



Universidade Estadual de Campinas

Instituto de Física Gleb Wataghin

Iniciação Científica I F 530

Relatório Final



Thiago Carluccio Ra: 017450

Prof. Responsável: Dr. José L. Lunazzi

Orientador: Prof. Dr. José Rubens Maiorino

Estudo da Transmutação de Resíduos Nucleares em ADS (Accelerator Driven Systems)

Resumo:

As equações de Bateman são um conjunto de equações ordinárias de 1ª. ordem acopladas que descrevem a cadeia de decaimento e de transmutação de núclídeos durante e após a irradiação em um reator. E podem ser descritas resumidamente como:

$$\frac{d\vec{N}}{dt} = A\vec{N}$$

onde, \vec{N} é o vetor das concentrações de núclídeos e A uma matriz dos coeficientes que descrevem a cadeia. Usualmente a solução destas equações envolve o método de exponencial de matriz, e do ponto de vista numérico obter a solução não é tão simples quanto parece.

1. INTRODUÇÃO

Os atuais Reatores Térmicos Comerciais (LWR, CANDU) operam utilizando um ciclo de combustível aberto (“once trough fuel cycle”), armazenando o combustível queimado em instalações interinas (“interim storage”), e estão gerando um enorme acúmulo (“stockpiles”) de resíduos radioativos de alta atividade, principalmente elementos transurânicos(TRU), ou Actinídeos Menores(MA), tais como Pu, Am, Np,etc), e produtos de fissão de meia vida (“ Long Lived Fission Fragments-LLFF”), tais como o Tc-99,I-129. Assim o inventário típico de um PWR de 1000MW, é como ilustrado abaixo.

Nuclídeo	Kg/ano	Meia vida(anos)	ATOMOS(10^{25})
²³⁸ Pu	4.52	88	1.13
²³⁹ Pu	166.0	2.4×10^4	41.6
²⁴⁰ Pu	76.7	6.6×10^3	19.2
²⁴¹ Pu	25.4	14.4	6.4
²⁴² Pu	15.5	3.8×10^5	3.9
²³⁷ Np	14.5	2.1×10^6	3.66
²⁴¹ Am	16.6	432	4.13
²⁴³ Am	2.99	7.4×10^3	0.73
²⁴³ Cm	0.011	28.5	
²⁴⁴ Cm	0.58	18.1	0.13

TRU de um PWR depois de 10 anos de decaimento da retirada do combustível que operou a 3.0 GW(ANGRA II) com uma queima de 33000 MWD/TON U requerendo a remoção de 33 MTU combustível queimado por ano

Nuclídeo	Meia Vida(anos)	PWR(atomos/anox 10^{25})
⁷⁹ Se	6.5×10^4	0.13
⁸⁵ Kr(*)	10.7	0.28
⁹⁰ Sr(*)	28.8	9.0
⁹³ Zr	1.5×10^6	15
⁹⁹ Tc	2.1×10^5	15
¹⁰⁷ Pd	6.5×10^6	4.1
¹²⁶ Sn	1×10^5	0.46
¹²⁹ I	1.6×10^7	2.7
¹³⁵ Cs	3×10^6	4.2
¹³⁷ Cs(*)	30	14
¹⁵¹ Sm(*)	90	0.16

LLFF

(*) Não é necessário Transmutação

O acúmulo destes resíduos irá requerer a construção de repositórios geológicos com capacidade de estocar estes resíduos milhares de anos, além das preocupações com proliferação, devido principalmente os isótopos de Pu. Assim, a quantidade projetada para 2010 de todos reatores nucleares de potência em operação no mundo (400 GW_e) é de ~300.000 tons de combustível queimado, com ~3000 tons de isótopos de Pu, 260 tons de MA, e 400 tons de LLFF.1, 2, 3, 4, /

Esta situação tem sido um argumento para que a Energia Nuclear não seja mais utilizada, e que muitos países não introduzam ou expandam seus parques atuais. Para superar este paradigma, as próximas gerações de reatores nucleares estão considerando conceitos os quais acoplados com um ciclo de combustível fechado (reprocessamento ou partição), tendo como critério reduzir os requisitos nos repositórios e não proliferação. O conceito de Partição e Transmutação (P&T) é a separação dos TRU e LLFF do combustível queimado e a incineração destes em um reator queimador dedicado, e tem levado que vários países dediquem um grande esforço em P&D neste tema, além de novas iniciativas internacionais para o desenvolvimento de novos conceitos tais como a dos EUA, denominada “ Generation IV”, e da Agência Internacional de Energia Atômica, denominada International PROject(INPRO).

