

# Análise de burnup de um reator nuclear PWR com combustível misto de óxido de tório e urânio

Isadora C Gonçalves, Caio da C Wichrowski, Claudio L de Oliveira  
Instituto Militar de Engenharia  
Praça General Tibúrcio, 80, 22290-270, Rio de Janeiro, RJ, Brasil.  
\*pcairogomes@gmail.com  
\*kelmo.lins@gmail.com

**RESUMO:** Sabe-se que o tório é um elemento fértil que possui a capacidade de se converter em urânio-233, um potente material fissil. Além de ser um combustível nuclear alternativo aos utilizados atualmente, esse elemento se mostra uma promessa na resolução da crise energética mundial, e apresenta vantagens como opção para o movimento de não proliferação, entre outras. Logo, neste trabalho foi realizada a análise dos principais elementos remanescentes de burnup para a configuração do núcleo de um reator nuclear tipo PWR, baseado no reator de ANGRA II, isto foi feito em sua configuração atual utilizando somente UO<sub>2</sub>, e numa diferente configuração de abastecimento com um óxido misto de urânio e tório em várias concentrações, permitindo uma avaliação prévia da produção resultante de urânio-233 e o surgimento dos venenos resultantes da queima. O estudo foi realizado por meio do código SCALE e principalmente seu módulo ORIGEN-ARP, que analisa o desgaste dos elementos presentes em um reator.

**PALAVRAS-CHAVE:** Tório. ORIGEN-ARP. Queima.

**ABSTRACT:** It is known that thorium is a fertile element that has the ability to convert to uranium-233, a potent fissile material. Besides being an alternative nuclear fuel to those used today, this element shows promise in solving the world energy crisis and presents advantages as an option for the non-proliferation movement, among others. Therefore, the main remaining elements of burnup were analyzed for the core configuration of a PWR nuclear reactor based on the ANGRA II reactor, in its current configuration using only UO<sub>2</sub>, and in a different oxide supply configuration uranium and thorium mixture in various concentrations, allowing a preliminary assessment of the resulting production of uranium-233 and the appearance of poisons resulting from burning. The study was carried out using the SCALE code and especially its ORIGEN-ARP module, which analyzes the depletion of the elements present in a reactor.

**KEYWORDS:** Thorium. ORIGEN-ARP. Burnup.

## 1. INTRODUÇÃO

O Tório foi estudado e utilizado, de modo experimental, nos estágios iniciais de desenvolvimento de reatores nucleares. Devido à necessidade premente de material apropriado para artefatos e domínio de tecnologia da época, o Urânio tornou-se o combustível preferencial. Hoje se vislumbra, de modo real, a possível escassez de Urânio, o que, entre outros motivos, como a não proliferação, propiciou que o Tório voltasse a ser objeto de pesquisa e desenvolvimento. Em pesquisas bibliográficas muito pouco material relacionado à aplicação de Tório, como material apropriado para aplicações nucleares, foi encontrado, particularmente no Brasil; que, como possuidor de uma das maiores reservas de Tório do mundo, pode vir a ter grande relevância em seu uso. Assim, neste trabalho é realizada uma análise dos elementos oriundos do burnup de um reator PWR abastecido com UO<sub>2</sub>, comparado aos elementos oriundos do burnup do mesmo reator, abastecido com um MOX de UO<sub>2</sub> / ThO<sub>2</sub>.

Este trabalho está dividido em seis seções, além desta introdução, da seguinte maneira: a seção 2 apresenta as principais características do Tório, a forma em que esse se transmuta para <sup>233</sup>U e como é possível gerar energia a partir desse isótopo. A seção 3 apresenta uma breve descrição do código nuclear utilizado para desenvolvimento desse trabalho. A seção 4 apresenta os dados e parâmetros utilizados para a simulação e análise descritos no trabalho. A seção 5 apresenta os principais resultados obtidos pela simulação e suas análises. A última seção traz as conclusões.

## 2. TÓRIO

O tório é um elemento químico, da família dos actínides, amplamente distribuído em torno da crosta terrestre, possuindo uma abundância de, em média, 12 ppm, 5 vezes mais que o urânio [1], considerado um elemento isotópico puro, ou seja, é encontrado na natureza com abundância isotópica

de 100% de <sup>232</sup>Th. Esse isótopo possui várias aplicações, tornando o tório um elemento versátil utilizado em diferentes áreas. Porém a maior área de utilização desse material é a área nuclear. Dentro da área nuclear o tório é classificado como um material nuclear de origem, que pode se tornar fonte de energia após um determinado processo [2].

