

INFLUÊNCIA DE ACTINÍDEOS NA DETERMINAÇÃO DO "BLENDING" ÓTIMO NO CICLO TANDEM ENTRE OS REATORES DE ANGRA-I E EMBALSE

Luiz A. Mai* e José R. Maiorino**

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. CNEN
Caixa Postal 11049 - CEP. 05499-970

*lamai@nct.ipen.br **maiorino@nct.ipen.br. S. Paulo, Brasil

RESUMO

Neste trabalho foram selecionados elementos da família dos actinídeos para o estudo do ciclo Tandem entre os reatores de Angra-I e Embalse. Isso foi feito através da sua meia-vida, seção de choque total, concentração na descarga de Angra-I e também pela atividade. Os nuclídeos selecionados foram: Am-241, Am-242m, Am-243 e Cm-244. Desses apenas o Am-241 apresentou potencial de influenciar os cálculos neutrônicos necessários para a determinação do "blending" ótimo do ciclo Tandem. Determinou-se, então, o peso relativo do Am-241 relativamente ao U-235 e, em seguida, as expressões do chamado *Equivalente em Queima* e *Equivalente em Reatividade*.

I. INTRODUÇÃO

O chamado ciclo Tandem vem sendo estudado a alguns anos como forma de melhor utilização do minério de urânio e também para diminuição do volume e da atividade dos rejeitos finais do ciclo do combustível nuclear. Trata-se da reutilização do combustível irradiado em reatores tipo PWR, previamente descontaminados dos produtos de fissão, em reatores tipo CANDU.

Até recentemente, a maior parte dos trabalhos realizados sobre o tema /1, 2, 3/ não levaram em consideração os elementos da família dos actinídeos, que são importantes principalmente no que diz respeito à sua atividade no final do ciclo. Este trabalho tem como objetivo estudar a influência destes elementos apenas sob o ponto de vista neutrônico, pois a atividade dos rejeitos foi estimada em estudos anteriores (utilizando-se do programa ORIGEN2.1 /4/), ocasião em que considerou-se a totalidade dos nuclídeos.

No estudo neutrônico feito até aqui, utilizou-se do programa WIMS-D/4 /5/ com sua biblioteca original que não contém muitos dos actinídeos que eventualmente são importantes. Naqueles estudos considerou-se 3 variações de ciclo Tandem especificamente para os reatores de Angra-I (PWR) e Embalse (CANDU), quais sejam:

-ciclo Tandem-1: MOX advindo do PWR com diluição de urânio natural.

-ciclo Tandem-2: MOX (PWR) com diluição de "tail" do processo de enriquecimento isotópico e

-ciclo Tandem-3: MOX (PWR) com diluição com MOX do próprio CANDU.

Importantes conclusões foram obtidas, das quais destaca-se, resumidamente, as seguintes:

-aumento da queima de extração do reator CANDU em cerca de 3 vezes relativamente ao ciclo normal de urânio natural, para os ciclos Tandem-1 e 2.

-diminuição significativa da utilização de urânio natural em todos os ciclos estudados.

-o tempo de estocagem não é significativo, em termos neutrônicos, a partir de 1 ano.

-as diluições ótimas encontradas foram:

Tandem-1: 38 % em Unat.

Tandem-2: 26 % em MOX do PWR

Tandem-3: 83 % em MOX do PWR

-diminuição importante do inventário final de plutônio, aumentando os de produtos de fissão.

-ciclo Tandem-2 foi o que apresentou menor custo, ou seja, 4.7 US\$/MWh.

-a etapa de aquisição do Unat. é a mais significativa (dentro da base de dados considerada), em termos de custo, no ciclo Tandem-1 e a descontaminação nos ciclos Tandem-2 e 3.

-diminuição em cerca de 20% na atividade e na toxicidade dos rejeitos finais no ciclo Tandem-1.

-aumento significativo na reatividade inicial para o ciclo Tandem-1 e 2, que indica necessidade de modificações no gerenciamento do combustível e/ou inclusão de veneno queimável.

