2018].

[35] Nuclear Data Center at KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute), Nuclide Table – Lithium (2018), disponível em http://atom.kaeri.re.kr:8080/ton/index.html [acessado em Agosto, 2018].

[36] Mas de les Valls, E. *et al.*, "Lead–lithium eutectic material database for nuclear fusion technology", Journal of Nuclear Materials, **Vol. 376**, 3rd edition, pp. 353-357 (2008).

[37] Wu, Y., F.D.S. Team (2007), "Conceptual design and testing strategy of a dual functional lithium–lead test blanket module in ITER and EAST", IOP Publishing and International Atomic Energy Agency, **Nucl. Fusion 47**, pp. 1533–1539.

[38] Lackner, K. (2001), EFDA-Garching, "ITER and the Fusion Reactor: Status and Challenge to Technology", European Fusion Development Agreement – 15^a Plansee Seminar, Vol.4.

[39] Tannenbaum, I.R. (1957), "Beryllium Chloride", Inorganic Syntheses, Vol. 5, doi:10.1002/9780470132364.ch7.

[40] Chemical Book - © 2017, CSA DataBase List – Beryllium Chloride, disponível
 em https://www.chemicalbook.com/ChemicalProductProperty_EN_CB1279478.htm
 [acessado em Outubro 2018].

[41] American Elements – The Advanced Materials Manufacturer ®, BerylliumChlorideSolution(2018),disponívelem

https://www.americanelements.com/beryllium-chloride-solution-7787-47-5 [acessado em Outubro, 2018].

[42] Density of Molten Elements and Representative Salts, Chapter 2, p. 126-129, disponível em http://moltensalt.org/references/static/downloads/pdf/element-salt-densities.pdf [acessado em Outubro, 2018].

[43] Engineering ToolBox (2018), "Melting and Boiling Point – Density and Solubility in Water for Inorganic Compounds", disponível em https://www.engineeringtoolbox.com/inorganic-salt-melting-boiling-point-water-solubility-density-liquid-d 1984.html [acessado em Outubro, 2018].

[44] Rabaglino, E. (2004), "Helium and Tritium in Neutron-Irradiated Beryllium", Scientific Reports, FZKA 6939, Research Center Karlsruhe in the Helmholtz Association.

[45] Ingersoll, D.T. (2008), Core Physics Characteristics and Issues for The Advanced High-Temperature Reactor (AHTR), Ingersoll, Parma, Forsberg, and Renier, ORNL and Sandia National Laboratory, disponível em https://www.oecd-nea.org/science/meetings/ARWIF2004/26.pdf [acessado em Setembro, 2018].

[46] Sohal, M.S., Ebner, M.A., Sabharwall, P., Sharpe, P. (2010), "Engineering Database of Liquid Salt Thermophysical and Thermochemical Properties", Idaho National Laboratory, INL/EXT-10-18297, disponível em http://www.skyscrubber.com/Molten%20Salt%20Engineering%20Database%20-%204502650.pdf [acessado em Outubro, 2018]

[47] Nakamura, A., Fukada, S., Nishiumi, R. (2015), "Hydrogen Isotopes Permeation in a Fluoride Molten Salt for Nuclear Fusion Blanket", J. Plasma Fusion Res. SERIES, Vol. 11.

[48] Chemical Book - © 2017, CSA DataBase List – Boron Oxide, disponível em https://www.chemicalbook.com/ChemicalProductProperty_EN_CB1264526.htm [acessado em Outubro, 2018].

[49] American Elements – The Advanced Materials Manufacturer ®, Boron Oxide (2018), retrieved from https://www.americanelements.com/boron-oxide-1303-86-2 [acessado em Outubro, 2018].

[50] Alderman, O.L.G. *et al* (2015), "Liquid B₂O₃ up to 1700 K: x-ray diffraction and boroxol ring dissolution", Journal of Physics: Condensed Matter.

[51] Monterrosa, A., Iyengar, A., Huynh, A., Madaan, C. (2012), "Boron Use and Control in PWRs and FHRs", Department of Nuclear Engineering, University of California, Berkeley, Report UCBTH-12-007.

[52] Sanschagrin, A. *et al* (1996), "Mechanical properties and microstructure of new magnesium-lithium base alloys", Materials Science and Engineering, ELSEVIER.

[53] American Elements – The Advanced Materials Manufacturer ®, Lithium-Magnesium Alloy (2018), retrieved from https://www.americanelements.com/lithiummagnesium-alloy [acessado em Agosto, 2018].

[54] Kang, Y., Terai, T. (2006), "Moderate tritium properties in lithium–tin alloy as a liquid breeder/coolant", ELSEVIER, Fusion Engineering and Design, Volume 81, Issues 1–7, February, Pages 519-523.

[55] Natesan, K., Ruther, W.E. (2002), "Fabrication and properties of a tin–lithium alloy", ELSEVIER, Journal of Nuclear Materials, **Volumes** 307–311, Part 1, , Pages 743-748.

[56] Stacey, W.M., J. Mandrekas, E.A. Hoffman, G.P. Kessler, C.M. Kirby, A.N. Mauer, J.J Noble, D.M. Stopp, D.S. Ulevich (2002), "A Fusion Transmutation of Waste Reactor", Fusion Science and Technology, Vol. 41.

ANEXOS

I. TAXAS DE REAÇÃO, PRODUÇÃO DE TRÍTIO ANUAL E TRANSMUTAÇÃO DE TRU NO SISTEMA HÍBRIDO PARA OS MATERIAIS REFRIGERANTES E PRODUTORES DE TRÍTIO

Refrigerante	Transmutação de TRUs (kg)	Taxas de reação para produção de trítio (T.cm ⁻³ .s ⁻¹)
Na	144,14	0
Pb	-578,94	1,30095E+07
LBE	-578,19	6,8758E+08
NaK 1	-182,99	0
NaK 2	-24,76	0
LiPb 1	-496,68	1,78321E+12
LiPb 2*	-459,48	4,26809E+12
MgPb	-530,58	9,52373E+06

Tabela 12. Transmutação de TRUs e taxas de reação para produção de trítio no sistema com cada refrigerante.

Tabela 13. Transmutação de TRUs e taxas de reação para produção de trítio no sistema com cada produtor de trítio para a camada produtora de trítio posicionada após a camada transmutadora.

Produtor de Transmutação de TRUs		Aproximação de produção de trítio anual	
Trítio	(kg)	(kg/ano)	
Li 1	-834,67	9,03	
Li 2	-741,71	10,19	
FLiBe 1	-796,16	10,15	
FLiBe 2	-723,98	10,51	
B ₂ O ₃	-650,27	1,33E-02	
BeCl ₂	-881,96	2,38E-05	

Produtor de	Transmutação de TRUs	Aproximação de produção de trítio anual	
Trítio	(kg)	(kg/ano)	
Li 1	-1,66E+03	3,79	
Li 2	-1,65E+03	8,47	
FLiBe 1	-1,60E+03	4,22	
FLiBe 2	-1,59E+03	8,04	
B_2O_3	-1,64E+03	4,11E-02	
BeCl ₂	-1,69E+03	3,65E-03	
LiMg 1	-1,67E+03	1,49	
LiMg 2	-1,67E+03	3,49	
LiPb 1	-1,71E+03	8,69E-01	
LiPb 2	-1,70E+03	2,17	
LiSn 1	-1,70E+03	1,30	
LiSn 2	-1,69E+03	3,12	

Tabela 14. Transmutação de TRUs e taxas de reação para produção de trítio no sistema com cada produtor de trítio para a camada produtora de trítio posicionada antes da camada transmutadora.

II. TRABALHOS APRESENTADOS EM CONGRESSO

International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2017

LIQUID METAL COOLANTS FOR FUSION-FISSION HYBRID SYSTEM – A NEUTRONIC ANALYSIS Renato V.A. Marques, Carlos E. Velasquez, Claubia Pereira,

Maria Auxiliadora F. Veloso, Antonella L. Costa

Departamento de Engenharia Nuclear Escola de Engenharia – UFMG Av. Antônio Carlos, 6627 - Pampulha - Belo Horizonte – MG, Brazil CEP 31270-901 +55 (31) 3409-6666 <u>claubia@nuclear.ufmg.br</u>

ABSTRACT

Different materials were used for cooling a fission-fusion system during a fuel burnup simulation, including the reference coolant, which was used a lithium-lead alloy. The goal is to compare them and see what has a more properly behaves considering the transmutation purpose of high level wastes. It was made by the comparison of neutronic parameters, such as the effective multiplication factor and the final transuranic amounts in the transmutation layer after the fuel burnup for each coolant used, to find the most suitable coolant material(s) to be applied in the system under consideration. The results indicate that lead and lead bismuth coolants are the most suitable choices to be applied to cool the system.

