

**Universidade de São Paulo
Instituto de Física**

**Estudo das reações nucleares envolvendo núcleos
pesados e prótons a energias intermediárias e altas e
de uma aplicação em física de reatores nucleares
(ADS)**

Paula Fernanda Toledo Matuoka

Orientador: Prof. Dr. Airton Deppman

Dissertação de mestrado apresentada ao Ins-
tituto de Física para a obtenção do título de
Mestre em Ciências

Banca Examinadora:

Prof. Dr. Airton Deppman (IFUSP)
Prof. Dr. Adimir dos Santos (IPEN)
Prof. Dr. João Manoel Losada Moreira (UFABC)

São Paulo
2016

FICHA CATALOGRÁFICA
Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação
do Instituto de Física da Universidade de São Paulo

Matuoka, Paula Fernanda Toledo

Estudo das reações nucleares envolvendo núcleos pesados e prótons a energias intermediárias e altas e de uma aplicação física de reatores nucleares (ADS). São Paulo, 2016.

Dissertação (Mestrado) – Universidade de São Paulo. Instituto de Física. Depto. de Física Experimental

Orientador: Prof. Dr. Airton Deppman

Área de Concentração: Reações Nucleares e Espalhamento (Reações Específicas).

Unitermos: 1. Reações nucleares; 2. Método de Monte Carlo; 3. Física nuclear; 4. Física computacional; 5. Reatores nucleares.

USP/IF/SBI-087/2016

University of São Paulo
Institute of Physics

**Study of nuclear reactions involving heavy nuclei and
intermediate- and high-energy protons and an
application in nuclear reactor physics (ADS)**

Paula Fernanda Toledo Matuoka

Advisor: Prof. Dr. Airton Deppman

Dissertation submitted in partial fulfillment
of the requirements for the degree of Master
of Science in Physics

Examining Committee:

Prof. Dr. Airton Deppman (IFUSP)
Prof. Dr. Adimir dos Santos (IPEN)
Prof. Dr. João Manoel Losada Moreira (UFABC)

São Paulo
2016

A todos que colaboraram, direta ou indiretamente, para a conclusão desta etapa.

Agradecimentos

Agradeço ao meu orientador, Prof. Dr. Airton Deppman, pela confiança.

Aos pesquisadores Dr. Pedro Carlos Russo Rossi e Dra. Lubianka Ferrari Russo Rossi pela colaboração nas simulações de reatores nucleares.

Aos colegas integrantes do Grupo de Reações Nucleares, Aplicações e Computação (GRENAC) pelo companheirismo.

Ao Instituto de Física pela oportunidade e suporte.

À Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) pelo auxílio financeiro.

Resumo

Neste trabalho, foram estudadas as reações envolvendo núcleos pesados e prótons no regime de energias intermediárias e altas através de simulações computacionais com o modelo Monte Carlo CRISP (Colaboração Rio - Ilhéus - São Paulo). Os principais processos nucleares investigados foram a cascata intranuclear e a competição evaporação-fissão. Em estudos preliminares, determinou-se que o CRISP reproduz satisfatoriamente a multiplicidade de nêutrons de evaporação ($E < 20$ MeV) da reação $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$ e a produção de resíduos de *spallation* para $p(1000 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$. Já o estudo da relação entre multiplicidade de nêutrons e fissão para a reação de prótons com energia até 85 MeV com ${}^{232}\text{Th}$ indicou que o CRISP superestimou as emissões, enquanto subestimou a seção de choque de fissão dessa reação – reflexo das limitações do modelo de cascata nuclear para baixas energias (da ordem de 50 MeV). A reação $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$ foi escolhida para o estudo de uma fonte de nêutrons de *spallation*. A cascata intranuclear foi responsável pela emissão dos nêutrons energéticos da reação ($E > 20$ MeV), enquanto que a evaporação foi responsável pelo maior número de nêutrons emitidos. A seção de choque de fissão encontrada foi de 209 mb, enquanto que a de *spallation* foi de 1788 mb – ambas comparáveis aos valores experimentais. A distribuição de massa dos fragmentos indicou fissão simétrica. Finalmente, foi utilizado outro código Monte Carlo, o MCNP, para o transporte de radiação, a fim de compreender o papel da fonte de nêutrons de *spallation* em um reator nuclear ADS (*Accelerator Driven System*). Simulou-se um reator PWR, inicialmente, para estudar a produção de núclídeos no processo de queima do combustível nuclear. Em seguida, simulou-se uma primeira tentativa de adaptação de uma fonte de *spallation* a um reator térmico de dimensões industriais. Constatou-se que não houve redução da concentração de elementos transurânicos com o modelo de reator adotado e alterações foram propostas.

Palavras-chave: Reações Nucleares. Spallation. Monte Carlo. CRISP. ADS.

Abstract

In the present work, intermediate- and high-energy nuclear reactions involving heavy nuclei and protons were studied with the Monte Carlo CRISP (Rio - Ilhéus - São Paulo Collaboration) model. The most relevant nuclear processes studied were intranuclear cascade and fission-evaporation competition. Preliminary studies showed fair agreement between CRISP model calculation and experimental data of multiplicity of evaporated neutrons ($E < 20$ MeV) from the $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$ reaction and of spallation residues from the $p(1000 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$ reaction. The investigation of neutron multiplicity from proton-induced fission of ${}^{232}\text{Th}$ up to 85 MeV showed that it was being overestimated by CRISP model; on the other hand, fission cross section were being underestimated. This behavior is due to limitations of the intranuclear cascade model for low-energies (around 50 MeV). The $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$ reaction was selected for the study of a spallation neutron source. High-energy neutrons ($E > 20$ MeV) were emitted mostly in the intranuclear cascade stage, while evaporation presented larger neutron multiplicity. Fission cross section of 209 mb and spallation cross section of 1788 mb were calculated – both in agreement with experimental data. The fission process resulted in a symmetric mass distribution. Another Monte Carlo code, MCNP, was used for radiation transport in order to understand the role of a spallation neutron source in a ADS (Accelerator Driven System) nuclear reactor. Initially, a PWR reactor was simulated to study the isotopic compositions in spent nuclear fuel. As a first attempt, a spallation neutron source was adapted to an industrial size nuclear reactor. The results showed no evidence of incineration of transuranic elements and modifications were suggested.

Keywords: Nuclear Reactions. Spallation. Monte Carlo. CRISP. ADS.

Lista de figuras

<p>Figura 1 – Multiplicidade de nêutrons para duas faixas de energia: (a) 2-20 MeV e (b) 20-E_{max} MeV. A reação é $p + {}^{208}\text{Pb}$ para três energias de incidência: 800 MeV, 1200 MeV e 1600 MeV. Comparação entre o valor experimental (\bullet), o CRISP – este trabalho (\circ) e trabalho anterior (\square) (ANÉFALOS et al., 2005b) – e os códigos INCL4 (\triangle) e LAHET(∇).</p>	45
<p>Figura 2 – Seção de choque de fissão induzida por próton para o ${}^{232}\text{Th}$: comparação entre o valor calculado com o CRISP (\circ) e o valor empírico (\bullet) do ajuste a dados experimentais realizado por (PROKOFIEV, 2001).</p>	47
<p>Figura 3 – Cálculo da multiplicidade de nêutrons por fissão para o ${}^{232}\text{Th}$ em função da energia do próton incidente. Comparação com os dados de (CHUNG; HOGAN, 1981). As linhas são apenas para visualização do comportamento.</p>	48
<p>Figura 4 – Cálculo da multiplicidade de nêutrons para o ${}^{232}\text{Th}$ em função da energia e por número de fissão por módulo do CRISP. As linhas são apenas para visualização do comportamento.</p>	49
<p>Figura 5 – Seções de choque para a produção de resíduos de spallation da reação ${}^{208}\text{Pb}$ (1 A GeV) + p.</p>	50
<p>Figura 6 – Distribuição da multiplicidade de nêutrons emitidos na reação p (1200 MeV) + ${}^{208}\text{Pb}$. As etapas da reação são: cascata intranuclear (<i>Cascade</i>), evaporação (<i>Spallation</i>), emissões pré-fissão (<i>Fission</i>) e pós-fissão, ou seja, de fragmentos (<i>Fis. Fragments</i>). Em escala logarítmica.</p>	52
<p>Figura 7 – Distribuição da energia cinética dos nêutrons emitidos durante a cascata intranuclear, em escala logarítmica, da reação p (1200 MeV) + ${}^{208}\text{Pb}$. Valor médio $\bar{K} = 162,3$ MeV em destaque no gráfico.</p>	53
<p>Figura 8 – Distribuição da energia cinética dos nêutrons evaporados no processo competitivo evaporação-fissão, em escala logarítmica, da reação p (1200 MeV) + ${}^{208}\text{Pb}$. Valor médio $\bar{K} = 4,7$ MeV em destaque no gráfico.</p>	53
<p>Figura 9 – Distribuição angular dos nêutrons emitidos durante a cascata intranuclear da reação p (1200 MeV) + ${}^{208}\text{Pb}$ em relação à direção de incidência. Valor médio $\bar{\theta} = 59^\circ$ em destaque no gráfico.</p>	54

Figura 10 – Distribuição polar dos nêutrons evaporados no processo competitivo evaporação-fissão da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Referencial do laboratório.	55
Figura 11 – Distribuição azimutal dos nêutrons evaporados no processo competitivo evaporação-fissão da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Referencial do laboratório.	55
Figura 12 – Distribuição de momentos dos nêutrons evaporados no processo competitivo evaporação-fissão da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{p} = 85,9$ MeV/c em destaque no gráfico.	56
Figura 13 – Distribuição de massa do núcleo ao final da cascata nuclear da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{A} = 205,7$ em destaque no gráfico.	56
Figura 14 – Distribuição de carga do núcleo ao final da cascata nuclear da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{Z} = 81,2$ em destaque no gráfico.	57
Figura 15 – Distribuição da energia de excitação do núcleo ao final da cascata nuclear da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{E} = 108,9$ MeV em destaque no gráfico.	57
Figura 16 – Seção de choque da produção de resíduos de <i>spallation</i> da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb , calculada com o CRISP. Valor mais provável $A_{max} = 203,5$ em destaque no gráfico. A seção de choque total encontrada foi $\sigma_{spall} = 1788$ mb – compatível com o valor experimental $\sigma_{spall}^{exp} = 1719$ mb (LERAY et al., 2002).	58
Figura 17 – Distribuição de carga dos resíduos de <i>spallation</i> da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor mais provável $Z_{max} = 82,5$ em destaque no gráfico.	59
Figura 18 – Parábolas de <i>spallation</i> dos principais elementos produzidos na reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb	60
Figura 19 – Distribuição de massa dos núcleos fissionantes da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{A} = 200,1$ em destaque no gráfico.	61
Figura 20 – Distribuição de carga dos núcleos fissionantes da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{Z} = 81,5$ em destaque no gráfico.	61
Figura 21 – Distribuição da energia de excitação dos núcleos fissionantes da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb , calculada com o CRISP. Valor médio $\bar{E} = 165,5$ MeV em destaque no gráfico.	62