Os objetivos do presente trabalho são:

1-selecionar os elementos actinídeos mais importantes quanto à sua meia-vida, seção de choque, concentração e atividade no combustível queimado de Angra-I;

2-estudá-los sob o ponto de vista neutrônico no reator de Embalse e

3-definir o chamado *Equivalente em Queima* (EQ) e *Equivalente em Reatividade* (ER) que são parâmetros fundamentais na determinação do "blending" ótimo do ciclo Tandem.

II ACTINÍDEOS RELEVANTES

Afim de determinar quais os actinídeos que eventualmente serão importantes para a queima no reator CANDU, procedeu-se uma seleção quanto à sua meia-vida, seção de choque total, concentração e atividade presente no combustível queimado de Angra-I. O gráfico abaixo mostra o decréscimo da atividade devido a totalidade dos actinídeos em função do tempo após reprocessamento (6 meses após irradiação) para um PWR tipo Angra-I com 3 % de enriquecimento e queima de 30.000 MWd/t /6/.

Considerados os parâmetros de seleção acima citados, os actinídeos mais importantes são: Am-241, Am-242 (g e m), Am-243 e Cm-244.

Após 100 anos do reprocessamento, esses nuclídeos, mais os nuclídeos do U e Pu, são responsáveis por 90 % do total da atividade presente no combustível.

Analisando-se agora particularmente no reator de Angra-I, através do código ORIGEN2, tem-se as suas concentrações desses nuclídeos, expressas em g/E.C., na tabela 1.

No programa WIMS-D/4, qualquer concentração abaixo de 10^{-10} at./barn cm é, na prática, encarada como nula. O Am-242_g tem meia vida de 16.0 horas. Para

tempos de estocagem da ordem de meses, como no caso, sua presença no combustível pode ser ignorada. Transformando as concentrações da tabela 1 em at./barn cm, apenas o Am-241, Am-242_m, Am-243 e o Cm-244 possuem concentrações maiores que 10^{-10} at./barn cm.

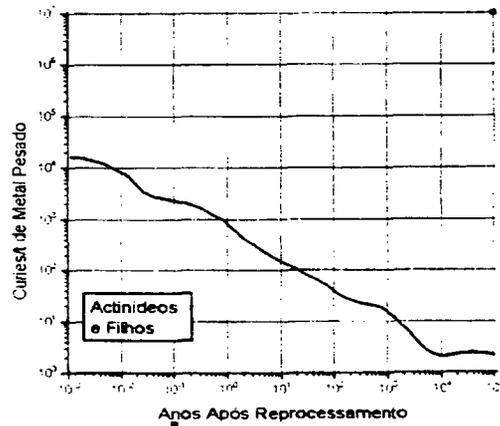


Figura 1: Atividade dos Actinídeos Após Reprocessamento (PWR com Queima de 30.000 MWd/t, 3 % de Enriquecimento) /6/

TABELA 1: Concentração em g/E.C. de Actinídeos Após 1 Ano de Estocagem

Am-241	Am-242 m	Am-242g	Am-243	Cm-244
3,201E+01	3,596E-01	4,300E-06	9,750E+01	4,218E+01

TABELA 2: Concentração em at./barn cm de Actinídeos Após 1 Ano de Estocagem

Am-241	Am-242 m	Am-243	Cm-244
2,499E-06	2,807E-08	7,602E-06	3,183E-06

Desses actinídeos, apenas o Am-241 tem sua concentração aumentada com o tempo após a irradiação e, portanto, sua atividade também aumenta. O gráfico abaixo quantifica esta informação através de sua atividade.