Keywords: Fusion-Fission, Coolant, Transmutation

1. INTRODUCTION

The energy generation by nuclear fission reactions in nuclear power plants has been an important point of current development. A nuclear plant has several advantages compared to other power plants, such as non-emission of polluting gases, requires small construction area, less of fuel material amount than, for example, to thermoelectric plants that use coal for the same amount of energy generated, among others. Nevertheless, like any other, this power generation option has disadvantages. One of them is the spent nuclear fuel management; spent fuel can be reprocessed to separate uranium and plutonium from it for reuse in conventional reactors. However, the waste will still contain transuranic nuclides, especially major and minor actinides, which are a currently problem due to the potential risk of this waste, which

has a long half-life and high radiotoxicity. New processes which use this waste as fuel are being proposed; one of them is a fusion-fission hybrid system (FFS).

This work was developed continuing to the work *Fusion-Fission Hybrid Systems for Transmutation* [1], developed by the Nuclear Engineering Department - UFMG, where the lithium-lead eutectic alloy is considered as the coolant material in a fusion-fission system based on Tokamak. The transmutation layer, where occurs the fission reactions, was designed with a spent nuclear fuel matrix, obtained from a Pressurized Water Reactor (PWR) standard fuel – with initial enrichment of 3.1%, burnup of 33.000 MWd/T and left 5 years in the pool. The spent fuel was reprocessed by UREX+ techniques – uranium, plutonium and actinide extractions. Then, the transuranic nuclides (Neptune, Plutonium, Americium, and Curium) were spiked with thorium - due it is a fertile and fissionable nuclide and can be easily found in nature - forming the fuel material composition used, with 20% of fissile material. Also, was verified that the transmutation layer is located in the most suitable place, allowing a greater number of fission reaction [1], as showed in *Fig.1*.

Fig.1 shows a 3D fusion–fission reactor, called here as FFS, with the transmutation layer based on a Tokamak system. The geometry uses the intersection of cylinders and planes to delimit boundaries of fusion reactor and the transmutation layer on the fusion device. Moreover, it allows simulating part of the device individually [2, 3]. The parameters used in the hybrid system are presented in *Table 1*.



Figure 1: Tokamak hybrid system [1]

Parameters	Value
Minor radius, r (m)	2
Major radius, R (m)	6.21
Plasma elongation	1.85
Triangularity	0.33
Toroidal magnetic field (T)	5.3
Plasma current	15
Plasma temperature (keV)	10
Type of plasma	D-T
Volume plasma chamber (m ³)	837
Fusion power (MW)	250-500
Fission power (MW)	3000

Table 1: Parameters of the hybrid system based on Tokamak [1]

FFS consists in a nuclear fusion reactor coupled to a fission blanket. The fusion reactor uses deuterium (D) – tritium (T) resource, which produces after the product generated decay highenergy neutrons and high neutron flux by the D–T plasmas. These neutrons are used as an external source to drive a subcritical fission blanket with fertile and/or fissionable materials. The neutrons produced in fusion reactions – those with 14.1 MeV energy produced by D-T fusion - increase the probability to induce transmutation in transuranic nuclides due to the probability of fission per neutron absorbed being greater for all the actinides in a hard neutron spectrum [1].

FFS operates in the sub criticality condition, resulting in a number of potential positive attributes, such as no reactivity insertion can have potentially catastrophic consequences; when the fusion source is shutdown, the neutron population eventually decreases inside the fission blanket. In addition, the fission blanket geometry is favorable for neutron leakage, which would contribute to sub criticality conditions [4]. Such systems, due to reaction induction with great energy release, uses as coolant liquid metals, mainly due to their low moderation, which allows to obtain a hardness neutron spectrum and they have low neutron absorption cross section so as not to reduce the neutron population in the reactor core, which would reduce fission reactions in transmutation layer. Thereby, different coolant materials in FFS were suggested for comparison between them through neutronic parameters and final actinide amounts, including that used in reference work, to show what is (are) the most suitable coolant(s) to be used in that system.

1.1. Coolants

Nuclear reactors must use a coolant material to remove the heat generated by the fission reactions and by the decay of radioactive isotopes in the core, assuring system safety. This removed heat by the primary coolant is used for the energy generation in a second cooling system. Coolant materials for a FFS usually are liquid metals, mainly for their low moderation – which is favorable due the greater induction of fission reactions in transuranic materials in a harder neutron spectrum - high boiling points and good heat transfer and conduction properties, which were chosen according to these favorable properties.

1.1.1. Na

Sodium (Na) is a very common and abundant element on the nature but not found free in nature, so it is obtained by sodium chloride igneous electrolysis (most abundant sodium compound). Na has high thermal conductivity, large availability, is cheap and it does not presents toxicity. It is liquid at relativity low temperatures and has a high boiling point. Na shows disadvantages, as violent chemical reactions with oxygen and water, requiring a secondary coolant circuit - also because possible sodium-neutron reactions, making sodium radioactive; and it could be crystallized, causing impurities formation and undesired corrosion in the reactor. Zircaloy alloy reacts with sodium, thus stainless steel cladding is indicated to use with sodium cooler [5, 6].

1.1.2. Pb

Lead (Pb) is a heavy metal with a high density. It can be extracted from mined lead ore or recovered from recycled products. Pb is malleable and resistant to corrosion; presents a significant high boiling point, meaning that the reactor can be operated without boiling risk at higher temperatures, improving thermal efficiency; low neutron moderation due to your high mass; no significant reactivity with water, not requiring a secondary coolant material circuit; excellent radiation blocker (alpha, beta and gamma radiations) and virtually transparent to neutrons. The high lead melting point can be a problem when the reactor is operated at lower temperatures due the coolant solidification. Lead and lead oxide are highly toxic substances, representing a health risk. Pb density demand high pumping power even presenting good capability to circulate under natural convection. Some disadvantages of the Pb are, it might has potential damage impact on structural integrity in case of earthquakes, is necessary to

limit the lead velocity to reduce structural material corrosion. Therefore, it is recommended to use stainless steel cladding due to high corrosion [5, 6].

1.1.3. PbBi

Lead-Bismuth is a eutectic alloy, heavy metal and has a high density. The considered alloy proportion was 45 wt% Pb – 55 wt% Bi (*PbBi*). The alloy is an excellent radiation shielding as good as lead. It has a significant high boiling point, low moderation and it has not reaction with water or oxygen. However, it has a lower melting point in comparison with their constituents, representing an advantage to keep it in liquid state. Lead-Bismuth is a toxic mixture, very corrosive even for steel. It is necessary to coat the stainless steel structures with aluminum. The bismuth is not easy to find due to its abundance in earth crust mass - 10^{-5} %. Furthermore, polonium-210 (²¹⁰Po) is produced from neutron irradiation in bismuth, which is a potent alpha emitter, being lethal if internal contamination occurs. The radioactive polonium demands special precautions to control alpha contamination during reactor refueling and handling coolant components [7].

1.1.4. NaK

Sodium-Potassium is a eutectic alloy, liquid at room temperature due to your low melting point, which represent a great advantage in nuclear reactors. NaK has low price, no toxicity and good heat transfer characteristics. Stainless steel can be used to clad the NaK coolant reactor. However, NaK ignite spontaneously with air and react violently with water, this could have some safety concerns. The considered sodium-potassium ratios were 22 wt% Na – 78 wt% K (*NaK 1*) and 44 wt% Na – 56 wt% K (*NaK 2*). *NaK 1* melting and boiling points are lower than *NaK 2* due the higher potassium concentration [7].

1.1.5. LiPb

Lithium-Lead (Li₁₇Pb₈₃) is an eutectic alloy proposed as coolant for fusion systems, due to the tritium (T or ³H) generation for neutron-lithium reaction. LiPb eutectic permits the use of enriched or natural Li and has a relatively low cost in comparison with other tritium generation. The natural lithium isotopic composition is formed by ⁶Li (7.5%) and ⁷Li (92.5%). The lithium reactions for tritium production, from the natural lithium, are ⁶Li(n, α)T mainly for thermal neutrons, and ⁷Li(n, α)n'T, which needs a neutron energy bigger than 2.5 MeV to

reaction happens. Further, ⁶Li neutron reaction is an exothermic reaction, releasing 4.8 MeV. LiPb toxicity varies with the lead concentration (being higher with greater lead amount). The most suitable clad considered for this alloy was stainless steel with aluminum coating to avoid tritium and lithium leakage. The considered lithium-lead ratios were 0.7 wt% Li – 99.3 wt% Pb with natural lithium (*LiPb 1*) and 0.7 wt% Li – 99.3 wt% Pb with 20% ⁶Li 'enrichment' (*LiPb 2*) to increasing the tritium production, which *LiPb 2* is the coolant material used in Ref.1 [8, 9].

1.1.6. MgPb

Magnesium-Lead is a eutectic alloy that has recently evaluated as coolant for fusion systems. It presents toxicity due to lead, has a lower melting point than their constituents have. It is possible to use electromagnetic pump due to high magnesium electrical conductivity; good heat conductor. On the other hand, little information was found for MgPb alloy, which more researches are required in the material compatibility aspect to confirm the possibility to use MgPb in practical reactor conditions. The considered magnesium-lead proportion was 2.5 wt% Mg – 97.5wt% Pb [10, 11].