Figura 22 – Seção de choque da produção de fragmentos de fissão em função da massa da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb , calculada com o CRISP. Seção de choque total $\sigma_f = 210$ mb, comparável ao valor experimental $\sigma_f^{exp} = 157 \pm 26$ mb da reação ^{208}Pb (1 A GeV) + p (ENQVIST et al., 2001).	63
Figura 23 – Distribuição de carga dos fragmentos de fissão da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb , calculada com o CRISP. Valor médio $\bar{Z} = 39,5$ em destaque no gráfico.	63
Figura 24 – Configuração do núcleo do reator crítico utilizado para a simulação da composição representativa do combustível queimado de um reator PWR comercial.	64
Figura 25 – Detalhes das dimensões do pino e do elemento combustível utilizado para a simulação da composição representativa do combustível queimado de um reator PWR comercial.	65
Figura 26 – Fluxo de nêutrons no plano transversal no centro do reator PWR simulado.	65
Figura 27 – Evolução do coeficiente de multiplicação k_{eff} da simulação da composição representativa do combustível nuclear durante sua queima em um reator PWR por aproximadamente um ano (350 dias).	66
Figura 28 – Evolução dos isótopos de urânio presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator PWR por aproximadamente um ano (350 dias).	67
Figura 29 – Evolução dos isótopos de plutônio presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator PWR por aproximadamente um ano (350 dias).	68
Figura 30 – Evolução dos isótopos de amerício presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator PWR por aproximadamente um ano (350 dias).	68
Figura 31 – Arranjo do reator ADS.	69
Figura 32 – Evolução do fator efetivo de multiplicação k_{eff} da simulação da composição representativa do combustível nuclear durante sua queima em um reator ADS térmico por aproximadamente um ano (350 dias).	70

Figura 33 – Evolução dos isótopos de urânio presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator ADS térmico por aproximadamente um ano (350 dias).	70
Figura 34 – Evolução dos isótopos de plutônio presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator ADS térmico por aproximadamente um ano (350 dias).	71
Figura 35 – Evolução dos isótopos de amerício presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator ADS térmico por aproximadamente um ano (350 dias).	72

Sumário

1	Introdução	13
1.1	Motivação	13
1.2	Objetivos	14
1.3	Estrutura do trabalho	15
2	Desenvolvimento	16
2.1	Revisão da literatura	16
2.1.1	Reações nucleares	16
2.1.1.1	Cascata intranuclear	16
2.1.1.2	Evaporação	21
2.1.1.3	Fissão	24
2.1.1.4	Multifragmentação nuclear	28
2.1.2	Reatores nucleares	30
2.1.2.1	Conceitos	30
2.1.2.2	Física de reatores	31
2.1.2.3	Reator ADS	32
2.2	Materiais e métodos	33
2.2.1	Métodos de Monte Carlo	33
2.2.2	CRISP	36
2.2.2.1	MCMC	37
2.2.2.2	MCEF	38
2.2.2.3	Multimodal-Fission	40
2.2.3	MCNP	42
2.2.4	ROOT	43
2.2.5	Descrição do método	43
2.3	Resultados e Discussão	44
2.3.1	Estudo das reações nucleares	44
2.3.1.1	Estudo da relação entre multiplicidade de nêutrons e evaporação.	44
2.3.1.2	Estudos da relação da multiplicidade de nêutrons e a fissão.	46
2.3.1.3	Estudo da produção de fragmentos na reação de spallation.	49
2.3.2	Fonte de spallation	51

2.3.3	Reator ADS	63
3	Conclusão	74
	Referências	76

1 Introdução

1.1 Motivação

A busca por fontes de energias não-emissoras de gases do efeito estufa resultou em uma renovada atenção dispendida à geração de energia nucleoeétrica. No entanto, no cenário em que reatores de potência aumentam progressivamente sua participação na grade energética mundial, as reservas de urânio correriam risco de serem esgotadas e a capacidade dos repositórios geológicos profundos – destino adequado do combustível nuclear queimado – seria comprometida (NIFENECKER et al., 2001).

Com base em critérios tecnológicos e de aceitação pública da energia nuclear, uma possível solução seria a transmutação dos radionuclídeos de alta radiotoxicidade (em geral, emissores alfa de meia-vida longa) em isótopos estáveis ou de meia-vida relativamente curta, reduzindo o volume a ser depositado. Outra, seria adotar um processo de produção de energia que minimizasse intrinsecamente a geração desses rejeitos.

Os reatores de potência atuais utilizam, em sua maioria, água leve como moderador e refrigerante. Os modelos mais comuns são os PWR – reatores a água pressurizada – e os BWR – reatores a água em ebulição. O combustível é, em sua absoluta maioria, à base de urânio (enriquecido em ^{235}U).

O combustível nuclear queimado resultante da operação de um PWR passa cerca de um ano em um fluxo térmico da ordem de 3×10^{13} nêutrons/cm².s. Os produtos de fissão e de ativação ainda presentes, portanto, são aqueles que possuem pequenas seções de choque para absorção e fissão, respectivamente (BOWMAN et al., 1992). Sendo assim, para favorecer a transmutação é necessário o aumento do fluxo ou da energia dos nêutrons.

É neste contexto que o conceito de reatores acionados por aceleradores, ou ADS (*Accelerator Driven System*) ganhou força.

Trata-se do acoplamento entre um acelerador de partículas potente e um reator subcrítico. Um fluxo intenso de nêutrons rápidos resultante da reação de *spallation* entre um feixe de prótons acelerados (energia da ordem de 1 GeV e corrente da ordem de 10-100 mA) e um alvo grosso (da ordem de 1 m de comprimento) de elemento pesado (chumbo, em geral) é fornecido a um sistema multiplicativo subcrítico (incapaz de sustentar uma reação em cadeia).

O excesso de nêutrons introduzido pela fonte de *spallation* viabilizaria formação de elementos físséis – o ^{239}Pu a partir do ^{238}U , e o ^{233}U a partir do ^{232}Th – favorecendo tanto a transmutação quanto a geração de energia.

O ciclo do tório é de grande interesse: trata-se de um elemento três vezes mais abundante que o urânio na crosta terrestre (BOWMAN et al., 1992). Os actínídeos formados podem ser recuperados quimicamente para nova utilização no reator. Seus rejeitos radioativos possuem radiotoxicidade intensa, porém devida a produtos de fissão de meia-vida curta (CARMINATI et al., 1993).

1.2 Objetivos

Reatores híbridos do tipo ADS, portanto, são de grande interesse tecnológico, pois possibilitariam a transmutação de rejeitos radioativos advindos da operação dos atuais reatores de potência e, também, a utilização do ciclo do tório como combustível nuclear.

Conhecer a produção de partículas e de fragmentos é de grande importância para o desenvolvimento de um ADS: a reação de *spallation* resulta na produção não apenas de nêutrons, mas de outras partículas e fragmentos que, por sua vez, podem ter energia suficiente para interagir com a matéria circunstante (materiais estruturais, o combustível nuclear e a própria fonte).

Os objetivos da pesquisa foram (i) estudar as reações nucleares envolvendo núcleos pesados e prótons no regime de energias intermediárias e altas (em especial a cascata intranuclear, o processo competitivo evaporação-fissão e a multifragmentação nuclear) através de simulações computacionais com o modelo Monte Carlo CRISP (Colaboração Rio - Ilhéus - São Paulo) e com base em modelos estatísticos conhecidos e validados por dados experimentais; e (ii) aplicar os conhecimentos obtidos com o estudo das reações ao projeto de uma fonte de *spallation* de um reator ADS e analisar a influência da produção de partículas e fragmentos na operação e manutenção de tal equipamento, utilizando outro código Monte Carlo, o MCNP, para o transporte de radiação.

A primeira parte da aplicação visou a utilização do CRISP para identificar os principais parâmetros nucleares para otimização da produção de nêutrons por próton incidente em uma fonte de *spallation*.

A segunda parte da aplicação visou estudar o acoplamento entre a fonte de *spallation* e um núcleo subcrítico com base no estudo da geometria do sistema, dos materiais escolhidos, de cálculos neutrônicos e investigação da transmutação/queima do combustível nuclear.

1.3 Estrutura do trabalho

O Capítulo 2 contém todo o desenvolvimento do trabalho.

A fundamentação teórica com base na literatura das reações nucleares estudadas e do conceito de reator ADS é apresentada na Seção 2.1.

Os materiais – códigos computacionais – e os métodos empregados neste trabalho encontram-se pormenorizados na Seção 2.2.

Os resultados obtidos no estudo das reações nucleares com o uso do modelo CRISP, e da aplicação (fonte de *spallation* e simulação de um reator ADS), onde foi empregado o código MCNP, são apresentados na Seção 2.3 juntamente com a discussão dos dados.

Por fim, no Capítulo 3 são apresentadas as conclusões.