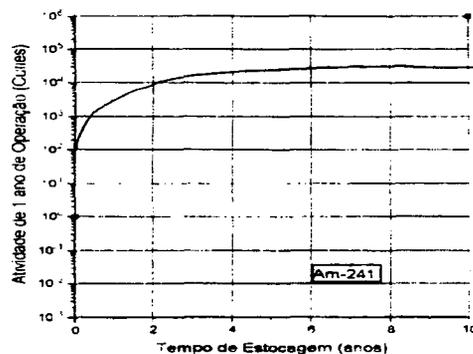


Figura 2: Atividade do Am-241 Como Função do Tempo de Estocagem (PWR Com 30.000MWd/t de Queima e 3 % de Enriquecimento) /6/

Além disso o Am-241 tem uma grande seção de choque de captura na região térmica que é aproximadamente igual à do boro natural [7]. Assim, parâmetros do reator, especialmente o "burn-up" poderão ser influenciados pela presença do Am-241. Cálculos executados com o programa WIMS-D/4 para o reator de água pesada japonês ATR (Heavy-Water-Moderated-Boiling-Light-Water-Cooled Type) mostram a influência sobre o "burn-up" da acumulação de Am-241. O gráfico abaixo mostra esse efeito.

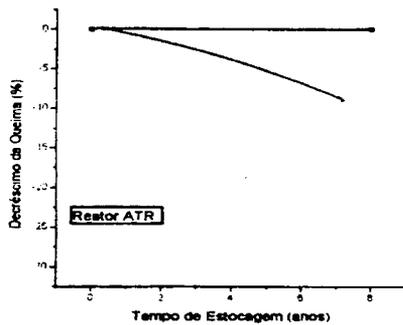


Figura 3: Efeito do Am-241 no "Burn-up" do Reator ATR [7]

Assim, o Am-241, a medida que o tempo de estocagem aumenta, se torna mais importante, ao contrário dos outros núclídeos selecionados.

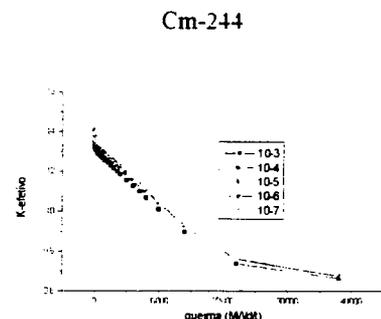
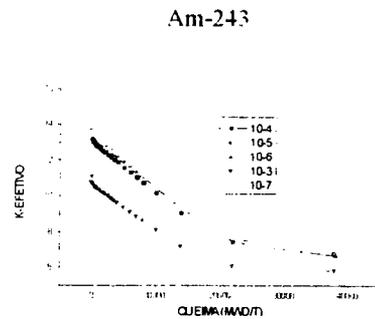
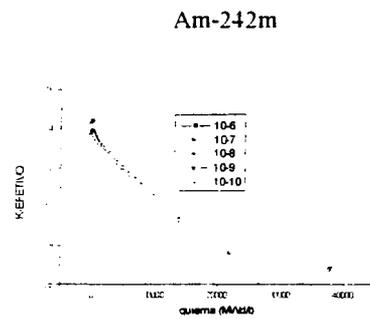
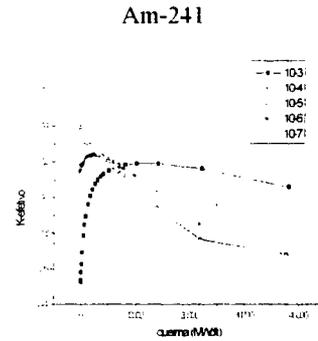
Para se avaliar o efeito individual de cada um desses núclídeos, processou-se o código WIMS-D/4 parametrizando as concentrações em termos dos valores constantes na tabela 2. Assim as variações ficam como na tabela 3.

TABELA 3: Faixa de Variação das Concentrações Em at./barn cm

Am-241	10^{-3} a 10^{-7}
Am-242 _m	10^{-5} a 10^{-10}
Am-243	10^{-3} a 10^{-7}
Cm-244	10^{-3} a 10^{-7}

Processou-se também o caso em que não existe nenhum desses núclídeos para efeito de comparação. Vale lembrar que em todos os casos o combustível utilizado no CANDU de Embalse advém diretamente de Angra-I. Colocado assim, diretamente, os efeitos dos elementos actinídeos são mais evidentes. Quando da diluição com urânio natural ou "tail", a concentração desses elementos diminuirá, diminuindo obviamente seus efeitos. Os perfis de queima de cada caso e mais o caso em que esses

elementos não estão presentes, são mostrados nos gráficos da figura 4 a seguir.