Transmutação é mais favorável em Sistemas que operam com nêutrons rápidos, devido que a seção de choque de fissão é maior que a de captura para os TRU nestes sistemas (espectro rápido), e portanto os TRU ao preferencialmente sofrerem fissão transmutam em produtos de fissão de meia vida curta (os chamados resíduos de baixa e média-LLW). Apesar dos atuais reatores rápidos serem adequados para transmutação, devido a limitações impostas pela Física destes reatores, a quantidade de TRU que pode ser transmutada nestes sistemas é limitada. Por outro lado, sistemas inovadores que utilizam uma fonte de nêutrons ultra-rápidos, oriundos de uma reação nuclear denominada “spallation”, em um reator subcrítico contendo uma mistura de TRU com material físsil (Urânio), os denominados “Accelerators Driven Systems-ADS”, têm sido considerados como possíveis reatores queimadores de resíduos dedicados, principalmente num ciclo de combustível denominado “double strata” (vide figura). Além desta vantagem, operando no modo subcrítico, oferece uma segurança intrínseca relacionada com acidentes de criticalidade e por possuir um excesso de nêutrons maior do que num reator rápido pode regenerar e ser utilizado nos ciclos U/Th, U/Pu. Todas estas características inovadoras têm motivado um grande esforço internacional em P&D, sendo que trabalhos relatando o Estado da Arte têm sido recentemente publicados na literatura/5,7,8,9/.

No IPEN atividades de pesquisa em ADS tem sido realizadas, em conceitos alternativos e em simulações da Física de Reatores destes sistemas/4,5,6/. É dentro deste contexto que se enquadra o trabalho, onde também participam do grupo de pesquisa a

estudante de doutorado e engenheira nuclear Sara Tânia Mongelli e o Dr. Sérgio Anéfalos (IFUSP) que também participa de uma cooperação entre um grupo do IFUSP e do CBPF que desenvolveram um código que descreve a reação intra-nuclear de spallation, o CRISP. A tese da Sara consiste em estabelecer uma rotina de cálculo da maioria dos aspectos relevantes de um ADS.