2 Desenvolvimento

2.1 Revisão da literatura

2.1.1 Reações nucleares

Reações nucleares a energias intermediárias e altas podem ser descritas como um mecanismo de duas etapas (DEPPMAN et al., 2012):

- Uma etapa rápida, chamada *cascata intranuclear*, que é a distribuição da energia e do momento de uma partícula incidente por interações bárion-bárion; partículas secundárias são criadas e estas podem interagir ou deixar o núcleo caso tenham energia superior à de ligação; a cascata termina quando nenhuma partícula puder ser emitida, e todas as colisões a partir desse momento levam apenas à termalização do sistema nuclear.
- A segunda etapa, mais lenta que a anterior, depende da energia de excitação E^* do núcleo formado após a cascata intranuclear:
 - Se $E^* < 3 \text{ MeV/A}$, ocorre um processo competitivo entre a *evaporação* – dominante para nucleons com numero de massa $A < 230$, caracterizada pela emissão de partículas (principalmente neutrons, prótons e alfas) como forma de desexcitação do núcleo e pela formação de um resíduo de *spallation* – e a *fissão* – dominante para núcleos com $A > 230$, caracterizada pela formação de dois fragmentos de fissão.
 - Se $E^* > 3 \text{ MeV/A}$, pode ocorrer a *multifragmentação nuclear*, que é um processo mais rápido que a competição evaporação/fissão e que consiste na produção simultânea de diversos fragmentos com características nucleares variadas.

2.1.1.1 Cascata intranuclear

Com o surgimento dos primeiros aceleradores de partículas nos anos 1940-1950, a natureza das reações nucleares a energias intermediárias e altas começou a ser estudada a partir de experimentos de transmutação induzida.

Bohr (BOHR, 1936) já havia descrito reações com nêutrons energéticos e núcleos pesados como um processo de duas etapas: na primeira, havia a formação de um núcleo

composto excitado; na segunda, ocorria a desexcitação por algum mecanismo dependente da energia de excitação (emissão de nêutrons, por exemplo).

De acordo com Serber (SERBER, 1947), nêutrons com energia da ordem de 100 MeV têm caminho livre médio comparável ao raio nuclear, não havendo formação de núcleo composto. Logo, a interação de uma partícula incidente de alta energia ocorre com partículas intranucleares, com forte dependência do parâmetro de impacto.

Em uma colisão periférica, há pouca transferência de energia, enquanto que, em uma colisão frontal, a partícula incidente pode sofrer diversas colisões ao atravessar o diâmetro nuclear e perder boa parte ou até mesmo toda sua energia. A ejeção de partículas é mais provável quando a partícula incidente atinge nucleons superficiais.

Adotando uma abordagem temporal para a reação, Serber identificou duas etapas. A primeira, posteriormente chamada *cascata intranuclear*, considerava a colisão entre a partícula incidente e um ou alguns nucleons, com formação de partículas secundárias e possível emissão de partículas. A segunda, mais lenta que a anterior, era o processo de *termalização nuclear*, ou seja, a distribuição da energia através do núcleo por colisões intranucleares; todos os eventos subsequentes poderiam ser descritos por um modelo de evaporação.

Partindo do estudo de Serber, Goldberger (GOLDBERGER, 1948) investigou a interação de nêutrons a altas energias e núcleos pesados utilizando o método estatístico desenvolvido por Ulam e von Neumann (ULAM; NEUMANN, 1947) – que viria a ser conhecido como Método de Monte Carlo (METROPOLIS; ULAM, 1949).

O núcleo foi considerado como uma mistura de dois gases de Fermi – um de prótons e outro de nêutrons – não-interagentes em um poço de potencial uniforme. As energias de Fermi máximas foram calculadas por (1):

$$E_f = \frac{\hbar^2}{2M} \left(3\pi^2 \frac{N}{V} \right)^{2/3} \quad (1)$$

onde N é o número de nucleons (prótons ou nêutrons), V é o volume e M é a massa do núcleo.

A observância do princípio de exclusão de Pauli foi feita considerando uma esfera no espaço dos momentos cujo raio P era dado por (2):

$$P = \hbar \left(3\pi^2 \frac{N}{V} \right)^{1/3} \quad (2)$$

e exigindo que tanto o projétil quanto o nucleon-alvo estivessem fora dessa esfera após a colisão.

O método estatístico consistia em acompanhar um grande número de partículas passando pelo núcleo, efetuando o cálculo dos principais parâmetros, colisão a colisão, até que elas escapassem do núcleo ou fossem absorvidas. Variáveis aleatórias foram usadas para amostrar a distância percorrida pela partícula incidente dentro do núcleo, o momento do nucleon-alvo e o ângulo das partículas espalhadas. O princípio de Pauli foi verificado: caso fosse uma colisão permitida, ela era realizada; caso fosse proibida, era sorteada uma nova distância dentro do núcleo para a partícula incidente.

A distribuição angular dos nêutrons espalhados por núcleos pesados reflete o bloqueio das transferências pequenas (ângulos frontais) e grandes (retroespalhamento) de momento devido ao princípio de Pauli. Para um ângulo de espalhamento fixo, a distribuição de energia é devida ao movimento dos nucleons-alvos dentro do núcleo.

Com o aperfeiçoamento do computador eletrônico e a disponibilidade de novos dados experimentais, o método de Monte Carlo pôde ser empregado amplamente no estudo das reações de nêutrons energéticos e núcleos pesados com um número reduzido de aproximações, melhorando a acurácia dos resultados.

O modelo nuclear adotado por Metropolis ([METROPOLIS et al., 1958](#)) era similar ao utilizado por Goldberger.

A simulação começava com a escolha do parâmetro de impacto; a posição de colisão era escolhida de acordo com as seções de choque totais e a composição nuclear naquele instante; se essa posição estivesse dentro do núcleo, a partícula-alvo era escolhida (seleção de tipo, energia e direção de movimento) e a colisão ocorreria. As propriedades das partículas eram, então, recalculadas: no caso de alguma partícula possuir energia inferior à de Fermi, uma nova posição de colisão era escolhida e o processo recomeçaria; se fosse uma colisão permitida, uma das partículas era armazenada para tratamento posterior enquanto a outra era seguida. Quando todas as partículas armazenadas fossem tratadas, uma nova cascata poderia ser iniciada.

O excesso de nêutrons em núcleos pesados e o fato de que a seção de choque entre prótons e nêutrons é maior que aquela entre nucleons do mesmo tipo fazem com que a *transparência nuclear* – aqui definida como a razão entre o número de partículas incidentes que não interagem e o total de partículas incidentes – seja maior quando o projétil é o nêutron. Na faixa de energia considerada no trabalho em questão (entre 155

e 364 MeV), a transparência não sofreu variação devido à compensação de dois efeitos: menor influência do princípio de Pauli a altas energias, reduzindo o caminho livre médio do nucleon incidente, e o fato de as seções de choque serem inversamente proporcionais à energia de incidência, aumentando o caminho livre médio. A maior emissão de nêutrons em reações com núcleos pesados é decorrência do caminho livre médio de nêutrons, que é maior que o de prótons para a mesma energia.

A energia de excitação E^* do núcleo residual era o balanço entre as energias da partícula incidente, das partículas emitidas e de suas energias de ligação. Cascatas com formação de núcleo composto (sem emissão de partículas) apresentavam energia de excitação única, igual à energia de incidência mais a energia de ligação da partícula. Por outro lado, cascatas sem formação de núcleo composto possuíam energia de excitação determinada pelo número de partículas emitidas. A variação da distribuição da energia de excitação aumentava lentamente com a energia da partícula incidente e era maior em núcleos pesados.

Duas tendências foram identificadas: em núcleos pesados e para energia de incidência baixa, a energia de excitação era ao redor do máximo (núcleo quasi-composto, com energia de excitação próxima ao valor máximo); em núcleos leves e para energia de incidência alta, a energia de excitação era similar à distribuição de Maxwell.

Dando continuidade ao trabalho de Metropolis, Bertini ([BERTINI, 1963](#)) estudou a influência do modelo nuclear no cálculo da cascata intranuclear.

O novo modelo considerava três regiões com densidades nucleares diferentes, enquanto o anterior considerava densidade nuclear constante. As três regiões foram definidas por três superfícies esféricas concêntricas cujos raios foram escolhidos de forma a resultar em densidades arbitrárias distintas (frações da densidade central obtida experimentalmente, a região mais interna sendo a mais densa, e a mais externa, a menos densa). Cada região possuía a mesma proporção entre prótons e nêutrons. A distribuição de energia dos nucleons era determinada pela energia de Fermi à temperatura $T = 0K$ e a distribuição de momento era da forma gaussiana, ajustada com dados experimentais. Quando as partículas passavam de uma região para outra, poderiam ganhar ou perder energia cinética (potencial nuclear dependente da densidade nuclear). As seções de choque empregadas (não-elásticas totais para interações entre nucleons e entre píons carregados e prótons) foram coletadas de experimentos, calculadas por fórmulas empíricas ou estimadas.

Foram empregadas técnicas de amostragem (métodos de Monte Carlo) para o ponto em que ocorreria a colisão binária, o tipo de colisão, o momento da partícula-alvo e o ângulo de espalhamento. Colisões que resultavam em partículas com energia inferior à de Fermi eram ignoradas e efeitos relativísticos foram considerados.

Concluiu-se que a seção de choque calculada era bastante sensível ao modelo nuclear adotado e que os efeitos do tamanho nuclear eram mais significativos que aqueles decorrentes da presença de uma borda difusa (densidade variável), em especial para núcleos pesados.

Chen (CHEN et al., 1968) desenvolveu o código Monte Carlo VEGAS, que combinou funções de distribuição da densidade nuclear distintas com efeitos de refração e reflexão de nucleons nas interfaces entre regiões de densidades diferentes.

Uma característica marcante deste modelo foi a adoção da ordenação temporal do desenvolvimento da cascata intranuclear. Em trabalhos anteriores, as partículas eram seguidas uma a uma, a começar pela incidente, até o fim de sua história, ou seja, quando sua energia fosse inferior a um valor limite (*cutoff*) pré-determinado ou fosse emitida. Neste, um intervalo de tempo τ pequeno era escolhido: a cada intervalo, era determinada a probabilidade de interação por colisão binária para todas as partículas com energia superior ao *cutoff*.

O ponto positivo dessa alteração era poder incluir, futuramente, tanto efeitos de correlação entre duas partículas de cascata espacialmente próximas quanto efeitos de alterações no potencial e na densidade nucleares devidas a interações prévias. O ponto negativo foi o aumento da complexidade do código.

A introdução de efeitos de refração e reflexão promovia o aumento da deposição de energia de excitação e da transferência de momento; conseqüentemente, o número de partículas secundárias emitidas era reduzido.