### 2.1. Geração de Energia Nuclear

A razão pela qual o Tório pode ser utilizado em reatores nucleares é a capacidade de sua conversão (Figura 1) por captura neutrônica, em <sup>233</sup>U, um isótopo artificial do Urânio, que fissiona ao absorver um nêutron de baixa energia. Ou seja, ao absorver um nêutron, é capaz de gerar mais que dois nêutrons, o que permite a regeneração (processo pelo qual tirar um isótopo fértil, ao capturar um nêutron, produz mais elementos físséis do que não físséis [3]).

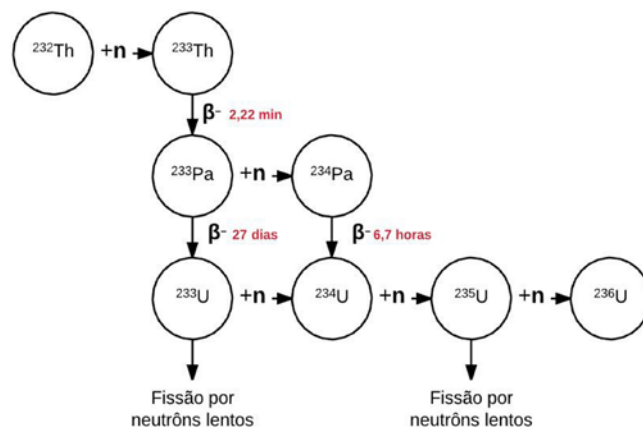


Fig 1: Cadeia de transmutação do <sup>233</sup>U

O desenvolvimento do ciclo combustível de Urânio precedeu o do Tório devido à ocorrência natural de um isótopo fissil do Urânio, o <sup>235</sup>U. O desenvolvimento de combustíveis

à base de Tório foi motivado pelas propriedades nucleares do ciclo combustível desse elemento quando aplicado em reatores térmicos serem superiores à de outros elementos. No ciclo do Tório, o isótopo  $^{232}\text{Th}$ , em vez de  $^{238}\text{U}$ , seria o material fértil, e o isótopo  $^{233}\text{U}$  seria o principal actínido fissil, desempenhando o papel atribuído ao  $^{239}\text{Pu}$  no ciclo do Urânio [4].

Comumente, o tório é utilizado em reatores nucleares na forma de  $\text{ThO}_2$  em pastilha cerâmica, que é uma das substâncias sólidas mais inertes quimicamente disponíveis e apresenta muitas vantagens sobre o  $\text{UO}_2$ , como ponto de fusão mais alto (um dos maiores existentes). Não possui predisposição à oxidação e, em temperaturas de operação semelhantes sua condutividade térmica é maior que a do  $\text{UO}_2$  [4].

Em relação aos dados nucleares, para o espectro de nêutrons térmicos, a seção de choque de captura neutrônica do  $^{232}\text{Th}$  é (7,6 barns) quase duas vezes e meia maior que a do  $^{238}\text{U}$  (2,7 barns). A alta taxa de captura em materiais férteis quer dizer que, em reatores à base de Tório existe a necessidade de um maior enriquecimento e, quando essa necessidade é atendida, a conversão de  $^{232}\text{Th}$  (para  $^{233}\text{U}$ ) é mais alta que a do  $^{238}\text{U}$  (para  $^{239}\text{Pu}$ ). Assim, o Tório é um melhor material fértil que  $^{238}\text{U}$  em reatores térmicos [5].

No entanto, também existem desvantagens no ciclo do Tório. Embora o  $\text{ThO}_2$  seja superior ao  $\text{UO}_2$  na retenção de gases, o ciclo do Tório produz mais gases de fissão. O reprocessamento de combustíveis à base de  $\text{ThO}_2$ , para uso do  $^{233}\text{U}$  como combustível de carga inicial, é mais difícil porque o  $^{233}\text{U}$  sempre contém  $^{232}\text{U}$  como um contaminante, que decai para  $^{228}\text{Th}$  em apenas 68,9 anos, que por sua vez decai em 1,9 anos para  $^{208}\text{Tl}$  que emite partículas alfa e raios gama de alta energia em sua cadeia de decaimento. Todo o manuseio desses materiais deve ser feito em condições remotas, com contenção [4].