Figures 2-4 show the neutron cross sections (total, absorption and scattering respectively) to each coolant materials for proper analysis of the neutronic parameters - mainly for the hard neutron spectrum range - all in comparison with the reference coolant *LiPb 2*. Their cross sections were generated for each nuclide at 613.15 K (340 °C). The nuclides with several isotopes were produced referent to its natural abundance (except for *LiPb 2* which has 20% 'enrichment' of ⁶Li) and each one was processed taking in consideration neutrons produced by fusion reactions and their possible cross sections. Therefore, each material has its own composition with different nuclides and mass fraction. Thus, the cross sections plotted for each coolant material represent the combination of the different nuclides with their respective weight contribution to the material. Through the cross sections showed below, is expected that the neutronic behavior be different for each coolant. Apparently, the coolants that have lead in your composition cross sections, which maintain a greater neutron population in the system and hence in transmutation layer. Although the scattering cross section is bigger in these coolants too, the loss of energy from the neutron collision with lead atoms is smaller due the higher nuclei mass of lead. Thus, is also expected that the neutron moderation is less in these coolants. *Fig. 5* shows the cross sections of the coolant materials for the (n,2n) reaction. It is plausible to analyze them because the neutron population is important to the system, which your increase or decrease can be influenced by this reaction. As can be seen, all the coolants that have lead in your composition are more favorable to (n,2n) reaction at the energy spectrum band worked, increasing the neutron population in the system.





Figure 2 – Neutron Total Cross Sections of coolant materials





Figure 3 – Neutron Absorption Cross Sections of coolant materials





Figure 4 – Neutron Elastic Scattering Cross Sections of coolant materials





Figure 5 – (n,2n) cross sections of coolant materials

The materials for cooling the reactor core were chosen according to their favorable properties for use in a fast reactor. Metals mixtures make the eutectic composition, i.e., the blend melt temperature is less than the melt temperature of each blend element. This is an advantage because a smaller heat would be withdrawn from the reactor to keep the coolant in the liquid state. For example, the lead-bismuth mixture has a melting point of 125°C (degrees Celsius), while lead and bismuth have 327.5°C and 271.3°C, respectively. The proposed coolant materials and their properties, such as the mixture mass percentage, density, melting and boiling points are presented in *Table 2*, which shows that all the considered coolant materials have melting points below the temperature chosen, ensuring that the coolant remains in the liquid state.

Coolant	Mass percentage	Density (g/cm ³) at	Melting Point (°C)	Boiling Point (°C)
		~ 400°C	1 01110 (0)	
Na	-	0.856	97.8	881
Pb	-	10.51	327.5	1740
NaK 1	22%Na - 78%K	0.785	-12.6	785
NaK 2	44%Na - 56%K	0.812	6.9	812
PbBi	45%Pb - 55%Bi	10.19	125	1670
LiPb 1	0.7%Li - 99.3%Pb	9.33	235	1665
LiPb 2 *	0.7%Li - 99.3%Pb	9.33	235	1665
	(with 20% of ⁶ Li)			
MgPb	2.5%Mg - 97.5%Pb	9.21	248	1610

 Table 2: Coolant materials features for FFS [5 - 11]

This work aimed to analyze mainly the effective multiplication factor (k_{eff}) values during time and other parameters as well, such as the total transuranic (minor and major actinides) amounts in the transmutation layer after a fuel burnup simulation using MONTEBURNS [12] (MB) for FFS utilizing different coolant materials. These factors were analyzed to check what coolant would favor a larger neutron population in the system and consequently causes a greater transmutation of the transuranic nuclides, still maintaining the sub criticality condition. The MB links the Monte Carlo N-Particle [13] (MCNP) with the ORIGEN2.1 [14] depletion code. The neutronic parameters are obtained from the MCNP and then used by the ORIGEN to perform the fuel burnup, which includes the buildup, decay and processing of radioactive materials from one-group neutronic calculation. Then the isotopic composition obtained from the ORIGEN goes back to the MCNP to calculate the flux of the new composition that is submitted to the fusion neutron source, and so on, until finishing each cycle. At the end of each cycle, the MB makes some calculations from the data obtained, such as energy per fission, flux normalization, reactor physics constants, effective multiplication factor, power, and the fractional importance.

2. METHODOLOGY

The FFS simulation was performed such that the fuel composition used was not 20% of fissile material as in [1]. The imposed fissile material was only 10% since it was not known how the effective multiplication factor behavior during fuel burnup for the different coolant materials, but is expected that it can be higher due the non-lithium presence in some coolants, which could cause a reactivity increase depending on the fissile material amount. The k_{eff} values

could be very high, being able to reach the criticality or super criticality condition. Therefore, the use of low fissile material on the reprocessed fuel by UREX+ technique in this case implies a greater assurance to maintain the desirable system sub criticality condition. The fuel composition used is presented in *Table 3*, being the same for all simulations performed. It was changing only the coolant material for each analysis, remaining the fuel composition and geometry features of the reactor.

Isotope	Nuclear Fuel 10%	Isotope	Nuclear Fuel 10%	Isotope	Nuclear Fuel 10%
²³² Th	7.3836E+01	²⁴² Pu	8.5552E-01	²⁴⁴ Cm	4.3057E-02
²³⁷ Np	4.6379E-01	²⁴¹ Am	4.9714E-01	²⁴⁵ Cm	2.2687E-03
²³⁸ Pu	2.4565E-01	^{242m} Am	1.3297E-03	²⁴⁶ Cm	2.9199E-04
²³⁹ Pu	7.1683E+00	²⁴³ Am	1.8669E-01	¹⁶ O	1.2068E+01
²⁴⁰ Pu	3.0061E+00	²⁴² Cm	1.0781E-05		
²⁴¹ Pu	1.6249E+00	²⁴³ Cm	5.7274E-04		

Table 3: Fuel material composition spiked with thorium

The geometry parameters were the same as those used in [1], based on a Tokamak system. The materials used for the Tokamak system were almost the same, according to the ITER guidelines [15] and the article of Fusion Engineering and Design [16]. W-1.1TiC [17] is used as inboard First Wall (FW) and S-Be65 as outboard FW material. The only changed material was for the vacuum vessel, filled with 55 % of stainless steel SS304B7 and 45 % of water [18].

The MCNP code was modeled to the flux calculation, where the number of particles (nps) was designated 10^6 . For the temporal evolution calculation to neutronic parameters in MB, the number of cycles was 40 and the number of steps was fixed in 10 where each step has a range of 365 days. The fission power used for the burnup was 3000 MW. The utilized fusion source was D-T. The simulation performed takes into account the use of different coolant materials for FFS, including the Li₁₇Pb₈₃ coolant which used in [1] for comparison purposes.

The analyzed variables after burnup were the $k_{eff's}$ and the final transuranic amounts, mainly the major actinides [Plutonium (Pu) and Uranium (U)] and minor [Neptunium (Np), Americium (Am) and Curium (Cm)], obtained from the simulation. These variables were taken into account for more suitable material choice for reactor cooling so that the neutron parameters were the most desired possible, that is, the transmuted actinide amounts were as large as possible (therefore higher k_{eff} values), which represent certain current challenges in relation to the management of these nuclear wastes [19]. The calculations provided the time evolution of k_{eff} , as well as the actinide amounts after burnup. The negative values in the tables mean depletion of the material and buildup for positive values.

3. RESULTS AND DISCUSSIONS

Fig. 6 shows the time evolution of k_{eff} for all different coolant materials. In the first analysis, the fuel enrichment proposed was adequate because the k_{eff} values remained slightly smaller than the criticality condition, which was in agreement with the low fuel enrichment proposed for the simulation. On the other hand, the system could be critical if the 20% of fissile material as in [1] depending on the used coolant. The k_{eff} values using different coolants present similar behaviors during burnup. Nevertheless, a significant difference was observed in the k_{eff} values for each coolant material used, where each one has its own properties that influence on the system criticality, showing consistency the different coolant materials study for the system analysis. Furthermore, the performed simulations showed that the coolant (Li₁₇Pb₈₃) used in [1] called here as *LiPb 2* presented lower k_{eff} values compared to other analyzed coolants.



Figure 6 - k_{eff} for different coolant materials in a FFS during burnup

NaK 1 presented the lowest values of k_{eff} , due the potassium concentration, which increases the neutron absorption probability through cross section analysis. The k_{eff} values for the *Na* coolant were higher than the sodium mixtures - *NaK 1* and *NaK 2*, which presented the lowest

 k_{eff} values, due to their high neutron absorption, and high resonance structure by the potassium presence, mainly at the hard spectrum and for *NaK 1*. The k_{eff} values of the referent coolant *LiPb 2* just remained above of the sodium coolants.

LiPb 1 presented higher values than coolants based on sodium due to less neutron absorption and for *LiPb 2* too owing the lower ⁶Li concentration. Above *LiPb 1*, as observed in *Fig. 6*, three coolants stood out (*Pb*, *PbBi* and *MgPb*), presenting the highest k_{eff} values. They have a low neutron absorption cross section in the thermal range, which allows a greater fission probability of the fissile nuclides in the fuel, ensuring a higher neutron population in the system. *MgPb* presented lower k_{eff} values than *Pb* and *PbBi*, due to the higher neutron absorption possibility. In relation to *Pb* and *PbBi*, the time evolution values of k_{eff} were similar, as well as the cross sections, unless at a smaller resonance peak at *PbBi* in approximately 1 keV energy and in (n,2n) cross section at *MgPb* for energies above 20 MeV.