Concluiu-se que os efeitos de refração e reflexão eram mais significativos que os decorrentes da variação da distribuição da densidade nuclear, exceto nos casos de interações simples, ou seja, reações do tipo (p, n) e (p, pn) . Foi sugerido que o emprego de um potencial nuclear dependente da velocidade da partícula incidente poderia aumentar a concordância dos valores calculados com os dados experimentais, uma vez que houve discrepâncias no caso de núcleos pesados e energia de incidência baixa.

Cugnon (CUGNON, 1987) adaptou o modelo Monte Carlo INC – desenvolvido anteriormente para reações com íons pesados – para reações do tipo próton-núcleo. O

objetivo inicial era o estudo das reações violentas (colisões centrais) entre prótons e núcleos, na faixa de energia de 100 MeV a 20 GeV.

O potencial nuclear era do tipo poço esférico constante V_0 ; nucleons superficiais poderiam refletir ou escapar do núcleo; a inelasticidade foi introduzida com a implementação de canais de produção de Δ e π .

O próton incidente era seguido; notou-se que o número de colisões primárias – entre o próton incidente e nucleons – era inferior ao esperado. Os motivos eram: o próton era constantemente desacelerado, reduzindo sua seção de choque efetiva; o bloqueio de Pauli, embora pequeno, não era desprezível mesmo a energias altas; e havia a probabilidade do próton incidente formar ressonâncias Δ .

2.1.1.2 Evaporação

O modelo estatístico de Weisskopf ([WEISSKOPF, 1937](#)) descreve a etapa de de-secitação do núcleo composto sugerida por Bohr ([BOHR, 1936](#)) como um processo de evaporação de partículas, em analogia à Termodinâmica.

A construção do modelo é feita para a emissão de um nêutron por um núcleo pesado A cuja energia de excitação E_A é maior que a energia de ligação média para nêutrons \bar{B}_n . O processo pode ser representado por $A = B + n$, onde B é um núcleo com energia de excitação E_B . A validade estatística depende do número de estados excitados possíveis para B , que deve ser grande. Considerando a reação inversa, $n + B = A$, tem-se que a energia cinética do nêutron deve ser $T = E_A - E_0$, onde E_0 é a energia de ligação do nêutron ao núcleo A . Essa condição é alcançada quando: $E_A \gg E_0$ para núcleos pesados ($A > 100$); $E_A - E_0 > 3$ MeV para nêutrons; $E_A < B_{tot}$, onde B_{tot} é a energia de ligação total do núcleo.

Seja $W_n(\epsilon)d\epsilon$ a probabilidade por unidade de tempo de o núcleo $A(E_A)$ emitir um nêutron com energia cinética entre ϵ e $\epsilon + d\epsilon$, decaindo para $B(E_B)$, $E_B = E_A - E_0 - \epsilon$. Essa quantidade é equivalente à probabilidade média sobre todos os estados excitados de A cuja energia está próxima de E_A , onde $d\epsilon$ deve ser muito maior que a distância entre os níveis de energia considerados.

Novamente, considerando a reação inversa, pode-se associar essa probabilidade à seção de choque $\sigma(E_A, \epsilon)$ da colisão entre neutrons com energia ϵ e um núcleo B , $E_B = E_A - E_0 - \epsilon$.

Finalmente:

$$W_n(\epsilon)d\epsilon = \sigma(E_A, \epsilon) \frac{gm\epsilon}{\pi^2\hbar^3} \frac{\omega_B(E_B)}{\omega_A(E_A)} d\epsilon \quad (3)$$

onde: $\omega_A(E_A)dE$ e $\omega_B(E_B)dE$ são os números de níveis dos núcleos A e B , respectivamente, com energia entre E e $E + dE$; m é a massa da partícula emitida; e g é o número de estados para o spin da partícula ($g = 2$ para nêutrons e prótons, $g = 1$ para alfas).

Escrevendo as entropias em função da densidade de níveis:

$$\begin{aligned} S_A &= \ln \omega_A(E_A) \\ S_B &= \ln \omega_B(E_B) \end{aligned} \quad (4)$$

tem-se:

$$W_n(\epsilon)d\epsilon = \sigma(E_A, \epsilon) \frac{gm\epsilon}{\pi^2\hbar^3} e^{S_B(E_A-E_0-\epsilon)-S_A(E_A)} d\epsilon \quad (5)$$

Para a evaporação de partículas, $\epsilon \ll E_A - E_0$. Então, expandindo em série de Taylor:

$$\begin{aligned} S_B(E_A - E_0 - \epsilon) &= S_B(E_A - E_0) - \frac{\epsilon}{T_B(E_A - E_0)} - f(\epsilon) \\ \frac{dS_B}{dE} &= \frac{1}{T_B(E)} \end{aligned} \quad (6)$$

onde $T_B(E)$ é a temperatura na qual E é a energia mais provável do núcleo B em equilíbrio termodinâmico e $f(\epsilon)$ são termos de outras ordens.

Logo:

$$W_n(\epsilon)d\epsilon = \sigma(E_A, \epsilon) \frac{gm}{\pi^2\hbar^3} e^{S_B(E_A-E_0)-S_A(E_A)} \epsilon e^{-\frac{\epsilon}{T_B(E_A-E_0)}} e^{-f(\epsilon)} d\epsilon \quad (7)$$

A probabilidade total – dada pela integral de (7) sobre todos os níveis de energia – multiplicada por \hbar é a *largura do canal de emissão* do nêutron, Γ_n :

$$\Gamma_n = \hbar \int W_n(\epsilon)d\epsilon = \bar{\sigma} \frac{gm}{\pi^2\hbar^2} T_B^2(E_A - E_0) e^{S_B(E_A-E_0)-S_A(E_A)} \quad (8)$$

onde $\bar{\sigma}$ é o valor médio de $\sigma(E_A, \epsilon)e^{-f(\epsilon)}$ sobre uma distribuição de Maxwell:

$$\bar{\sigma} = \frac{\int \epsilon \sigma(E_A, \epsilon) e^{-\frac{\epsilon}{T_B} - f(\epsilon)} d\epsilon}{\int \epsilon e^{-\frac{\epsilon}{T_B}} d\epsilon} \quad (9)$$

Para a emissão de partículas carregadas (prótons e alfas), deve ser considerada a influência do campo coulombiano V sobre a seção de choque do processo inverso $\sigma(E_A, \epsilon)$, devido à repulsão sobre a partícula incidente. Neste caso:

$$\sigma(E_A, \epsilon) = \begin{cases} \sigma_0(1 - V/\epsilon) & , \epsilon > V \\ 0 & , \epsilon < V \end{cases} \quad (10)$$

onde: $\sigma_0 = \pi r^2$; $V = ZZ'e^2/r$; Z e r são, respectivamente, a carga e o raio do núcleo; e $Z'e$ é a carga da partícula.

A entropia é reescrita como:

$$S_B(E_A - E_0 - \epsilon) = S_B(E_A - E_0 - V) - \frac{(\epsilon - V)}{T_B(E_A - E_0 - V)} - f(\epsilon - V) \quad (11)$$

Então:

$$W_p(\epsilon)d\epsilon = \sigma_0 \frac{gm}{\pi^2 \hbar^3} e^{S_B(E_A - E_0 - V) - S_A(E_A)} (\epsilon - V) e^{-\frac{(\epsilon - V)}{T_B(E_A - E_0 - V)}} e^{-f(\epsilon - V)} d\epsilon \quad (12)$$

e:

$$\Gamma_p = \hbar \int W_p(\epsilon)d\epsilon = \sigma_0 \frac{gm}{\pi^2 \hbar^2} T_B^2 (E_A - E_0 - V) e^{S_B(E_A - E_0 - V) - S_A(E_A)} \quad (13)$$

De (6), tem-se que $S(E) = \int dE/T(E)$. Seja $E = T^n/a$ a energia mais provável do núcleo à temperatura T de equilíbrio termodinâmico, a é uma constante e n , um número que depende dos graus de liberdade excitados do modelo adotado.

Para o modelo de gás de partículas degenerado interagentes, $n = 2$ e E segue a estatística de Fermi. Pode-se escrever:

$$\begin{aligned} S(E) &\propto 2(E/a)^{1/2} \\ \omega(E) &\propto \exp [2(E/a)^{1/2}] \end{aligned} \quad (14)$$

Se $\omega(E)$ e duas energias distintas E_1 e E_2 forem conhecidas, encontra-se o parâmetro a :

$$a = 4 \left[\frac{E_1^{1/2} - E_2^{1/2}}{\ln \omega(E_1) - \ln \omega(E_2)} \right]^2 \quad (15)$$

2.1.1.3 Fissão

Logo após a descoberta do nêutron (1932), Fermi (1934) realizou experimentos de bombardeamento de urânio com nêutrons e identificou a produção de elementos ainda mais pesados – os *transurânicos*. Análises químicas, contudo, indicavam a presença de uma enorme variedade de núcleos mais leves (TURNER, 1940; VANDENBOSCH; HUIZENGA, 1973).

Hahn e Strassmann (1939) realizaram novos experimentos com urânio e tório e seus resultados sugeriam que, após a irradiação, tais núcleos dividiam-se em fragmentos de massas intermediárias. Meitner e Frisch (1939) chamaram esse processo de *fissão nuclear*, onde o núcleo pesado excitado dividia-se em dois fragmentos acelerados de massas complementares, e estabeleceram as bases do modelo nuclear da gota líquida.

A fórmula semi-empírica de Weizsäcker permite escrever a energia de ligação nuclear $B(Z, A)$ como uma soma de cinco termos – *volumétrico*, *superficial*, *coulombiano*, *de simetria* e *de paridade*, cujos respectivos coeficientes são a_V, a_S, a_C, a_{Sim} e δ_{Par} – dependentes do número atômico Z e do número de massa A (CHUNG, 2001):

$$B(Z, A) = a_V A + a_S A^{2/3} - a_C \frac{Z(Z-1)}{A^{1/3}} - a_{Sim} \frac{(N-Z)^2}{A} - \delta_{Par} \quad (16)$$

No modelo da gota líquida, a variação da energia potencial associada às deformações do núcleo fissionante pode ser descrita como o balanço entre os termos superficial e coulombiano.