### 3. ORIGEN-ARP

O ORIGEN-ARP (*Automatic Rapid Processing*) é um código para cálculo de depleção/decaimento, para combustíveis à base de urânio, que alterna bibliotecas de seção de choque independentes com o enriquecimento, queima de combustível e densidade do moderador de reatores. Esse código realiza interpolações de algoritmos que operam de acordo com as propriedades dos combustíveis e condições de funcionamento definidas [6].

### 4. SIMULAÇÃO

Para a utilização do código (ORIGEN-ARP), foram selecionados os dados disponíveis no programa mais condizentes com o reator modelo definido para o trabalho, o reator PWR de Angra II [7]) como o reator CE (Combustion Engineering), PWR de baixo enriquecimento da *Westinghouse*, que possui organização dos elementos combustíveis de 16x16 e moderador com densidade de 0,7100 g/cc. Foram selecionados nêutrons numa faixa de energia de 1E-05 até 2E-07 eV subdivididos em 238 grupos e, gamas com uma faixa de energia de 1E04 até 1E07 eV, subdivididos em 47 grupos. Foi escolhida a situação de irradiação, com 0,4949772 MTU para uma queima de 30MW num ciclo 420 dias, visando à geração dos principais isótopos relacionados à queima como:  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{135}\text{Xe}$  e  $^{149}\text{Sm}$ .

A situação escolhida de configuração do reator, para ser comparada à situação de abastecimento total com  $\text{UO}_2$ , partindo da condição em que, no início do ciclo, o  $k_{\text{inf}}$  estivesse em torno de 1,2, foi a configuração de abastecimento com

40% do volume total com  $\text{ThO}_2$  e 60%  $\text{UO}_2$ . Para cada situação foram simulados os valores de 3, 4,5 e 6% de enriquecimento do Urânio. O valor utilizado para a densidade de  $\text{ThO}_2$  na simulação foi 10g/cm<sup>3</sup> [8].

## 5. RESULTADOS

Após serem realizadas as simulações de *burnup* no ORIGEN-ARP, foi realizada uma análise de evolução da queima para cada radioisótopo, como apresentado a seguir.

### 5.1 $^{232}\text{Th}$

Observando os gráfico de comportamento (Figura 2) é possível perceber um decréscimo na quantidade de  $^{232}\text{Th}$  em todas as configurações de reator simuladas, como já se era de esperar, pois ele é um isótopo fértil e gerador do  $^{233}\text{U}$ . Também pode-se notar que seu consumo é menor na configuração que utiliza  $\text{UO}_2$  mais enriquecido. Isso ocorre, pois em configurações com alto enriquecimento, ou seja, com maior quantidade de  $^{235}\text{U}$ , mesmo que a produção de nêutrons seja maior, o consumo de nêutrons pelo próprio  $^{235}\text{U}$  é maior, causando uma escassez de nêutrons disponíveis para fertilizar o  $^{232}\text{Th}$ .