Fig. 7 shows the ³H atoms production per volume units per second for each coolant. It is an important factor to be analyzed, such that the FFS needs tritium for the D-T fusion reactions. The values was obtained through the reaction rate in MCNP code, which was considered the sum of the (n,T) and (n,n'T) reactions. As already expected, the coolants containing lithium have the greatest tritium productions, mainly *LiPb 2* due the higher ⁶Li amount. The coolants that contain sodium did not have any tritium production, which represents certain disadvantage to the others. *PbBi* has a greater tritium production than *MgPb* and *Pb*, showing be a more suitable choice for tritium breeder among them.

Fig.8 presents the temperature coefficient of reactivity for each coolant material at different temperature variations, where the considered temperature coefficient was for the fuel material. The temperature coefficient of reactivity (α_T) calculation was performed through Eq. (1) below

$$\alpha_T = \frac{\partial \rho}{\partial T} \qquad (1)$$

where ρ is the reactivity given by Eq. (2):

$$\rho = \frac{k_{n+1} - k_n}{k_{n+1}} = 1 - \frac{k_n}{k_{n+1}}, n = 0, 1, 2, 3... (2)$$

and k_{n+1} and k_n are the effective multiplication factors.

The considered fuel temperatures were 300, 600, 900, 1200 and 1500 Kelvin (K). The 300 K temperature was taken as reference for the calculation of temperature variation (Δ T). Since there is an increase in the temperature, its variation will have positive values. Wherefore, the reactivity variations should have negative values since α_T must be negative for safety criteria [20]. The k_{eff} values for each temperature were obtained through the criticality calculation provided by MCNP code for each coolant material. Since the reference temperature was 300 K, the reference k_{eff} value also was taken for this temperature; in other words, this value is k_n.

In first analysis, can be seen that α_T values are negative for each temperature variation and for all coolant materials, which is in accordance with imposed criteria. The reference coolant *LiPb 2* presents high α_T values, mainly at $\Delta T = 600$ K. *LiPb 1* and *PbBi* present the lowest α_T values for 300, 600 and 900 K of ΔT . *Na* presents the lowest α_T value for de $\Delta T = 1200$ K. However, for the other ΔT 's, it present higher values than *PbBi* and *LiPb 1*. The FFS fuel work temperature is about 1200 K, which represents a temperature variation of 900 K at this analysis. The lowest α_T value at this point is represented by *PbBi* coolant, which has also lower mean α_T values for temperature variations, representing more suitable results in relation on safety criteria.



Figure 7 – Reaction rate of tritium (³H) production for each coolant



Figure 8 – Temperature coefficient of reactivity for each coolant material

Regarding the actinides transmutation at end of the ten years burnup, the total amount for each actinide is shown in *Fig. 9*. Actually, the nuclides presented in *Fig. 10* evidently cause the largest amounts of depletion or buildup in each case, which represent almost the totality of the final amount.



Figure 9: Final actinide amounts after fuel burnup



Figure 10: Isotopes that most contributed to depletion or buildup amounts

On the one hand, a larger hard neutron spectrum is more suitable due the higher probability of actinide transmutation. On the other hand, the thermal neutron spectrum is important due to greater probability of thermal neutrons inducing fission reactions in fissile materials. *Figures*
11-14 present the neutron flux over the transmutation layer for each coolant material in different energy ranges.

Fig. 11 shows the neutron flux for E<100 eV. The flux decreases because thermal neutrons were being absorbed, causing fission reactions that release neutrons in a harder spectrum. Therefore, the flux of the fast neutrons increases during the burnup. *Fig. 12* shows the neutron flux for the epithermal range, where the sodium-based coolants presented the greatest values. It represent a higher probability of neutron capture due the higher resonance cross sections at this energy range, which decrease the neutron population in the system and consequently the k_{eff} values. The coolants that present a higher neutron flux as showing mainly in *Fig. 14* have more capacity to transmute transuranic nuclides, because of the greater probability of them (mainly minor actinides) being transmuted in the hardness spectrum. Although *LiPb 2* shows a high hard neutron flux, it has not greater k_{eff} values in relation to other coolants due to its higher neutron absorption mainly in the thermal range by the lithium presence, which is directly related with the capacity to transmute fissile materials – ²³³U, ²³⁵U, ²³⁹Pu and ²⁴¹Pu.



Figure 11 – Neutron flux over transmutation layer to E<100 eV



Figure 12 – Neutron flux over transmutation layer to 100 eV<E<100 keV



Figure 13 – Neutron flux over transmutation layer to 100 keV<E<1 MeV



Figure 14 – Neutron flux over transmutation layer to 1 MeV<E<20 MeV

The results showed in Fig. 9 and Fig. 10 were fragmented to make the visualization and understanding of them in a clearer way. Fig. 15 shows the fissile uranium buildup amount after fuel burnup for each coolant. The ²³⁵U generated amount is insignificant in comparison with ²³³U generated, but both are import. This generated fissile uranium can be used in Light Water Reactors (LWR's) as fuel material to supply them, mainly by the fact that the ²³³U generated amount be in order of tons. It is evident that the fissile material production by FFS would result in a considerable decrease in the required amount of mined uranium and also in the uranium enrichment necessity. Therefore, in addition to transmuting transuranic nuclides from conventional reactors, FFS also produces fuel material for them and also for itself. Na presented higher values of fissile uranium produced. In addition, systems with sodium-based coolant had the highest production values of ²³³U. It can be explained through Fig. 12. It shows that Na, NaK 2 and NaK 1 presented the greater epithermal neutron flux (100eV<E<100keV), respectively, and thorium has a great resonance cross sections at this energy range, as can be seen in Fig. 16 [21]. Fig. 16 also shows the fission cross sections for ²³²Th, which has a greater fission cross section in a hard neutron spectrum. Despite this advantage, they did not present such high keff values, which conclude that there were more radioactive capture reactions than fission reactions, both in ²³²Th. Therefore, the ²³³U buildup amount for lead-based coolants, mainly for Pb and PbBi, is lower because of the larger fission reactions in ²³²Th than neutron capture. Moreover, Fig. 17 shows the non-fissile uranium buildup amount. As can be seen, the sodium-based coolants had a greater buildup than leadbased coolants. This could imply that there are more absorber nuclides in the system, decreasing the neutron population and its capacity to transmutation.

Fig. 18 shows the fissile plutonium depletion for each coolant. Regardless of the coolant, there had a considerable depletion of fission plutonium, which shows that FFS based on Tokamak represents a good option against the proliferation of nuclear weapons. The coolants presented similar depletion values for both ²³⁹Pu and ²⁴¹Pu, except for *Na* that presented larger ²³⁹Pu depletion. As there were differences in the effective multiplication factor values among the coolants, there were larger capture reactions than fission reactions among the different coolants analyzed. So, the ²³⁹Pu depletion was higher than ²⁴¹Pu due the susceptible neutron capture in ²³⁹Pu, which could to transform in ²⁴¹Pu through another neutron capture. *Fig. 19* shows the non-fissile plutonium buildup amount for each coolants than in lead-based coolants, especially for *Na*, representing a lower plutonium fission capacity in sodium-based coolants.

Fig. 20 shows the minor actinide (Np, Am, Cm) amount after fuel burnup. The sodium-based coolants had a lower increase in minor actinides than lead-based coolants, mainly in *Na*. This is due to the high epithermal neutron flux, which indicates there is more neutron absorption in resonance regions at thorium in this case, producing a higher amount of ²³³U and making hard the formation of minor actinides. *Figures 21-23* present the amounts of Np, Cm and Am, respectively, to evidence *Fig. 20* in a clearer way. On one hand, *Fig. 21* shows that *Na* presented the higher depletion of Neptune amount, representing an advantage in relation to the others. On the other hand, *Na* presented the greater buildup of Curium amount as showing in *Fig. 22*, what represent certain disadvantage. Nevertheless, *Fig. 23* shows the Am buildup after fuel burnup. It is the one that most contributed in the minor actinide amounts, mainly the ²⁴¹Am isotope as presented before. The greatest amounts are represented by lead-based coolants due a higher thermal neutron flux (E<100eV) as showed in *Fig. 11*, which contributed in Am formation by neutron absorption in non-fissile Pu.



Figure 15 – Fissile uranium buildup amount



Figure 16 - Neutron capture and fission cross sections at ²³²Th



Figure 17 – Non-fissile U buildup amount.



Figure 18 – Fissile Pu depletion amount.



Figure 19 – Non-fissile Pu buildup amount.



Figure 20 – Minor actinide buildup amount.



Figure 21 – Np depletion amount.