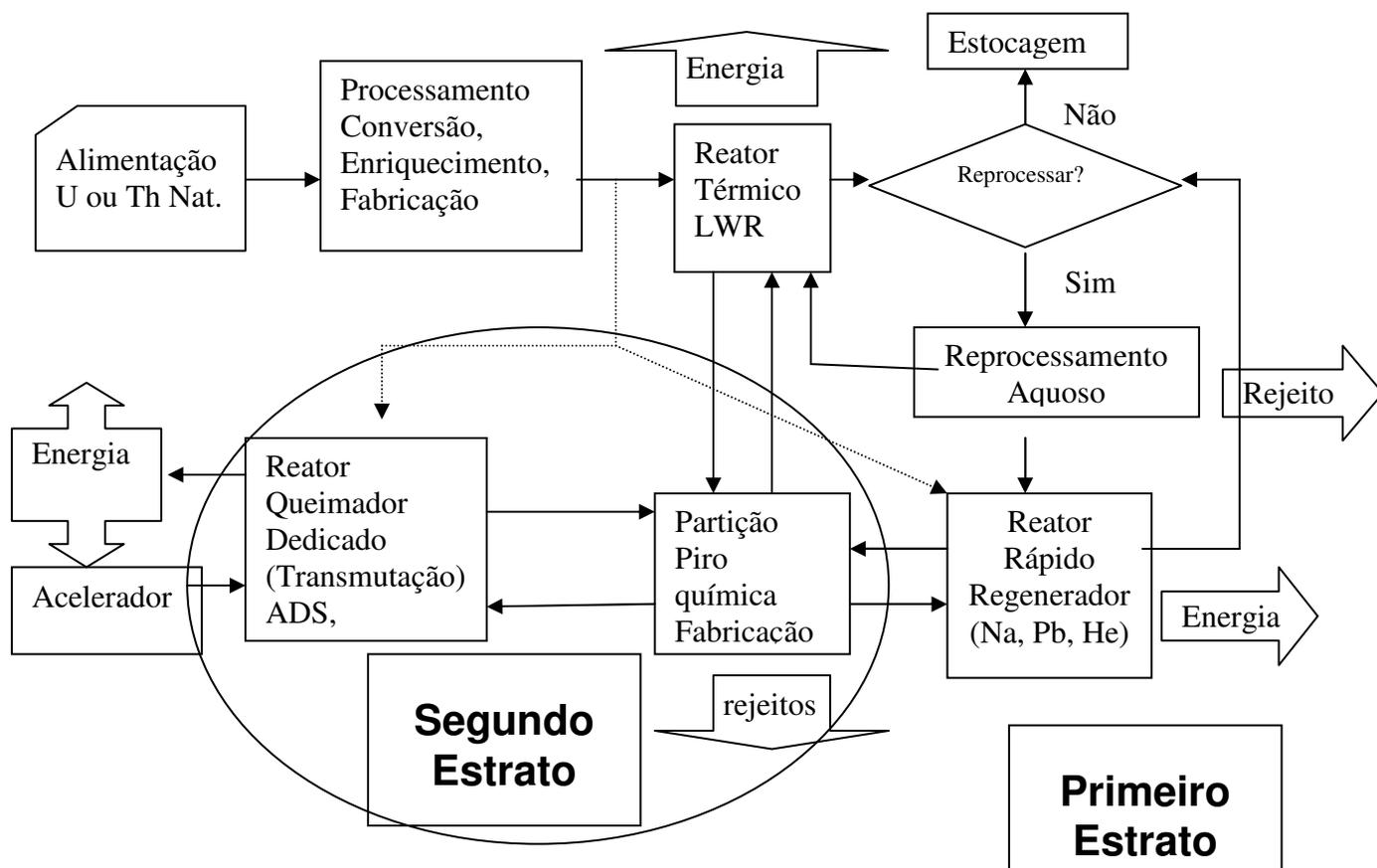


Figura 1: Ciclo do Combustível Duplo Estrato

2. MÉTODOS

O principal objetivo do trabalho é implementar uma rotina, utilizando um software como o MatLab, que seja uma ferramenta em cálculos de transmutação, ciclos de combustíveis e fluxo de massa e que possa ser utilizado de forma eficiente em cálculos mais complexos da Física dos Reatores, como os que serão implementados por Sara T. Mongelli.

Então para atingir os objetivos propostos os seguintes passos foram seguidos:

1. Montar as cadeias de decaimento para os TRU para os ciclos U/Pu e U/Th
2. Obter dados nucleares e de decaimento radioativo em um grupo de energia em espectros rápidos típicos de ADS.
3. Montar as equações de decaimento/ Produção, que de uma maneira simplificada devera ter a forma:

$$\frac{d\mathbf{N}(t)}{dt} = (\mathbf{P} - \mathbf{D}) \cdot \mathbf{N}(t) . \quad (1)$$