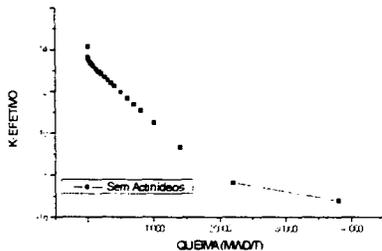


Figura 4: Perfis de Queima Para Várias Concentrações de Actinídeos (Programa WIMS-D/4)

Analisando-se os gráficos da figura 4, de imediato nota-se que o Am-242_m e o Cm-244 pouca influência tem nos valores de K-efetivo ao longo da queima. Com relação ao Am-243 sua influência é sentida apenas em concentrações mais altas. No entanto, para concentrações menores, sua influência cai exponencialmente, como mostrada na figura 5 a seguir.

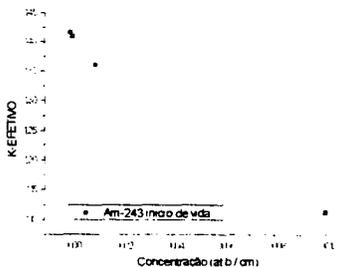


Figura 5: K-efetivo Inicial Em Função da Concentração do Am-243

Nesta figura, a medida que diminui a concentração do Am-243 o valor de K-efetivo aproxima-se exponencialmente do valor sem actinídeo. A expressão ajustada desta figura é:

$$K_{ef} = 1.02756 + 0.38826 e^{-\left(\frac{C}{0,00065}\right)} \quad (1)$$

Para a concentração real na saída de Angra-I, ou seja $7.602 \cdot 10^{-6}$ at./barn cm. (tabela 3), o valor de K_{ef} é 1.4113056. Este valor é cerca de 200 pcm menor que o valor de K_{ef} sem actinídeos. Considerando-se que o combustível é diluído em urânio natural ou "tail", a influência do Am-243 será praticamente desprezível.

Para o Am-241 o comportamento do K_{ef} inicial é semelhante ao Am-243 como mostrado na figura 6.

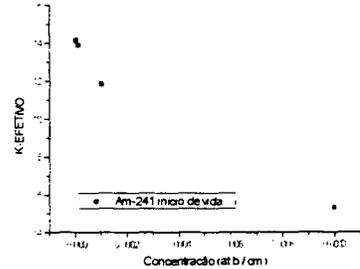


Figura 6: K-efetivo Inicial Em Função da Concentração do Am-241

A expressão ajustada desta figura acima é:

$$K_{ef} = 0.4784 + 0.93724 e^{-\left(\frac{C}{0,00035}\right)} \quad (2)$$

Para a concentração real na saída de Angra-I ($2.499 \cdot 10^{-6}$ at./barn.cm) da tabela 2, o valor de K_{ef} é aproximadamente 400 pcm menor que o valor de K_{ef} sem actinídeos. No entanto, como já visto anteriormente, com o tempo de estocagem, a concentração de Am-241 aumenta, podendo influenciar a queima de descarga aproximadamente como mostra a figura 3. Em outras palavras, a diferença de 400 pcm calculada tende a aumentar. Assim, para efeito de definição de EQ e ER, além dos nuclídeos do plutônio, será incorporado também o Am-241. Verificou-se que com o tempo de estocagem de até 5 anos, a presença do Am-241 ainda é pouco sentida. Contudo considerando-se que existe combustível estocado de Angra-I à muitos anos e numa eventual concretização deste projeto (ciclo Tandem entre Angra-I e Embalse), o tempo de estocagem poderá chegar a décadas tornando a presença do Am-241 mais evidente, quando se fizer um estudo mais detalhado.