Figure 23 – Americium buildup amount

3.55E3

Fig. 24 represents the sum of minor (Np, Am, Cm) and major (U, Pu) actinide amounts after the fuel burnup. The *Na* presents a positive value in the sum, which indicates low transuranic transmutation. It can be noted from the neutron flux analyses, where *Na* shows the lowest hardness spectrum neutron flux. The largest neutron flux for 100 eV<E<100 keV is from *Na* coolant. So, it is not effective to transmute minor and major actinides, due to its greater flux

be in resonance energy ranges, contributing more for capture reactions than fission reactions. However, this allows a greater ²³³U production as previously mentioned. Although *Na* k_{eff} values are bigger than *NaK 1* and *NaK 2*, they present better transmutation values than *Na* coolant, due the higher hardness spectrum. On the one hand, *NaK 2* presents a small value on the total actinide amount with a reduction of 24.76 kg. On the other hand, *NaK 1* showed a much lower value than the *PbBi*, *MgPb*, *Pb*, *LiPb1* and *LiPb 2*, the difference reaches almost 400 kg. The greatest difference values were obtained for the coolants *Pb*, *PbBi*, *MgPb*, *LiPb 1* and *LiPb 2* respectively. *Pb* and *PbBi* present the highest depletion values, where the values are similar. *MgPb*, which has the closest value of *Pb* and *PbBi*, has a difference of approximately 48kg in relation to the other two, a considerable amount of mass especially taking into account non-proliferation requirements of nuclear weapons.



Figure 24 – Final amounts of minor and major actinides

4. CONCLUSIONS

The FFS system based on Tokamak represents an important alternative pathway for energy generation through the use of radioactive waste containing transuranic nuclides from conventional reactors - which represent a challenge for their management and storage - as fuel material. Furthermore, as shown in this work, FFS contributes to the production of fissile

material (mainly ²³³U) that can be used in conventional reactors and also for fuel material production for itself.

The most desired coolant behavior showed in this work was those that presented the lowest total final actinide amounts and the highest k_{eff} values. The cross sections and neutron flux analyses were emphasized for the hard neutron spectrum range. *Na* coolant takes advantage of the others because it produces a larger ²³³U amount, which would be destined as fuel material in conventional reactors like LWR's. However, this leads to a lower transmutation capacity due to greater neutron absorption at thorium, decreasing the neutron population and thus the k_{eff} values. The k_{eff} analysis showed that *PbBi* and *Pb* presented the highest effective multiplication factor values during the fuel burnup. These same coolants presented the lowest final actinide amounts, which shows to be plausible in relation to k_{eff} values. *LiPb 2*, the coolant used in the reference work, presented lower values among them due to the lithium presence, even lower than 1% in the alloy, and also to the 20% ⁶Li 'enrichment', increasing the neutron absorption. *MgPb* presented lower k_{eff} values than lead and lead-bismuth coolants, due to your higher absorption cross section values, and consequently lower total final actinide amounts.

Therefore, lead or lead-bismuth would be the best choices for the coolant material in an FFS based on Tokamak among those analyzed in this work, due their higher actinide transmutation. The use of these coolants will optimize the system in relation to the neutronic parameters and the final amounts of transmuted actinides. Lead could have a certain advantage over the lead-bismuth mixture in the coolant choice because it is easier to obtain and the non-production of polonium by neutron reactions as it can happen in the *PbBi* coolant. However, lead-bismuth has a much lower melting point than lead and also the polonium production may be low in relation of radioactive fission products produced, which could offset these disadvantages and had more appropriated results than lead. Therefore, lead-bismuth is the most suitable coolant material choice for FFS. Future works will focus on increasing of the fissile material amount in the fuel to achieve higher k_{eff} values, but still maintaining the sub-criticality condition.

5. ACKNOWLEDGMENTS

The authors are grateful to the Brazilian research funding agencies, CNEN (Brazil), CNPq (Brazil), CAPES (Brazil) and FAPEMIG (MG/Brazil) for the support.

6. **REFERENCES**

1. C.E. Velasquez, C. Pereira, M.A.F. Veloso, A.L. Costa & G.P. Barros, "Fusion–Fission Hybrid Systems for Transmutation", *Journal of Fusion Energy*, **Volume 35** – **Number 1**, pg 1-134 (2016).

C.E. Velasquez, C. Pereira, M.A.F. Veloso, A.L. Costa, "Layer thickness evaluation for transuranic transmutation in a fusion-fission system.", Nucl. Eng. Des. 286, 94–103 (2006).
C. Velasquez, C. Pereira, M.A.F. Veloso, A.L. Costa, "Modelling effects on axial neutron"

flux in Tokamak device." Prog. Nucl. Energy 78, 388–395 (2015).

4. Nicholas R. Brown, Jeffrey J. Powers, Michael Todosow, Massimiliano Fratoni, Hans Ludewig, Eva E. Sunny, Gilad Raitses, Arnold Aronsona, *Thorium Fuel Cycles with Externally Driven Systems*, Nuclear Technology, **vol.194**, 233–251 (2016).

5. Christian Latgé, "Coolants for Fast Neutron Reactors", *Physics and Technology of Innovative Nuclear Energy Systems for Sustainable Development*, Trieste – Italy (2016).

6. PTable – Dynamic Periodic Table, <u>http://www.ptable.com/</u>

7. J. Zhang, Lead–Bismuth Eutectic (LBE): A Coolant Candidate for Gen. IV Advanced Nuclear Reactor Concepts, ADVANCED ENGINEERING MATERIALS, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim (2013).

8. E. Mas de les Valls, L.A. Sedano, L. Batet, I. Ricapito, A. Aiello, O. Gastaldi, F. Gabriel, "Lead–lithium eutectic material database for nuclear fusion technology", *Journal of Nuclear Materials*, **Vol. 376**, 3rd edition, pp. 353-357 (2008).

9. Y. Wu and the FDS Team, "Conceptual design and testing strategy of a dual functional lithium–lead test blanket module in ITER and EAST", *IOP Publishing and International Atomic Energy Agency*, Nucl. Fusion 47, pp. 1533–1539 (2007).

10. Y. Kim, S. J. Kim, T. Y. Song, *Physics Study on Lead-Magnesium-Eutectic-Cooled fast reactor for TRU* Transmutation, Nuclear Energy Agency of the OECD (NEA): Organization for Economic Co-Operation and Development - Nuclear Energy Agency (2005).

11. R. A. Khairulin, S. V. Stankus, "Density of Liquid and Solid Mg–Pb Alloys", *Journal of Engineering Thermophysics*, Vol. 22, N^o. 1, pp. 7–19 (2013).

12. D. Poston, H. Trellue, User's Manual, Version 2.0 for Monteburns Version 1.0.LA-UR-99-4999 (1999).

13. X-5 Monte Carlo Team, MCNP, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, vol. II. User's Guide University of California, Los Alamos National Laboratory (2003).

14. A. Croff, A User's Manual for the Origen2 Computer Code. ORNL/TM-7175 (1980).

15. ITER-Final Design Report (2001), http://www.naka.jaea.go.jp/ ITER/FDR/

16. Y. Wu, F.D.S. Team, "CAD-based interface programs for fusion neutron transport simulation." **Fusion Eng. Des. 84**, 1987–1992 (2009).

17. A. Robinson, L. El Guebaly, D. Henderson, *W-Based Alloys For Advanced Divertor Designs: Detailed Activation And Radiation Damage Analysis* (Fusion Technology Institute, University Of Wisconsin, Madison, 2010).

18. C. Velasquez et al., "Axial neutron flux evaluation in a Tokamak system: a possible transmutation blanket position for a fusion– fission transmutation system." **Braz. J. Phys.** 42(3-4), 237–247 (2012).

19. C. Forsberg, *Coupling the Back End of Fuel Cycles with Repositories*, Nuclear Technology, vol. 180 (2012).

20. James J. Duderstadt, Louis J. Hamilton, *Nuclear Reactor Analysis*, Department of Nuclear Engineering – The University of Michigan, John Wiley & Sons, Inc., 1976.

> Semana de Engenharia Nuclear e Ciências das Radiações - IV SENCIR 2018

EVALUATION OF A TRITIUM BREEDING LAYER IN A FUSION-FISSION HYBRID SYSTEM

R. V. A. Marques, C.E. Velasquez, C. Pereira, M.F. Veloso, A.L. Costa

Departamento de Engenharia Nuclear - Universidade Federal de Minas Gerais Av. Antônio Carlos, 6627 campus UFMG 31270-901, Belo Horizonte, MG

Keywords: Fusion-Fission Hybrid System, Tritium breeders.

ABSTRACT

A transmutation layer in a Tokamak system was designed with a spent nuclear fuel matrix composed by transuranic nuclides spiked with thorium. A previous study evaluated the transmutation layer localization in a fusion-fission hybrid system and results showed among all liquid metal coolants studied, the lead (Pb) and the lead-bismuth (LBE) coolants presented the higher transmutation rates. However, by not using lithium-based coolants, the tritium production is substantially decreased and it is required to maintain the D-T fusion reactions. So, the aim of this work is to analyze and compare what material could be used as a tritium breeder layer and how its insertion and localization could affect the system. The neutron flux and reaction rates were analyzed to evidence the best tritium breeder material at the breeder layer localization. The first results have shown that pure lithium at the chose tritium breeder layer location is more effective regarding the tritium production and also maintaining a harder neutron spectrum in transmutation layer.