Um núcleo (Z, A) não-deformado pode ser representado por uma esfera de raio R_0 , superfície $S_0 = 4\pi R_0^2$ e volume $V_0 = (4/3)\pi R_0^3$, cuja tensão superficial é Ω . Suas energias potenciais superficial (E_s^0) e coulombiana (E_c^0), são (BOHR; WHEELER, 1939; VANDENBOSCH; HUIZENGA, 1973):

$$E_s^0 = 4\pi R_0^2 \Omega \quad , \quad E_c^0 = \frac{3}{5} \frac{(Ze)^2}{R_0} \quad (17)$$

Assumindo pequenas distorções simétricas axialmente, o raio do núcleo deformado $R(\theta)$ é dado pelos dois primeiros termos não-nulos da expansão em polinômios de Legendre:

$$R(\theta) = R_0[1 + \alpha_2 P_2(\cos \theta)] \quad (18)$$

onde θ é o ângulo polar e α_2 é um parâmetro pequeno que representa distorções de quadrupolo. Para cálculos com maior detalhamento, é necessário considerar parâmetros de ordens mais elevadas.

Então, para pequenas perturbações, as energias potenciais do núcleo deformado são:

$$E_s = E_s^0(1 + \frac{2}{5}\alpha_2^2) \quad , \quad E_c = E_c^0(1 - \frac{1}{5}\alpha_2^2) \quad (19)$$

Nota-se que, com a introdução da deformação, a energia superficial aumenta de $\Delta E_s = +(2/5)\alpha_2^2 E_s^0$, enquanto que a de origem coulombiana diminui de $\Delta E_c = -(1/5)\alpha_2^2 E_c^0$. A curva de energia potencial em função de um (ou mais de um) parâmetro de deformação (α_2 , por exemplo) leva ao aparecimento de uma barreira de potencial – a *barreira de fissão* –, cujo ponto de sela (ponto crítico de equilíbrio instável) determina sua altura e indica a máxima deformação nuclear. Essa condição é alcançada quando:

$$\frac{|\Delta E_c|}{\Delta E_s} = 1 \quad \text{ou} \quad \frac{E_c^0}{2E_s^0} = 1 \quad (20)$$

Além desse ponto, ocorre a *cisão* – a separação dos dois fragmentos formados pela deformação nuclear.

Bohr e Wheeler definiram o *parâmetro de fissibilidade* x como:

$$x = \frac{E_c^0}{2E_s^0} \quad \propto \frac{Z^2}{R_0^3} \quad \propto \frac{Z^2}{A} \quad (21)$$

Para $x < 1$, o núcleo é estável; a instabilidade nuclear ocorre quando $x = 1$; e, para $x > 1$, não há barreira de fissão e pode ocorrer fissão espontânea. No caso de fissão induzida, a energia a ser fornecida ao núcleo para vencer a barreira de fissão é igual à altura desta menos a energia do estado fundamental – é a chamada *energia de ativação*.

Bohr e Wheeler calcularam a probabilidade de fissão de um núcleo (Z, A) com energia de excitação E e barreira de fissão B_f em termos da largura Γ_f (BOHR; WHEELER, 1939; VANDENBOSCH; HUIZENGA, 1973):

$$\Gamma_f = \frac{D}{2\pi} \sum T \quad (22)$$

onde D é o espaçamento médio entre os níveis de energia e T é o coeficiente de transmissão (penetração da barreira de fissão). Escolhendo $T = 1$ se $E > B_f$ e $T = 0$

se $E < B_f$, a somatória é igual ao número de estados excitados para os quais a fissão é possível para a energia cinética K do grau de liberdade de fissão. Logo:

$$\Gamma_f = \frac{D}{2\pi} \int_0^{E-B_f} \rho(E - B_f - K) dK \quad (23)$$

onde ρ é a densidade de níveis excitados.

Reescrevendo Γ_n encontrado por Weisskopf de maneira análoga, tem-se:

$$\Gamma_n = \frac{D}{2\pi} \sum T \quad (24)$$

Aqui, o modelo de ondas parciais prevê contribuições de diversos momentos angulares (no caso de energias de excitação altas) nos estados finais. A dependência em relação ao momento angular é dada por:

$$\sum T \rightarrow \sum_l (2l + 1) T_l \rightarrow \int (2l + 1) T_l dl \quad (25)$$

Seja l_m o máximo momento angular; escolhendo $T_l = 1$ para $l < l_m$ e $T_l = 0$ para $l > l_m$, tem-se:

$$\int_0^{l_m} (2l + 1) T_l dl \cong l_m^2 = \left(\frac{Rp}{\hbar} \right)^2 = \frac{2mR^2\varepsilon}{\hbar^2} \quad (26)$$

onde $R = r_0 A^{1/3}$ é o raio do núcleo, $p = \sqrt{2m\varepsilon}$ o momento do nêutron de massa m e energia ε .

Agora, incluindo a variação dos níveis de energia dos estados finais, chega-se à expressão:

$$\Gamma_n = \frac{D}{2\pi} \frac{2mR^2g}{\hbar^2} \int_0^{E-B_n} \varepsilon \rho(E - B_n - \varepsilon) d\varepsilon \quad (27)$$

onde g é a degenerescência de spin ($g = 2$ para nêutrons) e B_n é a energia de ligação do nêutron.

Comparando as probabilidades de fissão e de emissão de nêutrons, tem-se:

$$\frac{\Gamma_f}{\Gamma_n} = \frac{\hbar^2}{2mR^2g} \frac{\int_0^{E-B_f} \rho(E - B_f - K) dK}{\int_0^{E-B_n} \varepsilon \rho(E - B_n - \varepsilon) d\varepsilon} \quad (28)$$

O modelo nuclear do gás degenerado de Fermi define a densidade de níveis em função da energia como:

$$\rho(E) \propto \exp[2(aE)^{1/2}] \quad (29)$$

onde a é o parâmetro da densidade de níveis.

Substituindo (29) em (28), obtém-se:

$$\frac{\Gamma_f}{\Gamma_n} = K_0 a_n \frac{[2a_f^{1/2}(E - B_f)^{1/2} - 1]}{4A^{2/1}a_f(E - B_n)} \exp \left[2a_f^{1/2}(E - B_f)^{1/2} - 2a_n^{1/2}(E - B_n)^{1/2} \right] \quad (30)$$

onde $K_0 = \hbar^2/(2mr_0^2)$, a_n e a_f são os parâmetros da densidade de níveis da condição de equilíbrio e do ponto de sela, respectivamente (VANDENBOSCH; HUIZENGA, 1973).

Sobre a produção de fragmentos, Brosa (BROSA; GROSSMANN; MÜLLER, 1990) propôs que, ao invés de uma barreira de fissão, cada nuclídeo possuiria uma sequência destas, acessíveis de acordo com a deformação nuclear no momento da cisão; já o instante (e a forma) da ruptura, seria aleatório.

É possível entender que:

- Quanto maior a energia cinética total ($\overline{TK\bar{E}}$) dos fragmentos, menor a deformação nuclear antes da ruptura: núcleos menos deformados dão origem a fragmentos muito próximos, aumentando a repulsão coulombiana e promovendo sua aceleração.
- A curva de produção de fragmentos em função da massa $Y(A)$ indica a assimetria (dois picos) ou simetria (um pico) do núcleo antes da ruptura.
- Os valores mais altos de multiplicidade de nêutrons ocorrem quando a forma nuclear é mais alongada; no caso de fissão simétrica, a multiplicidade aumenta em função do número de massa; e no caso de fissão assimétrica, é possível identificar o padrão de *dente de serra* devido ao efeito de camadas.

A existência de diferentes modos de fissão e a questão da simetria/assimetria da produção de fragmentos são abordadas em diversos trabalhos de fissão induzida por fótons (DAVID et al., 1972; DEMEKHINA; KARAPETYAN, 2008; DEMEKHINA; KARAPETYAN, 2010), prótons (CHUNG; HOGAN, 1981; CHUNG; HOGAN, 1982; DUIJVESTIJN et al., 1999; RUBCHENYA et al., 2001) e nêutrons (MASLOV, 2003) a energias intermediárias e altas.

2.1.1.4 Multifragmentação nuclear

Segundo o Modelo da Multifragmentação Estatística (BONDORF et al., 1995), núcleos com energia de excitação $E^* \gtrsim 3 \text{ MeV/A}$ apresentam fluxo contínuo de nucleons e fragmentos leves no processo de desexcitação. O intervalo de emissão é comparável ao tempo de relaxação (restauração do equilíbrio) do processo de evaporação, dominante para $E^* \sim 1 \text{ MeV/A}$, indicando a atuação de um regime distinto de desexcitação. Para $E^* \sim 5 - 8 \text{ MeV/A}$, pode ocorrer um processo ainda mais rápido: a desintegração nuclear com emissão de fragmentos nucleares de massa variável, conhecido como *multifragmentação nuclear*.

Os sistemas com energia de excitação elevada aqui considerados são peculiares na medida em que, nessas condições, há um grande número de graus de liberdade, tornando os parâmetros estatísticos mais relevantes que os dinâmicos no cálculo das probabilidades dos canais de decaimento.

O modelo de multifragmentação estatística engloba três etapas:

1. Formação de um sistema nuclear excitado intermediário;
2. Expansão do núcleo e formação dos fragmentos primários;
3. Desexcitação dos fragmentos primários.

A primeira etapa diz respeito ao processo que leva à excitação nuclear: reações induzidas por prótons a energias intermediárias e altas, colisão de íons pesados, reações com partículas alfa ou com dêuterons a energias relativísticas são alguns exemplos.

A segunda etapa é caracterizada pela expansão da matéria nuclear devido à pressão interna promovida pela excitação; dessa forma, a densidade de nucleons pode variar espacialmente, formando fissuras; a separação dos *pré-fragmentos* ou *fragmentos primários* ocorre quando essas fissuras atingem a distância do alcance da força nuclear (2-3 fm). Caso não haja pressão interna suficiente para provocar fissuras, o processo é revertido e a desexcitação ocorre por evaporação ou fissão.

Na terceira etapa, os fragmentos recém-formados movem-se sob influência da força coulombiana e perdem sua energia por evaporação ou por fragmentações secundárias.

Para o cálculo das principais grandezas ligadas à produção de fragmentos, utiliza-se uma abordagem termoestatística, de forma que:

- No ensemble microcanônico, são encontrados todos canais $\{f\}$ que satisfazem os vínculos do modelo (massa, carga, momento e energia totais).
- No ensemble canônico, são determinados os pesos estatísticos $\Delta\Gamma_f$ associados a cada canal f .
- No ensemble grande canônico, o valor médio das grandezas de interesse pode ser encontrado calculando médias ponderadas sobre todos os canais $\{f\}$.