III DETERMINAÇÃO DO EQ E ER (com Am-241)

O objetivo da determinação do EQ e do ER, é obter-se expressões que dada a porcentagem em peso dos nuclídeos relevantes de um certo combustível, fica determinado imediatamente o fator de multiplicação efetivo inicial e a queima de extração deste combustível. Esses dois parâmetros são fundamentais na determinação do "blending" ótimo no ciclo Tandem. Uma vez determinados os pesos relativos de cada nuclídeo especificamente para o reator CANDU da Central Nuclear de Embalse, pode-se agora determinar essas expressões.

De acordo com a referência 7, mantendo-se as características de um ciclo, para determinar-se o peso relativo de um nuclídeo, acrescenta-se uma porcentagem

do isótopo a ser considerado e altera-se a concentração do U-235, de modo a obter-se o mesmo valor da queima de descarga (para o caso do EQ) ou o mesmo fator de multiplicação efetivo inicial (para o caso do ER). Processando-se dessa maneira, os pesos dos núclídeos de interesse, ficam como mostrado na tabela 4.

TABELA 4: Pesos dos Núclídeos Normalizados Para o Pu-239

Isót.	P/ K-ef(0)	P/ Q ^{ex}
U-235	0.5	0.9
Pu-239	1.0	1.0
Pu-240	-0.75	-0.3
Pu-241	1.47	1.3
Pu-242	-0.07	-0.2
Am-241	-0.12	-1.54

A partir do programa ORIGEN2, obtém-se as concentrações, em g/el. comb., dos núclídeos relevantes para 12 meses de resfriamento por exemplo. Transformando esses valores em porcentagem em peso, nota-se que a porcentagem correspondente ao Am-241 é muito pequena, assim sua influência no desempenho do combustível será muito modesta.

Considerando-se que a densidade do combustível é invariante quando das diluições, ou seja mantém-se em 8.9 g/cm³ em qualquer caso, pode-se determinar as massas relativas de cada núclídeo de interesse através da expressão:

$$m = [\% \text{ em peso}] \times 0.089 \quad (3)$$

O programa WIMS-D/4 exige que as concentrações sejam expressas em at. barn/cm, assim utiliza-se agora a seguinte expressão:

$$\frac{\text{at.}}{\text{barn cm}} = \frac{m \text{ Av}}{M} \quad (4)$$

onde:

m : massa relativa do núclídeo (tabela 10)
 Av : número de Avogadro (6.023 10²³)
 M : massa atômica do núclídeo

Através do programa WIMDS-D/4, utilizando-se das concentrações calculadas como acima, obtém-se o perfil de queima para esse combustível (sem diluição).

Neste gráfico traça-se a reta $K_{ef} = Kt$ que é o chamado K-efetivo de trabalho, que para a Central de Embalse é 1.02028. Através deste valor e utilizando-se do

critério das áreas (referência 2), obtém-se a queima de extração que neste caso é de 26.400 MWd/t. O fator de multiplicação efetivo no início de vida é 1.411247.

Para determinar-se as expressões de EQ e do ER, é necessário agora repetir esses cálculos diluindo urânio natural ao combustível de Angra-I.

Da mesma maneira, através do programa WIMS-D/4 obtém-se o perfil de queima de cada caso. Através dessas figuras, utilizando-se, como antes, do critério das áreas, determina-se as queimas de extração para cada caso. Os valores de EQ e ER são determinados da tabela 4 como:

$$EQ = 0.9 U^5 + Pu^9 - 0.3 Pu^0 + 1.3 Pu^1 - 0.2 Pu^2 - 1.54 Am^1 \quad (5)$$

$$ER = 0.5 U^5 + Pu^9 - 0.8 Pu^0 + 1.5 Pu^1 - 0.07 Pu^2 - 0.12 Am^1 \quad (6)$$

Grafica-se a queima de extração (Q^{ex}) versus EQ e K-efetivo inicial (K-ef(inicial)) versus ER e ajustando-se um polinômio de grau 2 em cada uma das curvas, obtém-se as expressões que relacionam Q^{ex} com EQ e K-ef(inicial) com ER.

$$Q^{ex} = -1.734 10^4 + 4.514 10^4 EQ - 1.102 10^4 (EQ)^2 \quad (7)$$

$$\text{Coeficiente de Correlação} = 0.99713$$

$$K\text{-ef (inicial)} = 0.757 + 1.152 ER - 0.503 (ER)^2 \quad (8)$$

$$\text{Coeficiente de Correlação} = 0.99907$$

O maior erro na determinação de Q^{ex} e K-ef(inicial) se dá, (calculado pelo WIMS-D/4 e critério das áreas) para a diluição de 70 %. Esses erros são mostrados na tabela 5 a seguir.