1. INTRODUCTION

In previous studies performed by Nuclear Engineering Department - UFMG was shown the most appropriate place for the transmutation layer in a Fusion-Fission Hybrid System (FFS) - a nuclear fusion reactor coupled to a fission blanket - based on Tokamak [1]. The chose place provides a hardened neutron spectrum over transmutation layer increasing the capacity of actinide transmutation.

In order to continue this study and achieve higher actinides transmutation, different coolant materials were tested such as lead, sodium and lead-bismuth, sodium-potassium, lithium-lead, magnesium-lead eutectic alloys. The coolants with higher actinides transmutation are lead (Pb) and lead-bismuth eutectic (LBE) liquid metals. Therefore, they were chosen because of their hardening neutron spectrum, which are the most suitable options for transmutation enhancement [2].

The neutrons produced in fusion reactions – those with 14.1 MeV energy produced by D-T fusion - increase the probability to induce transmutation in transuranic nuclides due to the probability of fission per neutron absorbed being greater for all the actinides in a hard neutron spectrum [1]. These neutrons are used as an external source to drive a subcritical fission blanket with fertile and/or fissionable materials. Nevertheless, these coolant choices do not produce a significant amount of tritium to self-sustain the nuclear reactions.

Hence, it was considered in this work the insertion of a tritium breeder layer, which was placed before the transmutation layer for this analysis. The goal of this work is to analyze and compare which material is more suitable to be used regarding the tritium production and how the neutron flux behaves after the tritium breeder layer.

1.1. Tritium Breeders

Tritium (³H) and deuterium (²H) are two isotopes of hydrogen that will be used as fuel to the fusion reaction in International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER). While ²H can be extracted from seawater in virtually boundless quantities, the supply of available ³H is limited. The ³H can be produced within the Tokamak when neutrons escaping the plasma interact with a specific material contained in the blanket. This concept of 'breeding' ³H during the fusion reaction is important for the future needs of a large-scale fusion power plant [3]. All the candidates to ³H production have lithium in their composition because it is the most promising source of ³H due to its microscopic tritium production cross sections, mainly in lithium-6 (⁶Li) [4]. Tab.1 shows some attributes of the analyzed ³H breeders. All of them were chosen due to their liquid state at work temperature around 671.15 K, which is the temperature reference on the layer place. Fig.1 presents the microscopic ³H production cross sections for the different lithium materials evaluated. It shows that the cross sections had the same behavior through the energy spectrum analyzed. The highest probability for Li-6 to produce ³H is for thermal neutrons; in contrast, the Li-7 is for fast neutrons (~12 MeV). The Fig.1 presents two peaks of 0.5 MeV and 12MeV, which represents the highest probability for ³H production considering the range between 0.1 to 20 MeV.



Fig.1. Tritium breeders cross sections for tritium production.

1.1.1. LiMg

The lithium-magnesium alloy is an extremely light and strong alloy with one of the lowest metallic materials densities. This alloy has high electrical and thermal conductivities. However, its poor resistance to corrosion and low creep strength has slowed down its development and industrial use. The considered lithium-magnesium ratio was 8.7wt% Li – 91.3wt% Mg, where LiMg 1 has natural lithium and LiMg 2 has 20% ⁶Li enrichment to increasing the ³H production [5, 6].

1.1.2. Li

Overall elements, lithium has the highest specific heat and electrochemical potential. It also has excellent thermal and electrical conductivity; similarly, it has shown to exhibit superconductivity below 400 K and ferromagnetism properties as a gas. The element is considered both toxic and corrosive and must be handled with extreme care.

Natural lithium is composed of two stable isotopes, lithium-6 (⁶Li - 6.5wt%) and lithium-7 (⁷Li - 93.5wt%) with extremely low binding energies. The ³H production from the natural lithium is ⁶Li(n, H³) α mainly for thermal neutrons, and ⁷Li(n, H³)n' α , which needs a neutron energy higher than 2.5 MeV to reaction happens. Further, ⁶Li neutron reaction is an exothermic reaction, releasing 4.8 MeV. The considered lithium ratios were natural lithium (Li 1) and lithium enriched in 20% ⁶Li (Li 2) [7 – 11].

1.1.3. LiPb

Lithium-Lead (Li₁₇Pb₈₃) is an eutectic alloy proposed as a coolant for fusion systems due to H^3 generation for neutron-lithium reaction. LiPb eutectic allows the use of enriched or natural Li and has a relatively low cost in comparison with other ³H generation. LiPb toxicity varies with the lead concentration (being higher with greater lead amount). The most suitable clad considered for this alloy was stainless steel with aluminum coating to avoid ³H and lithium leakage. The considered lithium-lead ratio was 0.7wt% Li – 99.3wt% Pb, where LiPb 1 has natural lithium and LiPb 2 has 20% ⁶Li enrichment, which *LiPb 2* is the coolant material used in Ref.1 [1, 9, 10].

1.1.4. LiSn

Lithium-Tin alloy is a potential ³H breeder in a fusion reactor. Li–Sn alloy has a relatively low vapor pressure, a reasonably melting point and good thermal physical properties (thermal conductivity and heat capacity). However, there are a lot of basic properties not available such as boiling point. The considered lithium-tin ratio was 2wt% Li – 98wt% Sn, where LiSn 1 has natural lithium and LiSn 2 has 20% ⁶Li enrichment [12, 13].

Tritium	Density at ~ 400°C	Melting Point (°C)	Boiling Point
Breeder	(g/cm^3)		(°C)
LiMg 1	1.51	210	N/A
LiMg 2	1.496	210.7	N/A
Li 1	0.495	180.54	1347
Li 2	0.486	183.8	1350.3
LiPb 1	9.33	235	1665
LiPb 2	9.33	235	1665
LiSn 1	6.28	320	N/A
LiSn 2	6.274	320	N/A

Tab.1. Features of tritium breeders [5 - 13].

N/A: not available.

2. METHODOLOGY

The FFS system design based on a Tokamak is shown in Fig.2 [1]. First of all the tritium breeder layer was placed between the heat sink and the transmutation layer. The breeder layer was modeled with 2 cm thickness. This is due to the limitation of the MCNP to track the particles simulated on the system, thus the breeder layer volume is 5.13389 m³. In addition, the tritium breeder layer insertion in FFS causes an increase of 2 cm proportional for the external layers geometry dimensions. The materials used were the same, according to the ITER guidelines [14] and the article of Fusion Engineering and Design [15].

The Tokamak simulations were performed by MCNP5 code [16] using 10⁸ particles (nps). This amount of particles was suitable to obtain properly neutron flux and reaction rate calculation. The simulation uses different materials for the ³H breeder layer (Li, LiMg, LiSn, and LiPb) comparing the reaction rate for ³H production using two coolant materials (Pb, LBE). Moreover, the analysis focuses on how the insertion of the ³H breeder layer affects the neutron spectrum profile.



Fig.2. Tritium Breeder Layer in a FFS based on Tokamak.

3. RESULTS AND DISCUSSION

The reaction rate for ³H production considering both reactions (n, H³) and (n, n' H³) over the ³H breeder layer is shown in Fig.3. The analyses consider both coolants Pb and LBE proposed previously on the transmutation layer. First, the ³H breeders with 20% ⁶Li enrichment present higher ³H production values than their respective correlatives without ⁶Li enrichment. The Li 2 tritium breeder material presented the highest reaction rate value for ³H production, which is almost double of Li 1 production value. Among them, LiPb1 presents the lowest reaction rate value for ³H production, which already was studied as a coolant candidate for transmutation layer on the FFS [2]. Further, the ³H breeders produced a slightly larger amount of ³H with the use of LBE coolant than the use of Pb coolant due to the higher neutron scattering cross sections at the resonance region for LBE [2].



rig.5. Reaction rate for trittain production.

It is possible to verify in Fig.4 the reaction rate percentage for each ³H breeder considering elastic scattering, ³H production, and other reactions. The elastic scattering is the predominant reaction for all materials in the breeder layer inducing changes in neutron flux, especially on the hardened neutron spectrum.

On the one hand, others reactions for lithium-tin alloys show larger percentage values, which is not interesting from the point of view in ³H production purpose. On the other hand, pure lithium Li 1 and Li 2 presented larger percentage values for ³H production, mainly for Li 2.



Fig.4. Total neutron reactions for tritium breeders.

In the Fig.5 is shown the neutron spectrum before the transmutation layer in Tokamak system. The study took into consideration the neutron flux without the ³H breeder layer in the system for comparison purpose. Unlike, the ³H breeder layer placed on the system modifies the neutron spectrum, even more, varying the different ³H breeders used.

When the ³H breeder layer is placed at the system, the neutrons with 14.1 MeV are moderated due to elastic scattering reactions. This modifies the neutron spectrum from 14.1 MeV to an energy range between 0.01 and 1 MeV. The transmutation probability increases for the neutrons with high energy (higher than 5 MeV), this can be seen in the fission-to-total absorption probability ($\sigma_f/(\sigma_f+\sigma_\gamma)$) for each transuranic nuclide [17].