Seja um núcleo (A_0, Z_0) com energia de excitação E_0 e volume V . Os fragmentos primários são esferas de raio $R_i = r_0 A_i^{1/3}$. Os parâmetros que descrevem o i -ésimo fragmento são: massa A_i , carga Z_i , momento linear \vec{p}_i , momento angular \vec{s}_i , energia de excitação ε_i e a posição \vec{r}_i , onde $1 \leq i \leq M$, sendo M o número total de fragmentos (incluindo nucleons).

O número total de nucleons e a carga total são conservados. É possível, ainda, associar uma temperatura T de equilíbrio à cada partição – o que determina a distribuição de momentos (distribuição de Maxwell). A energia total E_F é a soma das contribuições do estado fundamental $E_i^{g.s.}$, translacional, rotacional e de excitação interna de cada fragmento e da energia de interação entre os mesmos (o que corresponde aos termos coulombiano U_F^C e nuclear U_F^N):

$$E_F = \sum_{i=1}^M \left(E_i^{g.s.} + \frac{p_i^2}{2m_i} + \frac{s_i^2}{2I_i} + \varepsilon_i \right) + U_F^C + U_F^N \quad (31)$$

A função de partição \mathcal{Z}_f é dada por:

$$\mathcal{Z}_f(T, V) = \sum_{\{\vec{r}, \vec{p}, \varepsilon\}} \exp \left(-\frac{E_F}{T} \right) \quad (32)$$

a energia livre de Helmholtz F :

$$F = E - TS \quad , \quad F_f = -T \ln \mathcal{Z}_f \quad (33)$$

e a entropia S_f :

$$S_f = - \left(\frac{\partial F_f}{\partial T} \right)_{V, \{N_{AZ}\}} \quad , \quad S_f = \ln (\Delta\Gamma_f) \quad (34)$$

Como todos esses fatores termoestatísticos calculados, pode-se encontrar, para cada partição, as multiplicidades médias de fragmentos $\langle N_{A,Z} \rangle$, de isóbaros $\langle N_A \rangle$ e a distribuição de carga em função do número de massa $\langle Z_A \rangle$. Essas multiplicidades são utilizadas na amostragem dos fragmentos usando a técnica de Monte Carlo. A energia de

excitação dos fragmentos é amostrada com base na sua distribuição em função da temperatura de equilíbrio e na hipótese de equipartição de energia. Detalhes sobre os métodos de amostragem das principais grandezas utilizadas na multifragmentação estatística do núcleo podem ser encontrados em (BONDORF et al., 1995).

2.1.2 Reatores nucleares

2.1.2.1 Conceitos

O conceito de reatores ADS ganhou visibilidade no contexto do aumento da preocupação com os efeitos climáticos decorrentes do uso de combustíveis fósseis e consequente emissão de gases do efeito estufa. Além disso, outros fatores foram e continuam sendo relevantes ao se tratar da geração de energia nuclear: questões de aceitação pública (riscos de acidentes e segurança), de proliferação de armas nucleares e de sustentabilidade (preservação das reservas naturais de urânio e o impacto ambiental da deposição de rejeitos radioativos).

Rejeitos radioativos são materiais contaminados com radionuclídeos em concentrações ou atividade acima dos valores limites estabelecidos pelo órgão regulador, decorrentes de atividade humana, para os quais a reutilização é imprópria ou não prevista, e que deve ser gerenciado de forma a preservar a vida e o meio ambiente (CNEN, 2015; IAEA, 2003).

Reatores nucleares de potência atuais operam no estado críticos, ou seja, exploram a reação em cadeia da fissão do ^{235}U de forma controlada e autossustentável. A moderação da energia dos nêutrons mais usual é aquela realizada por água leve (*LWR – Light Water Reactors*); os projetos mais comuns são os de água pressurizada (*PWR – Pressurized Water Reactor*) e os de água em ebulição (*BWR – Boiling Water Reactor*).

O combustível nuclear dos reatores LWR é composto de urânio enriquecido em ^{235}U . Esse enriquecimento é variável, porém baixo ($\sim 3 - 5\%$).

Existem dois ciclos de combustível nuclear:

- *Aberto*: aquele no qual o combustível queimado é armazenado para decaimento e, em seguida, tratado como rejeito, sendo eventualmente depositado em repositórios geológicos profundos.

- *Fechado*: utilizado por França e Japão, é aquele no qual há reprocessamento do combustível queimado, ou seja, há recuperação de plutônio e urânio (e outros radionuclídeos de interesse comercial) para reutilização em combustíveis mistos (*MOX – mixed oxide fuel*).

No cenário em que a energia nuclear se torna atrativa, o aumento do número de reatores implicaria em uma demanda ainda maior por soluções para as questões levantadas anteriormente, em especial aquelas relativas à sustentabilidade da prática ([NIFENECKER et al., 2001](#)).

Três vias mostram-se pertinentes:

- Redução do volume e da radiotoxicidade dos rejeitos da indústria nuclear;
- Combustíveis alternativos.
- Segurança inerente.

2.1.2.2 Física de reatores

A interação de nêutrons com a matéria ocorre por: espalhamentos elástico e inelástico, captura radioativa, emissão de partículas carregadas e de nêutrons e fissão ([LAMARSH, 1966](#); [LAMARSH, 1975](#); [DUDERSTADT](#); [HAMILTON, 1976](#)).

O balanço do fluxo de nêutrons φ – em função da posição \vec{r} , da energia E , do versor da direção de movimento $\hat{\Omega}$ e do tempo t – em uma região de um reator nuclear é dada pela equação de transporte de Boltzmann ([CARLUCCIO, 2011](#)):

$$\begin{aligned} \frac{1}{v(E)} \frac{\partial \varphi(\vec{r}, E, \hat{\Omega}, t)}{\partial t} = & -\hat{\Omega} \cdot \nabla \varphi(\vec{r}, E, \hat{\Omega}, t) - \Sigma_t(\vec{r}, E, t) \varphi(\vec{r}, E, \hat{\Omega}, t) + \\ & + \int_{4\pi} d\Omega' \int_0^\infty dE' \Sigma_s(\vec{r}, E' \rightarrow E, \hat{\Omega}' \rightarrow \hat{\Omega}, t) \varphi(\vec{r}, E', \hat{\Omega}', t) + \\ & + \frac{\chi(\vec{r}, E)}{4\pi} \int_{4\pi} d\Omega' \int_0^\infty dE' \nu \Sigma_f(\vec{r}, E', t) \varphi(\vec{r}, E', \hat{\Omega}', t) + \\ & + \frac{S(\vec{r}, E, \hat{\Omega}, t)}{4\pi} \end{aligned} \quad (35)$$

onde $v(E)$ é a velocidade dos nêutrons, $\Sigma_t(\vec{r}, E, t)$ é a seção de choque macroscópica total, $\Sigma_s(\vec{r}, E' \rightarrow E, \hat{\Omega}' \rightarrow \hat{\Omega}, t)$ é a seção de choque de transferência por espalhamento, $\chi(\vec{r}, E)$ é distribuição (espectro) de energia dos nêutrons de fissão, ν é o número médio

de nêutrons liberados por fissão, $\Sigma_f(\vec{r}, E, t)$ é a seção de choque macroscópica de fissão e $S(\vec{r}, E, \hat{\Omega}, t)$ é a fonte externa de nêutrons.

O *fator efetivo de multiplicação* – k ou k_{eff} – é o número total de nêutrons de fissão produzidos, em média, por cada nêutron rápido oriundo de uma fissão prévia (STACEY, 2007). Ele é afetado pelos materiais presentes no reator – na medida em que variações na composição alteram as seções de choque de fissão – e pela geometria – que determina a distribuição espacial dos nêutrons produzidos. Dessa forma, pode-se dizer que k é a razão entre a produção (taxa de fissão) e as perdas (soma das taxas de absorção e de escape) de nêutrons.

O fator k reflete o comportamento da população de nêutrons no meio multiplicativo: em um sistema *crítico*, a produção de ($k = 1$) o número de nêutrons mantém-se constante; em um sistema *supercrítico* ($k > 1$), ele aumenta; e em um sistema *subcrítico* ($k < 1$), ele diminui.

2.1.2.3 Reator ADS

Um reator nuclear é um arranjo ótimo de materiais e geometria: uma alteração em seu combustível acarretaria modificações importantes de projeto e operação. Um reator convencional é projetado para ser levemente supercrítico e as flutuações de reatividade são administradas com o uso de *barras de controle* – feitas a partir de materiais absorvedores de nêutrons, como boro, cádmio, prata e índio. Já um reator subcrítico, por ser incapaz de sustentar a reação em cadeia, não requer barras de controle – evitando, dessa forma, toda uma classe de acidentes (como aqueles relacionados à excursão de criticalidade). Contudo, para que haja queima do combustível, é necessário fornecer nêutrons ao sistema.

As principais propostas de reatores híbridos subcríticos foram as de Rubbia (CARMINATI et al., 1993; RUBBIA et al., 1995) e Bowman (BOWMAN et al., 1992): ambos sugeriram o uso de fontes de *spallation* (chumbo líquido) acoplados a reatores subcríticos; enquanto o primeiro propôs um reator rápido utilizando combustível sólido e refrigerado por metal líquido, o segundo propôs um reator térmico de fluxo elevado que utilizava combustível líquido composto por elementos físseis dissolvidos em sal fundido.

Duas aplicações desses reatores híbridos seriam possíveis:

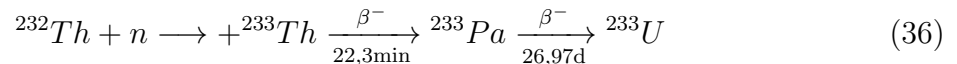
- Transmutação de rejeitos radioativos;

- Utilização do ^{232}Th como combustível nuclear.

A transmutação implica em alterar as características de um radionuclídeo através de reações nucleares. No contexto de redução de rejeitos de longa vida, a fissão induzida por nêutrons promove a *incineração* de elementos transurânicos; por sua vez, os produtos de fissão podem ser convertidos em núclídeos estáveis ou de meia-vida relativamente menor por absorção de um ou mais nêutrons e eventuais decaimentos, com emissão de radiação.