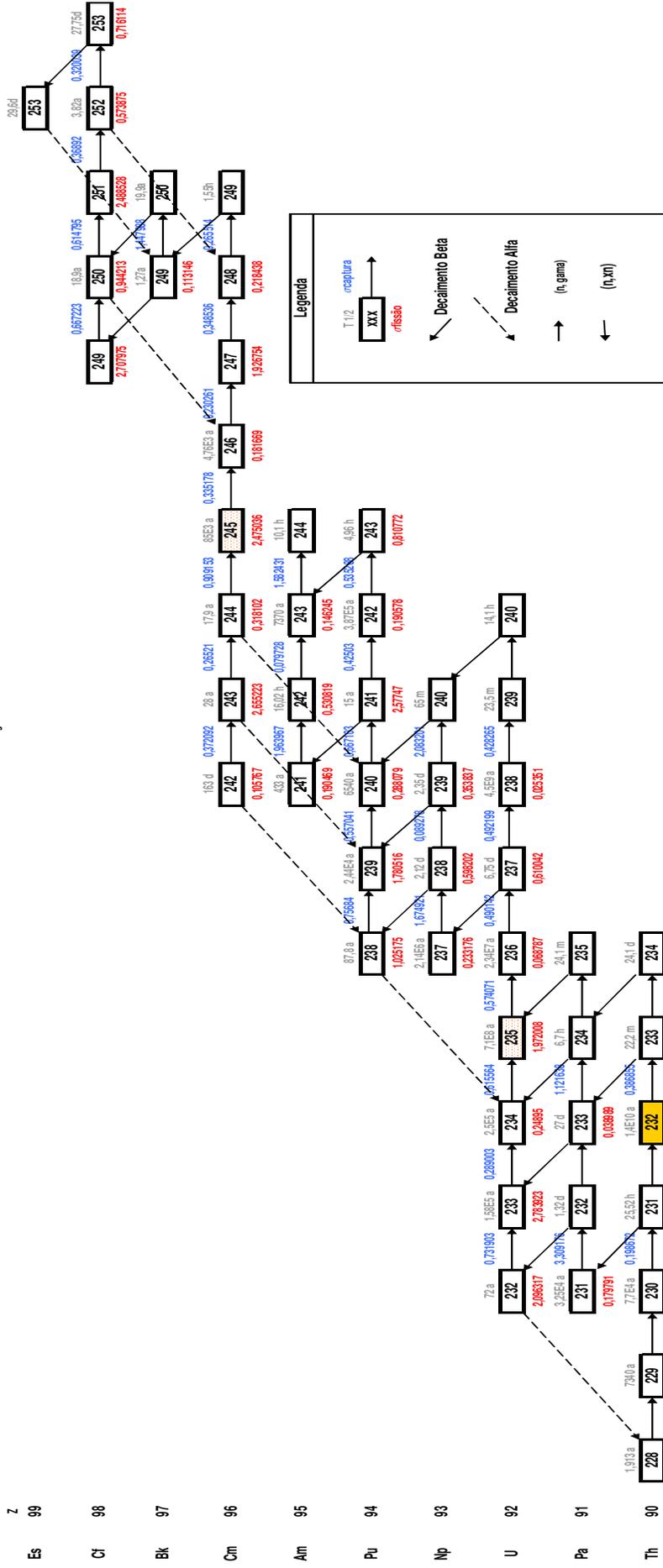
com, \mathbf{N} o vetor contendo as densidades atômicas dos TRU e material físsil ou fértil iniciais(U,Th); \mathbf{P} e \mathbf{D} matrizes contendo os elementos que levam a produção/destruição(fissão, decaimento radioativo, reações nucleares). As condições iniciais \mathbf{N}_0 deverão considerar TRU vindos da partição, e material físsil inicial. Considerando a matriz $(\mathbf{P}-\mathbf{D})$ constante, formalmente obtemos a solução/12/:

$$\mathbf{N}(t) = \mathbf{N}_0 \cdot e^{(\mathbf{P}-\mathbf{D})t} . \quad (2)$$

4. Obter soluções numéricas com um software tal como o MatLab e comparar os resultados com o código ORIGEN 2.(em andamento).
5. Simular alguns possíveis ciclos de combustível e calcular possíveis fluxos de massas nestes ciclos. (em andamento, xxii Reunião de Trabalho Física Nuclear)

Além disso foi estudado os seis primeiros capítulos de *J.R Lamarsh*, "Introduction To Nuclear Engineering". E foi feito alguns resumos de relatórios técnicos da Agência Internacional de Energia Nuclear, principalmente sobre a utilização de Tório, que serão anexados.

Cadeia de decaimento e transmutação Tório/Urânio

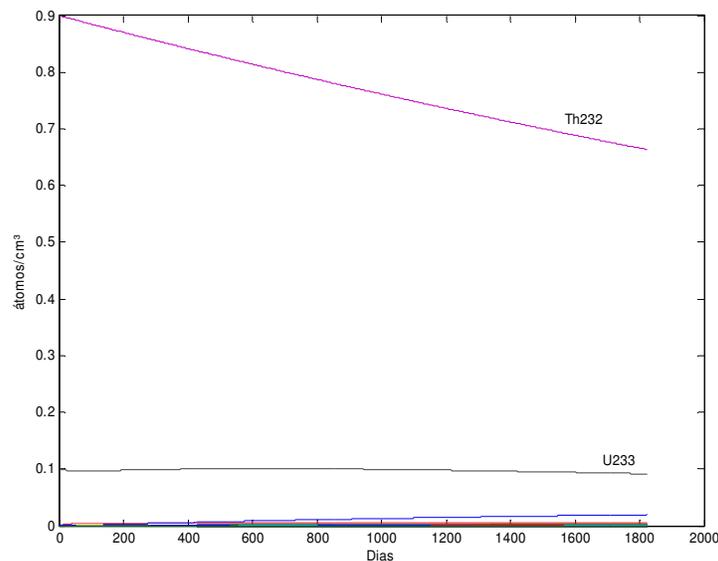


As secções de choque médias referem-se ao reator "Energy Amplifier", proposto por Carlo Rubia. /6