### 5.2. $^{233}\text{U}$

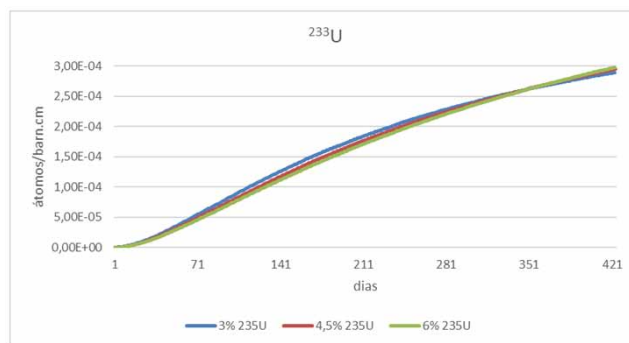


Fig 3:  $^{233}\text{U}$  com 40 % de  $\text{ThO}_2$

O  $^{233}\text{U}$  existe no reator como um produto de decaimento do  $^{233}\text{Pa}$ . Para o reator simulado com os dados apresentados (Figura 3), pode-se notar que a geração de  $^{233}\text{U}$  é sutilmente maior para o menor enriquecimento e, a partir do 350º dia ocorre uma maior concentração de  $^{233}\text{U}$  para o reator com 6% de enriquecimento. Isso ocorre porque, no início do ciclo, os nêutrons disponíveis são capturados pelo  $^{232}\text{Th}$  que, por sua vez, é transmutado em  $^{233}\text{U}$ . Então, não sobram muitos nêutrons para realizar sua fissão. Logo, é mais fácil a ocorrência da fertilização do  $^{232}\text{Th}$  do que a fissão do  $^{233}\text{U}$ . Por isso sua quantidade é maior em reatores com menos enriquecimento, gerando, assim, um acúmulo de  $^{233}\text{U}$  nesses reatores.

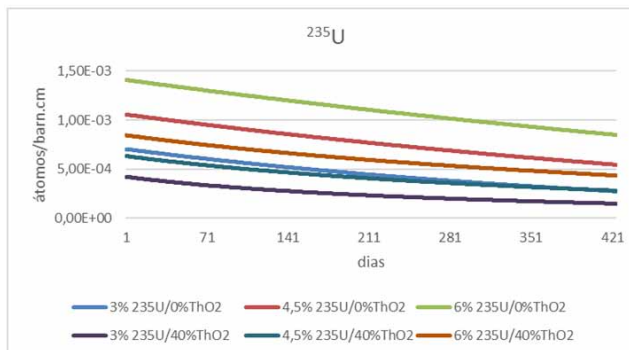


Fig 4:  $^{235}\text{U}$  com 0 e 40% de  $\text{ThO}_2$

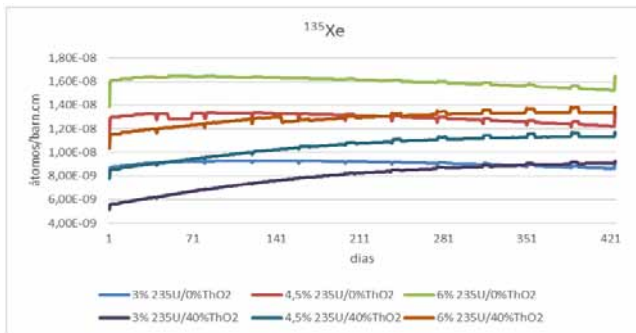
O  $^{235}\text{U}$  é consumido ao decorrer da vida de um reator, pois é um material físsil, o que pode ser notado na Figura 4.

**Tabel 1:** Quantidade de átomos/barn.cm de  $^{235}\text{U}$  consumidos ao decorrer de um ciclo

		wt% $^{235}\text{U}$		
		3	4,5	6
0% de $\text{ThO}_2$	átomos	4,30E-04	5,12E-04	5,60E-04
	%	61	48	40
40% de $\text{ThO}_2$	átomos	2,72E-04	3,52E-04	4,09E-04
	%	65	56	48

Pode-se perceber também que o decréscimo (Tabela 1) desse isótopo é maior no reator que contém 40% de  $\text{ThO}_2$  e  $\text{UO}_2$  enriquecido a 3%, devido à pouca quantidade desse isótopo presente nessa configuração.

#### 5.4. $^{135}\text{Xe}$



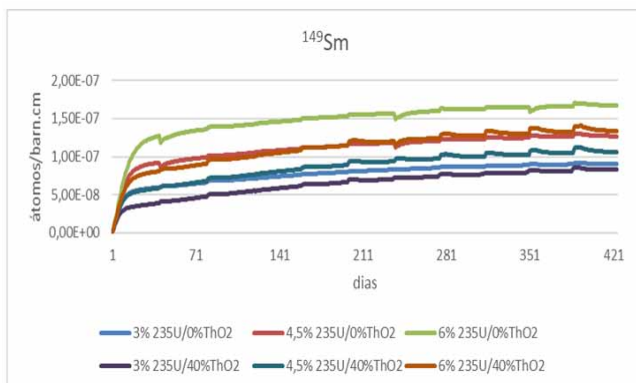
**Fig 5:**  $^{135}\text{Xe}$  com 0% e 40% de  $\text{ThO}_2$