Associado à transmutação, está o conceito de *partição*, que é a separação química dos elementos de interesse para aumentar sua concentração, promover melhor economia de nêutrons durante a irradiação e minimizar a produção de rejeitos secundários.

O uso do tório como combustível nuclear é de grande interesse, pois é um elemento muito mais abundante que o urânio, encontrado com frequência em areias litorâneas na forma da monazita. Trata-se de um elemento fértil, ou seja, dá origem a um isótopo fissil através da reação:



Nota-se que a produção de ^{233}Pa é rápida (22,3 minutos) e que este, por sua vez, decai para o ^{233}U , que é fissil, com meia-vida de aproximadamente 27 dias. Assim, a produção de elementos com $A > 238$ é minimizada no processo de conversão do tório, gerando rejeitos de menor radiotoxicidade quando comparada à do ciclo do urânio.

Reatores ADS também possuem o potencial de produzir combustível nuclear por *regeneração* ou *breeding* – que consiste na formação de ^{233}U e de ^{239}Pu a partir da irradiação do ^{232}Th e do ^{238}U , respectivamente.

2.2 Materiais e métodos

2.2.1 Métodos de Monte Carlo

O método de Monte Carlo é um cálculo numérico que emprega números aleatórios para amostrar eventos de um *processo estocástico* – que é uma sequência de estados cuja evolução é determinada por eventos aleatórios (KALOS; WHITLOCK, 2008).

Durante a Segunda Guerra Mundial, o surgimento do computador eletrônico permitiu o desenvolvimento das técnicas estatística que receberam o nome de Monte Carlo em alusão aos jogos de azar praticados nos cassinos do famoso distrito de Mônaco. Sua

principal aplicação era no estudo do transporte de radiação e sua interação com a matéria: em especial, o estudo da difusão e multiplicação de nêutrons – iniciado por Enrico Fermi nos anos 30 – sofreu avanços significativos a partir dos trabalhos de von Neumann, Ulam e Metropolis (ULAM; NEUMANN, 1947; METROPOLIS; ULAM, 1949). Com o crescente aumento do poder de computação e refinamento dos códigos desde então, tais métodos tornaram-se ferramentas poderosas em diversos campos do conhecimento além da Física, como, por exemplo, Medicina, Biologia e Economia (LANDAU; BINDER, 2009).

No caso de uma simulação, a amostragem consiste no sorteio de valores aleatórios para uma ou mais grandezas de interesse cujas distribuições de frequência são determinadas pela *função densidade de probabilidade*, ou *pdf* – que é a função que associa probabilidades aos eventos do processo estudado. O uso de algoritmos geradores de *números pseudo-aleatórios* – que representam os números aleatórios para o número de eventos considerados e empregados por questões práticas – uniformemente distribuídos garante a imprevisibilidade requerida (METROPOLIS; ULAM, 1949). Após um número grande de eventos simulados, obtém-se a estimativa da grandeza através dos valores médios.

Uma *variável aleatória* X é uma função do espaço amostral Ω em \mathbb{R} de um fenômeno aleatório para a qual é possível calcular a probabilidade de ocorrência de seus valores, ou seja, existe uma *pdf* associada (MAGALHÃES, 2006).

No caso de ser *discreta*, a variável aleatória assume apenas um número enumerável de valores $E_i \in \Omega$; a probabilidade $p_i = P\{E_i\}$ é tal que:

$$\sum_i p_i = 1 \quad (37)$$

e

$$0 \leq p_i \leq 1, \forall i = 1, 2, \dots \quad (38)$$

A variável aleatória é *contínua* se existir uma *pdf* $f(x)$ tal que sua *função probabilidade cumulativa* ou *cdf* – *cumulative density function* – $F(x) = P\{X \leq x\}$ possa ser escrita como:

$$F(x) = P\{X \leq x\} = \int_{-\infty}^x f(x') dx', \forall x \in \mathbb{R} \quad (39)$$

Além disso:

$$F(\infty) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(x)dx = 1 \quad (40)$$

A probabilidade da variável estar em um intervalo $[a, b] \subset \mathbb{R}$ é dada por:

$$P\{a \leq X \leq b\} = \int_a^b f(x)dx = F(b) - F(a) \quad (41)$$

O *valor esperado* ou *esperança* μ de uma variável aleatória é, no caso discreto:

$$E(X) = \sum_i P\{X = x_i\}x_i = \sum_i p_i x_i = \mu_X \quad (42)$$

e, no caso contínuo:

$$E(X) = \int_{-\infty}^{+\infty} x f(x)dx = \mu_X \quad (43)$$

desde que esse valor exista ([MAGALHÃES, 2006](#)).

Segundo a *Lei dos Grandes Números* ([KALOS; WHITLOCK, 2008](#)), supondo um número N suficientemente grande de variáveis aleatórias independentes e identicamente distribuídas, $\{X_1, X_2, \dots, X_N\}$, cujo valor esperado de cada X_i é μ , a média \bar{X}_N :

$$\bar{X}_N = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N X_i \quad (44)$$

aproxima-se de μ com probabilidade 1, ou seja:

$$P\{\lim_{N \rightarrow \infty} \bar{X}_N = \mu\} = 1 \quad (45)$$

Nesse caso, portanto, pode-se utilizar a média das amostras como valor representativo do comportamento probabilístico da variável aleatória.

Nas simulações com códigos de Monte Carlo, é necessário amostrar variáveis aleatórias de acordo com suas respectivas *pdf's*. Para generalizar a amostragem, utilizam-se números aleatórios uniformemente distribuídos em um intervalo $I = [0, 1]$ e que, posteriormente, serão relacionados às *pdf's* e *cdf's* de cada caso estudado.

Um aspecto relevante é a taxa de geração desses números aleatórios: fenômenos físicos de natureza estocástica – decaimentos radioativos e ruído eletrônico, por exemplo – são fontes de números aleatórios, mas não suprem a demanda de uma simulação computacional. Daí a necessidade de se empregar os números pseudo-aleatórios: são gerados a altas taxas a

partir de algoritmos determinísticos, mas que satisfazem os requisitos de imprevisibilidade e de distribuição uniforme no intervalo I para sequências suficientemente longas.

Uma distribuição uniforme discreta implica em todos os valores possíveis da variável aleatória serem equiprováveis:

$$P\{X = x_i\} = p_i = 1/k; i = 1, 2, \dots, k. \quad (46)$$

Já no caso contínuo, uma distribuição uniforme em um intervalo $I = [a, b] \subset \mathbb{R}$ significa que todos os sub-intervalos de $[a, b]$ de mesmo comprimento possuem a mesma probabilidade, e sua *pdf* é dada por (MAGALHÃES, 2006):

$$f(x) = \frac{1}{b-a} \quad (47)$$

Existem diversas técnicas de amostragem, sendo que duas delas são amplamente empregadas: a da inversão e a da rejeição.

Técnica da inversão: seja $f(x)$ a *pdf* e $F(x)$ a *cdf* de um processo; e ξ um número aleatório gerado por uma distribuição uniforme em $[0, 1]$. A amostragem de x é tal que $x = F^{-1}(\xi)$, desde que F^{-1} possa ser determinada.

Técnica da rejeição: seja $f(x)$ a *pdf* de um processo cuja *cdf* $F(x)$ não possa ser definida. Pode-se utilizar uma função $Ch(x) \geq f(x)$, $\forall x$, com $C > 1$ e $\int_{-\infty}^{+\infty} h(x)dx = 1$.

- Inicialmente, amostra-se x a partir de $h(x)$ com o número aleatório ξ_1 :

$$x = h^{-1}(\xi_1)$$

- Realiza-se o teste com x e um segundo número aleatório ξ_2 :

$$\xi_2 Ch(x) \leq f(x)$$

Se o teste for verdadeiro, x é aceito; caso contrário, é descartado.

2.2.2 CRISP

O CRISP – *Colaboração Rio-Ilhéus-São Paulo* – é um modelo Monte Carlo escrito em C++ que simula reações nucleares a energias intermediárias e altas (entre 40 MeV e 4 GeV) iniciadas por prótons (ANDRADE-II et al., 2011; DEPPMAN et al., 2012; DEPPMAN et al., 2013a; DEPPMAN et al., 2013b), fótons (DEPPMAN et al., 2001; DEPPMAN et al., 2004; DEPPMAN et al., 2006; ANDRADE-II et al., 2011; DEPPMAN et al., 2012; DEPPMAN et al., 2013c; DEPPMAN et al., 2015) ou híperons. O CRISP também tem sido utilizado no estudo

de reatores ADS (ANÉFALOS et al., 2005b; ANÉFALOS et al., 2005a; ANÉFALOS et al., 2008; MONGELLI et al., 2005).

Atualmente, é composto por módulos que simulam diferentes etapas da reação: o *MCMC* (cascata intranuclear), o *MCEF* (processo competitivo evaporação-fissão), o *Multimode_Fission* (produção de fragmentos de fissão), o *MCMM* (multifragmentação nuclear – em fase de desenvolvimento) e *Langevin* (abordagem alternativa do processo de competição evaporação-fissão).

Neste trabalho, foram utilizados os módulos MCMC, MCEF e Multimode_Fission.

2.2.2.1 MCMC

No CRISP, o módulo *MCMC* (*Multi-Collisional Monte Carlo*) é aquele que simula a cascata intranuclear, que é a fase rápida da reação nuclear a energias intermediárias e altas.

O modelo utiliza uma abordagem multicolisional, ou seja, todas as colisões, reflexões e emissões de pré-equilíbrio são consideradas na evolução da reação.

Uma das hipóteses primordiais dos modelos de cascata intranuclear é a de que apenas colisões binárias podem acontecer, e de que uma interação deve terminar antes que outra ocorra. Além disso, considera-se que as partículas movem-se em linha reta e em trajetórias clássicas, com comprimento de onda de de Broglie λ pequeno em relação ao alcance efetivo das interações nucleares r_{eff} , ou seja:

$$\lambda \ll r_{eff} \leq v\tau \ll d \quad (48)$$

sendo v e d , respectivamente, a velocidade e a distância relativas, e τ , o tempo de interação entre as partículas.