3. RESOLUÇÃO DAS EQUAÇÕES DIFERENCIAIS

As equações de Bateman têm solução dada pela equação (1). Usualmente a solução é computada como uma expansão em séries de potências da exponencial de matriz, porém isto envolve sucessivas multiplicações de matrizes da ordem de 50x50 e esparsas, cujos elementos podem diferir de muitas ordens de grandezas. Isto pode acarretar erros de arredondamento e numa solução numérica que para grandes intervalos de tempos produzam resultados cujos erros crescem exponencialmente com o tempo. Estas dificuldades estão expostas no artigo “Nineteen Dubious Ways to Compute the Exponential of a Matrix, Twenty-Five Years Later”, de C. Moler & C. V. Loan, SIAM Review, Vol. 45, No. 1, pp. 3-49. Alguns dos métodos propostos pelo artigo foram testados e o que se mostrou mais eficiente, pelo mesmo na questão do tempo-de-máquina foi a rotina expm do MatLab.

Utilizando os dados nucleares da cadeia e supondo uma concentração inicial em átomos de 0,9 de ^{232}Th e 0,1 de ^{233}U somente, após a irradiação de 5 anos, com um burn up de 150 GW dia/ton, o que corresponde a um fluxo de $5,0 \cdot 10^5$ nêutrons/cm².s obtemos o seguinte gráfico para as concentrações em função do tempo.



Estes dados estão grosseiramente de acordo com os resultados reportados por C. Rubbia, porém aqui considerou-se por simplicidade que as secções de choque de captura e fissão, que dependem do espectro de nêutrons, não variassem com o tempo, o que obviamente não é verdade pois o espectro depende da composição do reator.

4. Conclusão

Os próximos passos desse projeto são:

- 1) Validar o código através de softwares comerciais reconhecidos, como o Origen.
- 2) Utilizá-lo para fazer comparações de radiotoxicidade em reatores com combustível de U e de U/Th, principalmente no caso brasileiro, haja visto que o Brasil é a maior reserva de Tório do mundo.
- 3) Simular a queima de transurânicos em ADS.
- 4) Aprender a gerar as secções de choque efetivas, dada uma configuração de certo reator.
- 5) Sofisticar a rotina e acoplá-la a metodologia de cálculo mais completa.

Este é um trabalho longo que têm previsão de durar mais um ano e meio como iniciação científica (bolsa Fapesp) e pode se estender pela pós-graduação.

5. Referências

1. C.Rubbia et all, Conceptual Design of a fast energy operated high power energy amplifier, CERN /AT 95-44, September 1995
2. C.D.Bowman et all, Nuclear Energy Generation and Waste Transmutation using na accelerator-driven intense thermal neutron source, Nucl. Instr. And Methods, A 336-367,1992
3. 3.C.Rubbia et all, A realistic plutonium elimination scheme with fast energy amplifiers and thorium-plutonium fuel, CERN/AT/95, December 1995
6. C.Rubbia et all, Fast Neutron Incineration in energy amplifier as alternative to Geological storage:the case of Spain, CERN/LCH/97-01, February 1997
7. J.R.Maiorino, S.^a Pereira, ^aT.Teixeira,^aSantos, Alternative Concept for a Fast Energy Amplifier ADS, Revista Brasileira de P&D, Vol 3(1),13-19, Setembro 2001
8. S. Taczanowski, Transmutation of Nuclear Waste in ADS, Applied Energy 75, 97-117, 2003
9. S.Leray, Nuclear Waste Transmutation, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 113, 495-500, 1996
10. W. Gudowisk, Accelerator Driven Transmutation Projects. The Importance of Nuclear Physics Research for Waste Transmutation, Nuclear Physics A654, 436-457, 1999

11. J.R.Maiorino, A. Santos, S.A.Pereira,, The Utilization of Accelerators in Subcritical Systems for Energy Generation and Nuclear Waste Transmutation –The World Status and a proposal of a National R&D Program, Brazilian Journal of Physics, Vol.33,2, 2003.
12. Bell & Classtone, Nuclear Reactor Theory, Van Nostrand Reinhold Co., 1970
13. A. G. Croff, A User's Manual for ORIGEN2 Computer Code, Oak Ridge National Laboratory, 1980.