TABELA 5: Maior erro Para os Valores Calculados Pelo WIMS-D/4 (K-ef(inicial)) e Pelo Critério das Áreas (Q^{ex}), Para a Diluição de 70 %

diluiç.	K-ef (inicial)	Q ^{ex} (MWd/t)	
70 %	1.245975	12.800	calculado
	1.238443	13.849	previsto
Δ	757 pcm	7.6 %	

Essas diferenças são menores que aquelas apresentadas na referência 3.

Assim, através das expressões 7 e 8, pode-se, de imediato, calcular Q^{ex} e K-ef(0), com a inclusão do Am-241, que são parâmetros fundamentais na determinação do "blending" ótimo do ciclo Tandem.

IV. CONCLUSÕES

Dos elementos actinídeos selecionados, o Am-241 foi o que apresentou maior influência, em termos neutrônicos, para o estudo do ciclo Tandem. Seu peso relativo ao U-235 (normalizado para o Pu-239) é 0.12 para o K-ef(0) e 1.54 para o Q^{ex} . Outros actinídeos potencialmente importantes (Am-242m, Am-243 e Cm-244) podem ser ignorados.

As expressões que serão usadas na determinação do "blending" ótimo do ciclo Tandem entre Angra-I e Embalse, com a inclusão, agora, do Am-241, serão:

$$Q^{ex} = -1,734 \cdot 10^4 + 4,514 \cdot 10^4 EQ - 1,102 \cdot 10^4 (EQ)^2$$

$$K\text{-ef (inicial)} = 0,757 + 1,152 ER - 0,503 (ER)^2$$

influence of half-lives, total cross section, the inventory of the actinides in the fuel discharge of Angra-I and their activities. The selected isotopes were Am-241, Am-242m, Am-243 and Cm-244. From these actinides, only the Am-241 shows a potential to make an influence in the neutronic calculation needed to define the optimum blending in the Tandem cycle. Finally, the relative weight of Am-241 with respect to U-235 was determined as well the expression for "Equivalent Heavy Metal" and "Equivalent Reactivity".

REFERÊNCIAS

- /1/ Veeder, J. & Didsbury, R. - "A Catalog of Advanced Fuel Cycles in CANDU Reactors", AECL 8641. 85.
- /2/ Tumini, L. L. P. - "Análisis de Ciclos Directos Avanzados Para Reactores CANDU", trabalho especial da carreira de engenharia, Instituto Balseiro, Bariloche, Argentina. 93.
- /3/ Tumini, L. L. P. - "Study of Tandem Fuel Cycle Between a Brazilian PWR (Angra-I) and Argentinian CANDU (Embalse)" Ann. Nucl. Energy Vol. 22 No 1. pp. 1-10. 93.
- /4/ Croff, A. G. - "ORIGEN2.1 Isotope Generation and Depletion Code" CCC-371 RSIC. 91.
- /5/ Fayers, F. J. & outros "LWRWIMS, A Modular Computer Code For the Evaluation of Water Reactor Lattices" AEEW-R 785. 72.
- /6/ Benedict, M. ; Pigford, T.H. & Levi, H.W. - "Nuclear Chemical Engineering" . McGraw-Hill Book Company . 81.
- /7/ Sawai, S.; Wakabayashi, T & Fukumura, N. - "Characteristics of Plutonium Utilization in the Heavy-Water-Moderated, Boiling-Light-Water-Cooled Reactor ATR" . Nuclear Engineering and Design 125. 251-257. 91.

ABSTRACT

This work analyzes the influence of Actinides in a Tandem fuel cycle between Angra-I and Embalse reactors. This analysis has been done through studying the