The ³H breeders that use natural lithium present a greater neutron flux than those with ⁶Li enrichment due to neutron elastic scattering for ⁷Li. Although, Li 2 presented a smaller neutron spectrum in the mentioned energy range, which means that occurs less elastic scattering reactions. It contributes to a hardened neutron spectrum reaching the transmutation layer. Moreover, the thermal neutrons flux is smaller at Li 2 due to the higher reaction rate for ³H production in this energy range.



4. CONCLUSION

The tritium production is studied with the purpose to have an acceptable amount of tritium production as a fuel for fusion reactions on the Tokamak. The Li 2 tritium breeder material presents the highest reaction rates for tritium production. It also showed a slightly greater tritium production considering the use of LBE coolant. The neutron flux analysis showed the influence of tritium breeders on the Tokamak system due to the moderation of 14.1 MeV energy neutrons. Despite, Li 2 had less influence in the hardened neutron spectrum due to the low neutron moderation. Furthermore, it presents a higher absorption of thermal neutrons for tritium production. To sum up, the best choice between the coolants are the LBE, and for the tritium breeder, is the Li 2.

ACKNOWLEDGMENT

The authors are grateful to the Brazilian research funding agencies, CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear (Brazil), CNPq – Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (Brazil), CAPES – Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (Brazil) and FAPEMIG – Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de Minas Gerais (MG/Brazil), for the support. We are also grateful to sponsors and donor volunteers for their support of this event.

REFERENCES

[1] C.E. Velasquez *et al.*, "Fusion–Fission Hybrid Systems for Transmutation", Journal of Fusion Energy, **Volume 35 – Number 1**, pg 1-134 (2016).

[2] R.V. A. Marques *et al.*, "Liquid Metal Coolants for Fusion-Fission Hybrid System – A Neutronic Analysis". No prelo.

[3] International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) Organization – Tritium Breeding (2018), retrieved from <u>https://www.iter.org/mach/TritiumBreeding</u>.

[4] HyperPhysics - © 2016 C.R. Nave, Georgia State University, Nuclear Fusion (2018), retrieved from <u>http://hyperphysics.phy-astr.gsu.edu/hbase/NucEne/fusion.html</u>.

[5] A. Sanschagrin *et al.*, "Mechanical properties and microstructure of new magnesium-lithium base alloys", Materials Science and Engineering, ELSEVIER (1996).

[6] American Elements – The Advanced Materials Manufacturer ®, Lithium-Magnesium Alloy (2018), retrieved from <u>https://www.americanelements.com/lithium-magnesium-alloy</u>.

[7] American Elements – The Advanced Materials Manufacturer ®, Lithium (2018), retrieved from <u>https://www.americanelements.com/li.html</u>.

[8] Nuclear Data Center at KAERI (Korea Atomic Energy Research Institute), Nuclide Table – Lithium (2018), retrieved from <u>http://atom.kaeri.re.kr:8080/ton/index.html</u>.

[9] E. Mas de les Valls *et al.*, "Lead–lithium eutectic material database for nuclear fusion technology", Journal of Nuclear Materials, **Vol. 376**, 3rd edition, pp. 353-357 (2008).

[10] Y. Wu, F.D.S. Team, "Conceptual design and testing strategy of a dual functional lithium–lead test blanket module in ITER and EAST", IOP Publishing and International Atomic Energy Agency, **Nucl. Fusion 47**, pp. 1533–1539 (2007).

[11] K.Lackner, EFDA-Garching, "ITER and the Fusion Reactor: Status and Challenge to Technology", European Fusion Development Agreement – 15^a Plansee Seminar, Vol.4 (2001). [12] Yi Kang, Takayuki Terai, "Moderate tritium properties in lithium–tin alloy as a liquid breeder/coolant", ELSEVIER, *Fusion Engineering and Design*, Volume 81, Issues 1–7, February 2006, Pages 519-523.

[13] K. Natesan, W. E. Ruther, "Fabrication and properties of a tin–lithium alloy", ELSEVIER, Journal of Nuclear Materials, Volumes 307–311, Part 1, December 2002, Pages 743-748.

[14] International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) - Final Design Report (2001), retrieved from <u>http://www.naka.jaea.go.jp/ ITER/FDR/</u>.

[15] Y. Wu, F.D.S. Team, "CAD-based interface programs for fusion neutron transport simulation." **Fusion Eng. Des. 84**, 1987–1992 (2009).

[16] X-5 Monte Carlo Team, MCNP, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, vol. II. User's Guide University of California, Los Alamos National Laboratory (2003).

[17] C.E. Velasquez *et al.*, "Axial Neutron Flux Evaluation in a Tokamak System: a Possible Transmutation Blanket Position for a Fusion Transmutation System", Nuclear Physics 42:237–247, Sociedade Brasileira de Física (2012).

> 23rd Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy – TOFE 2018

TRITIUM BREEDER LAYERS EVALUATION ON FUSION-FISSION HYBRID SYSTEM

R.V.A. Marques, M. Saturnino, F. Martins, C.E. Velasquez, C. Pereira, M.A.F. Veloso, A.L. Costa

Departamento de Engenharia Nuclear Escola de Engenharia – UFMG Av. Antônio Carlos, 6627 - Pampulha - Belo Horizonte – MG, Brazil CEP 31270-901 +55 (31) 3409-6666 claubia@nuclear.ufmg.br

Keywords: Fusion-Fission Hybrid System, tritium breeders, neutronic parameters.

ABSTRACT

Lead-bismuth eutectic is used as a coolant for the Fusion-Fission Hybrid System (FFS) based on a Tokamak, which enhances the transmutation of transuranic nuclides. Nevertheless, this coolant does not produce enough tritium to supply the fusion reactions at the system. Therefore, the aim of this work is to evaluate the insertion of tritium breeder layers on the FFS to enhance tritium production. The analyzed materials for tritium production were beryllium, boron and lithium alloys. The results indicate the most suitable material for tritium production depending on the tritium breeder layers location. The results indicate that there is a strong dependency on the position of the tritium breeder layer affecting the neutronic parameters and nuclides transmutation such criticality and fuel depletion. The reaction rates for tritium production and fuel composition after a fuel burnup were analyzed using MCNP5 and MONTEBURNS codes.

1. INTRODUCTION

The Fusion-Fission Systems (FFS) is a nuclear fusion reactor coupled to a fission blanket, studied for transuranic transmutation purpose. Previously studies show the most suitable place for the transmutation layer on the Tokamak allowing the highest transmutation reaction [1]. It was designed with spent nuclear fuel reprocessed by UREX+ technique and then spiked with thorium. Different coolant materials were tested to improve the transmutation during operation time on the Tokamak. The results determined that lead-bismuth (LBE) coolant has the highest transmutation of transuranic nuclides. Nevertheless, these coolant choices decrease the tritium production required to sustain deuterium-tritium fusion reactions.

Deuterium and Tritium are two hydrogen isotopes will be used as a fuel for fusion reaction at International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER). The neutrons produced by deuterium and tritium fusion reactions increase the probability to induce fission-to-total absorption rate [2]. While deuterium can be extracted from seawater in virtually boundless quantities, the supply of available tritium is limited. Then, tritium can be obtained when the neutrons produced by deuterium and tritium reactions interact with a specific material contained in the blanket. The tritium breeding concept during the fusion reaction is important for the future needs of a large-scale fusion power plant [3]. Hence, the main purpose of this work is to evaluate the tritium breeder layers (TBL) and different materials for tritium production.

1.1. Tritium Breeders

The materials for tritium production purpose were beryllium chloride $(BeCl_2)$ with 11.3wt% Be – 88.7wt% Cl, lithium fluoride - beryllium fluoride (FLiBe 1 and FLiBe 2) with 53wt% LiF – 47wt% BeF₂, boron oxide (B₂O₃) with 31wt% B – 69wt% O, and pure lithium (Li 1 and Li 2) [4-9]. Li 2 and FLiBe 2 have 20% lithium-6 (⁶Li) enrichment due to its higher microscopic cross sections for tritium production mainly for thermal neutrons [10]. They were chosen because of the tritium production by neutron absorption in lithium, boron and beryllium nucleus [11-12]. They were also chosen owing to all of them are in liquid state considering the temperature around 733.15 K of the TBL before the TL. On the other hand, if considered the temperature of the TBL around 613.15 K after the TL, only Li 1 and Li 2 remain in the liquid state.

The microscopic tritium production cross sections for the different materials evaluated are shown in Fig.1. The highest tritium production probability is for thermal neutrons due to the presence of lithium in the breeding materials. Regarding the fast neutrons, the figure presents two peaks one at 0.5 MeV and 12 MeV caused by the presence of lithium-6, which represents the highest probability for tritium production considering the range between 0.1 to 20 MeV.



Fig.1. Tritium breeders cross sections for tritium production.