**Tab 2:** Quantidade de átomos/barn.cm de  $^{135}\text{Xe}$  consumidos ao decorrer de um ciclo

	wt% $^{235}\text{U}$		
	3	4,5	6
0% de $\text{ThO}_2$	9,29E-09	1,33E-09	1,64E-08
40% de $\text{ThO}_2$	9,17E-09	1,17E-08	1,38E-08

Analisando o gráfico de comportamento do  $^{135}\text{Xe}$  (Figura 5) e a Tabela 2, pode-se notar que ao  $\text{UO}_2$  ser substituído por  $\text{ThO}_2$  a quantidade de átomos de  $^{135}\text{Xe}$  gerados diminui, e a medida que o enriquecimento do  $\text{UO}_2$  aumenta, a quantidade de átomos de  $^{135}\text{Xe}$  também aumenta.

#### 5.5. $^{149}\text{Sm}$



**Fig 6:**  $^{149}\text{Sm}$  com 0 e 40% de  $\text{ThO}_2$

**Tab 3:** Quantidade de átomos/barn.cm de  $^{149}\text{Sm}$  consumidos ao decorrer de um ciclo

	wt% $^{235}\text{U}$		
	3	4,5	6
0% de $\text{ThO}_2$	9,21E-08	1,30E-07	1,71E-07
40% de $\text{ThO}_2$	8,54E-08	1,12E-07	1,40E-07

Analisando o gráfico de geração do  $^{149}\text{Sm}$  (Figura 6) e a Tabela 3, pode-se notar que seu comportamento é semelhante ao do  $^{135}\text{Xe}$ . Quando o  $\text{UO}_2$  é substituído por  $\text{ThO}_2$  a quantidade de átomos de  $^{149}\text{Sm}$  gerados diminui, e à medida que o enriquecimento do  $\text{UO}_2$  aumenta, a quantidade de átomos de  $^{135}\text{Xe}$  também aumenta.

## 6. CONCLUSÃO

Da análise dos resultados das simulações, podemos concluir que o uso do  $\text{ThO}_2$  como combustível misto em um PWR é vantajoso, considerando o Tório como uma opção de material nuclear em relação ao Urânio. Desde que no início de seu ciclo haja um maior número de nêutrons, ou que seu combustível misto, no caso o Urânio, tenha um maior percentual de enriquecimento.

Outras características interessantes decorrentes do ciclo de um reator com combustível misto de  $\text{ThO}_2$  e  $\text{UO}_2$ , é o maior consumo de  $^{232}\text{Th}$  em reatores com menor enriquecimento de  $^{235}\text{U}$ , e também o menor surgimento dos venenos de fissão, como o  $^{135}\text{Xe}$  e o  $^{149}\text{Sm}$ . A quantidade de redução na geração desses isótopos foi de, em média, 17% de  $^{135}\text{Xe}$  e 21% de  $^{149}\text{Sm}$ , para o reator com 40% de  $\text{ThO}_2$  em seu volume, quando comparado com o reator com as configurações originais.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] Lauf, R. J. "Mineralogy of uranium and thorium". Atglen, PA: Schiffer Publishing, 2016.
- [2] "List of items to be reported to IAEA: Ongoing Monitoring and Verification Plan: ANNEX 3". Vienna: International Nuclear Verification.
- [3] Waltar, A. E.; Reynolds, A. B. "Fast breeder reactors". New York: Pergamon Press, 1981.
- [4] Belle, J.; Berman, R. M. "Thorium dioxide: properties and nuclear applications". Washington, D.C.: Naval Reactors Office, United States Dept. of Energy, 1984.
- [5] "Thorium fuel cycle: Potential benefits and challenges". Vienna: International Atomic Energy Agency, Maio, 2005.
- [6] "SCALE: a comprehensive modeling and simulation suite for nuclear safety analysis and design". ORNL/TM-2005/39, Versão 6.1, Junho de 2011.
- [7] "Final Safety Analysis Report - FSAR: Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto", Unit 2, Rio de Janeiro: Eletrobrás Termonuclear S.A, 1999.
- [8] Mcconn, R. J.; et. al. "Compendium of Material Composition Data for Radiation Transport Modeling". Department of Energy Contract, 2011. doi:10.2172/1023125.