2. METHODOLOGY

The FFS system was based on a Tokamak, the TBL layers were placed before and after the transmutation layer (TL) as shown in Fig.2. The TBL volumes were 5.13389 m^3 and 5.37351 m^3 , respectively. In addition, the tritium breeder layer insertion in FFS causes a proportional increase for the external layers geometry dimensions. The materials were used according to the ITER guidelines [13] and the article of Fusion Engineering and Design [14]. The transmutation layer was arranged with a spent nuclear fuel matrix, obtained from a Pressurized Water Reactor (PWR) standard fuel – with initial enrichment of 3.1%, burnup of 33.000 MWd/T – and then reprocessed by UREX+ techniques. After that, the transuranic nuclides were spiked with thorium, obtaining 11.5% of fissile material in fuel. The fuel burnup simulations were performed by MONTEBURNS [15], which links the Monte Carlo

N-Particle 5 (MCNP5) [16] with the ORIGEN2.1 [17] depletion code. The fuel burnup was carried out for 10 years (3650 days).



Fig.2. FFS based on Tokamak with (a) TBL before TL (b) TBL after TL.

3. RESULTS AND DISCUSSION

3.1. Tritium breeder layer placed before transmutation layer

The neutron reaction percentages for tritium breeders are shown in Fig.3-a. The predominant reaction is the elastic scattering that changes the neutron flux softening the neutron spectrum. Li 2 presents the highest percentage of tritium production. On the other hand, the (n, n') reaction is the highest for FLiBe 1 that does not cause a decrease in neutron population. Although the tritium production percentage is the highest for the Li 2, its tritium production reaction rate is almost the same as FLiBe 2, as shown in Fig.3-b. It is caused by the high (n, n') reactions probability in FLiBe breeders and mainly by the neutron spectrum, as shown in Fig.4. The neutron flux is high for FLiBe 1 and especially for FLiBe 2, considering the energy range between 0.1 and 14 MeV. It induces a high tritium production due to the peaks in the microscopic cross sections for tritium production match with the neutron spectra range, as shown in Fig.2. FLiBe 2 has a higher reaction rate values than FLiBe 1 because of its larger ⁶Li amount in its composition.



Fig.5 shows the k_{eff} values from the transmutation layer during time. BeCl₂ and FLiBe 1 presented the highest k_{eff} values due to the lower thermal neutron absorption for tritium

production, which increase the thermal neutron spectrum and consequently fission reactions. The U^{233} production in the transmutation layer is high independently of the tritium breeders. The highest one was for FLiBe 1 and then FLiBe 2, which presented a buildup of 8.01 and 7.99 tons, respectively. The lowest U-233 was for Li 2, which presented a buildup of 7.87 tons.



3.2. Tritium breeder layer placed after transmutation layer

The reaction rate for tritium production at TBL after TL is shown in Fig.6-b. The reaction rate remained at the same proportion as the case before. The reaction rate values for Li 1 and FLiBe 1 are very similar for Li 2 and FLiBe 2 at the layer location. The neutron reaction percentages for tritium breeders is predominant elastic scattering as shown in Fig.6-a. On the other hand, the tritium production percentage increased for breeders that have lithium in their composition, mainly for Li 2 that presented the higher percentage for tritium production. In contrast when the first breeder layer is place before the TL, the harden neutron spectrum is decreased, as shown in Fig.7.



The TBL insertion after the TL influence on multiplication factor, which is higher than the insertion before due to the neutron production at the first breeder layer place, as shown in Fig.8. The B_2O_3 breeder increase the U-233 production on the transmutation layer with a

buildup amount of 8.64 tons. FLiBe 1 and FLiBe 2 had a U-233 buildup amount of 8.57 and 8.62 tons respectively. BeCl₂ presented the lowest U-233 production value, with an amount of 8.46 tons.



The amount of actinides transmute after the fuel burnup is shown in Fig.9. This amount does not include the Th-232 depletion. In relation to TBL before TL, the actinide amount depletion after fuel burnup is shown in Fig.9-a. FLiBe 1 presented the highest k_{eff} values, but it did not present a high actinide transmutation due to its lower harden neutron spectrum. The use of Li 2 has higher actinide transmutation values than B_2O_3 but the Li 2 presented a higher tritium production. Then, the BeCl₂ presented the highest actinide transmutation. However, it had the lowest tritium production caused by the non-absorption of thermal neutrons.

Finally, Fig.9-b shows the actinide amount depletion of TBL after TL, which has a significant influence on transmutation, reducing approximately by half the amount of transmutation material comparing with the TBL before TL. $BeCl_2$ presented again the highest actinide transmutation, but it still had a poor tritium production. Li 1 and FLiBe 1 had a great actinide transmutation and high tritium production. Besides that, FLiBe 1 presented the highest k_{eff} values, which maintain a larger neutron population in the system.



Fig.9. Actinide amount depletion at the end of burnup for a) TBL before TL and b) TBL after TL.

4. CONCLUSION

Regarding the tritium breeder layer placed before transmutation layer, the Li 2 tritium breeder material presents the highest reaction rates for tritium production. Although the Li 2 did not have the greatest k_{eff} values, it presented high actinide transmutation. To sum up, considering all the analyzed parameters, the best choice for the tritium breeder at the first breeder layer place is the Li 2. Regarding the tritium breeder layer placed after transmutation layer, the Li 1 and FLiBe 1 had high tritium production to self-sustain the fusion reactions at Tokamak. On the other hand, the k_{eff} values during time for Li 1 are lower than FLiBe breeders and also BeCl₂. In addition, FLiBe 1 presented high depletion of transuranic nuclides. For this reason, the FLiBe 1 breeder material is the most suitable choice to be used at the second breeder layer placed. Further, studies will focus at the two breeder layers placed together to obtain more appropriate results.

5. ACKNOWLEDGMENTS

The authors are grateful to the Brazilian research funding agencies, CNEN (Brazil), CNPq (Brazil), CAPES (Brazil) and FAPEMIG (MG/Brazil), for the support.

REFERENCES

1. C.E. Velasquez *et al*, "Axial Neutron Flux Evaluation in a Tokamak System: a Possible Transmutation Blanket Position for a Fusion–Fission Transmutation System", Brazilian Journal Physics, Nuclear Physics **Vol. 42**, pg 237-247 (2012).

2. C.E. Velasquez *et al*, "Fusion–Fission Hybrid Systems for Transmutation", Journal of Fusion Energy, **Vol. 35 – Number 1**, pg 1-134 (2016).

3. International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) Organization – Tritium Breeding (2018), retrieved from <u>https://www.iter.org/mach/TritiumBreeding</u>.

4. M.S. Sohal *et al*, "Engineering Database of Liquid Salt Thermophysical and Thermochemical Properties", Idaho National Laboratory, INL/EXT-10-18297 (2010).

5. Z. Li *et al*, "Neutronics and Activation Analyses for Li/V-alloy and Flibe/V-alloy Blankets of FFHR2 with and without Beryllium", Plasma and Fusion Research: Regular Articles, **Volume 2, 046** (2007).

6. O L G Alderman *et al*, "Liquid B₂O₃ up to 1700 K: x-ray diffraction and boroxol ring dissolution", J. Phys.: Condens. Matter 27 455104 (2015).

7. Engineering ToolBox, (2017). Melting and Boiling Point, Density and Solubility in Water for Inorganic Compounds. Available at: <u>https://www.engineeringtoolbox.com/inorganic-salt-melting-boiling-point-water-solubility-density-liquid-d_1984.html</u>, [accessed 09/21/2018].

8. American Elements – The Advanced Materials Manufacturer ®, Boron Oxide (2018), retrieved from <u>https://www.americanelements.com/boron-oxide-1303-86-2</u>.

9. American Elements – The Advanced Materials Manufacturer ®, Beryllium Chloride Solution (2018), retrieved from <u>https://www.americanelements.com/beryllium-chloride-solution-7787-47-5</u>.

10. E. Mas de les Valls *et al.*, "Lead–lithium eutectic material database for nuclear fusion technology", Journal of Nuclear Materials, **Vol. 376**, 3rd edition, pp. 353-357 (2008).

11. E. Rabaglino, "Helium and Tritium in Neutron-Irradiated Beryllium", Scientific Reports, FZKA 6939, Research Center Karlsruhe in the Helmholtz Association (2004).

12. A. Monterrosa *et al*, "Boron Use and Control in PWRs and FHRs", **Report UCBTH-12-007** (2012).

13. International Thermonuclear Experimental Reactor (ITER) - Final Design Report (2001), retrieved from http://www.naka.jaea.go.jp/ ITER/FDR/.

14. Y. Wu, F.D.S. Team, "CAD-based interface programs for fusion neutron transport simulation." Fusion Eng. Des. 84, 1987–1992 (2009).

15. D. Poston, H. Trellue, User's Manual, Version 2.0 for Monteburns Version 1.0.LA-UR-99-4999 (1999).

16. X-5 Monte Carlo Team, MCNP, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, vol. II. User's Guide University of California, Los Alamos National Laboratory (2003).

17. A. Croff, A User's Manual for the Origen2 Computer Code. ORNL/TM-7175 (1980).