Como consequência de (48), a aproximação pelo modelo de cascata é adequado às interações nucleon-nucleon com energia cinética da ordem de 250 MeV; abaixo de 100 MeV, o princípio de exclusão de Pauli torna-se mais relevante (RODRIGUES, 2005).

O CRISP constrói o estado fundamental de um núcleo com A nucleons (Z prótons e N nêutrons) distribuindo os momentos dos nucleons de acordo com o modelo de gás de Fermi, incluindo os graus de liberdade de spin. Supõe-se nucleons não-interagentes entre si, distribuídos uniformemente em um volume esférico $\Omega = \frac{4\pi}{3}r_0^3A$.

No caso de núcleos pesados, as energias de Fermi para prótons e nêutrons são dadas por:

$$\varepsilon_F^p = \frac{1}{2m_p}(3\pi)^{2/3} \left(\frac{Z}{\Omega}\right)^{2/3}, \quad \varepsilon_F^n = \frac{1}{2m_n}(3\pi)^{2/3} \left(\frac{A-Z}{\Omega}\right)^{2/3} \quad (49)$$

O potencial nuclear é considerado como do tipo poço quadrado, de magnitude:

$$V = V_0 = \varepsilon_F + B \quad (50)$$

sendo $B \sim 7$ MeV a energia de ligação – determinada a partir de dados experimentais.

Para prótons, a barreira coulombiana V_C é dada por:

$$V_C = \frac{e^2 Z_1 Z_2}{r_{max}} \quad (51)$$

onde $r_{max} = r_0 A^{1/3}$, $r_0 = 1,18$ fm, Z_1 e Z_2 os números atômicos do projétil e do alvo.

A probabilidade de tunelamento através da barreira de fissão é levada em conta utilizando a aproximação WKB ([MEDINA, 2014](#))

O CRISP também utiliza o bloqueio de Pauli em sua dinâmica, ou seja, verifica, de todas as interações secundárias ou decaimentos possíveis, se aquela que ocorreria no menor intervalo de tempo levaria a um estado final cuja configuração de momentos fosse válida: se sim, a interação é realizada; caso contrário, ela é bloqueada e é escolhido o próximo intervalo de tempo para novo teste.

Emissões de pré-equilíbrio são permitidas todas as vezes em que a partícula tiver energia cinética para transpor o potencial nuclear, de acordo com a conservação de energia e momento.

Quando nenhuma partícula puder ser emitida, é dito que o sistema atingiu o equilíbrio. A energia de excitação do núcleo remanescente é o resultado do balanço energético entre a energia da partícula incidente e a soma das energias – cinéticas e de ligação – das partículas emitidas no pré-equilíbrio. Nesse ponto, ocorre a termalização do sistema, que é a distribuição da energia de excitação entre os nucleons.

2.2.2.2 MCEF

A etapa lenta da reação nuclear – a competição entre evaporação e fissão – então, tem início após a termalização do núcleo remanescente é governada por eventos aleatórios

com base nas probabilidades de emissão de partículas e na de fissão. O MCEF (*Monte Carlo for Evaporation-Fission*) é o módulo do CRISP responsável por simular tal processo de desexcitação nuclear (DEPPMAN et al., 2002; DEPPMAN et al., 2012).

A simulação tem início com o sorteio de um evento k – emissão de nêutron, próton ou partícula alfa, ou fissão – utilizando números aleatórios com base nas suas probabilidades. Logo, para um núcleo (A, Z, E) , a probabilidade de ocorrência de um evento k é dada por:

$$P_k = \frac{\Gamma_k}{\Gamma_n + \Gamma_p + \Gamma_\alpha + \Gamma_f} \quad (52)$$

onde Γ_p é a largura de emissão de prótons e Γ_α é a largura de emissão de partículas alfa, relativas à de emissão de nêutrons Γ_n , com base no modelo de evaporação de Weisskopf; a probabilidade de fissão Γ_f , dada pelo modelo de fissão de Bohr e Wheeler, também é levada em conta:

$$\frac{\Gamma_p}{\Gamma_n} = \frac{E_p}{E_n} \exp \left\{ 2 \left[(a_p E_p)^{1/2} - (a_n E_n)^{1/2} \right] \right\} \quad (53)$$

$$\frac{\Gamma_\alpha}{\Gamma_n} = \frac{2E_\alpha}{E_n} \exp \left\{ 2 \left[(a_\alpha E_\alpha)^{1/2} - (a_n E_n)^{1/2} \right] \right\} \quad (54)$$

$$\frac{\Gamma_f}{\Gamma_n} = K_f \exp \left\{ 2 \left[(a_f E_f)^{1/2} - (a_n E_n)^{1/2} \right] \right\} \quad (55)$$

onde:

$$K_f = K_0 a_n \frac{[2(a_f E_f)^{1/2} - 1]}{(4A^{2/3} a_f E_n)} \quad , \quad K_0 = \frac{\hbar}{2m_n r_0^2} \quad , \quad r_0^2 = 1, 2 \text{ fm} \quad (56)$$

a_n , a_p e a_α são parâmetros da densidade de níveis obtidas pelas fórmulas empíricas de Dostrovsky (DOSTROVSKY; RABINOWITZ; BIVINS, 1958):

$$\begin{aligned} a_n &= \frac{A}{a_1} \left(1 - a_2 \frac{A - 2Z}{A^2} \right)^2 \\ a_p &= \frac{A}{a_3} \left(1 - a_4 \frac{A - 2Z}{A^2} \right)^2 \\ a_\alpha &= \frac{A}{a_5} \left(1 - \frac{a_6}{Z} \right)^2 \end{aligned} \quad (57)$$

com os parâmetros ajustáveis a_1 , a_2 , a_3 , a_4 , a_5 e a_6 . Para a fissão, $a_f = r_f a_n$, r_f dependente de Z^2/A .

As energias são dadas por:

$$\begin{aligned} E_n &= E - B_n & E_\alpha &= E - B_\alpha - V_\alpha \\ E_p &= E - B_p - V_p & E_f &= E - B_f \end{aligned} \quad (58)$$

onde B_n , B_p e B_α são energias de ligação de nêutrons, prótons e partículas alfa, respectivamente. B_f é a barreira de fissão calculada de acordo com o modelo de Nix (NIX, 1972; ANDRADE-II, 2012).

Os potenciais coulombianos para prótons e partículas alfa são:

$$V_p = C \frac{K_p(Z-1)e^2}{r_0(A-1)^{1/3} + R_p}, \quad V_\alpha = C \frac{2K_\alpha(Z-2)e^2}{r_0(A-4)^{1/3} + R_\alpha} \quad (59)$$

onde $K_p = 0,70$ e $K_\alpha = 0,83$ são as penetrabilidades de barreira coulombiana; $R_p = 1,14$ fm é o raio do prótons e $R_\alpha = 2,16$ fm é o raio da partícula alfa; C é a correção de barreira para partículas carregadas, dada por:

$$C = 1 - \frac{E}{B} \quad (60)$$

onde B é a energia de ligação nuclear. Mais detalhes dos parâmetros relevantes para o MCEF encontram-se em (ANDRADE-II, 2012).

Para cada simulação, são calculadas as probabilidades citadas acima; a evaporação ocorre até que o núcleo não possua energia suficiente para emitir nenhuma partícula, ou se ocorrer fissão. Neste último caso, a fissilidade W é computada:

$$W = \sum_i \left[\prod_{j=0}^{i-1} (1 - F_j) \right] F_i \quad (61)$$

onde F_k é a probabilidade de fissão no passo k .

No caso da evaporação, os dados armazenados são as características dos núcleos residuais (aqueles que perderam sua energia de excitação apenas por evaporação) – a massa A e o número atômico Z – e multiplicidade das partículas consideradas (n , p e α).

No caso de fissão, os dados armazenados são as características do núcleo fissionante (massa A , número atômico Z e energia de excitação E^*) e a multiplicidade das partículas consideradas (n , p e α) que evaporaram antes da fissão e a fissilidade.

2.2.2.3 Mutimodal-Fission

No CRISP, o módulo *Mutimodal-Fission* é responsável por simular a formação de fragmentos de fissão(ANDRADE-II, 2012); os dados de entrada são o arquivo com as

informações das fissões simuladas com o *MCEF* e os parâmetros do ajuste dos dados experimentais de distribuição de massa dos fragmentos em gaussianas de acordo com os modos de fissão admitidos no modelo.

Brosa (BROSA; GROSSMANN; MÜLLER, 1990) propôs múltiplos modos de fissão. Três modos de fissão são identificados: simétrico (*Superlong – SL*), assimétrico I (*Standard I – S1*) e assimétrico II (*Standard II – S2*).

No caso *SL*, o sistema fissionante possui uma forma extremamente alongada, com um longo pescoço unindo os dois futuros fragmentos; no *S1*, há influência das camadas fechadas $Z^H \sim 50$ e $N^H \sim 82$; no *S2*, a influência é da camada deformada $N^H = 86 - 88$ e $Z^H \sim 52$; o índice H indica o fragmento mais pesado (massa $M^H \sim 138 - 140$).

Devido a evidências experimentais, Brosa indicou a possibilidade de outros modos de fissão. No CRISP, foi implementado o modo superassimétrico *Standard III – S3*, em que há produção de fragmentos ainda mais pesados ($160 < A^H < 200$) (DEPPMAN et al., 2013b). Neste trabalho, esse modo não foi utilizado.

A seção de choque de fissão em função da massa A e da carga Z do núcleo fissionante é dada por:

$$\sigma(A, Z) = \left\{ \sum_{i=1,2} \left[\frac{K_i^L}{\sqrt{2\pi}\Gamma_i^L} \exp\left(-\frac{(A - A_i^L)^2}{2(\Gamma_i^L)^2}\right) + \frac{K_i^H}{\sqrt{2\pi}\Gamma_i^H} \exp\left(-\frac{(A - A_i^H)^2}{2(\Gamma_i^H)^2}\right) \right] + \frac{K_S}{\sqrt{2\pi}\Gamma_S} \exp\left(-\frac{(A - A_S)^2}{2\Gamma_S^2}\right) \right\} \times \frac{1}{\sqrt{\pi}\Gamma_Z} \exp\left(-\frac{(Z - Z_f)^2}{\Gamma_Z^2}\right) \quad (62)$$

com o índice S indicando o modo simétrico, i indicando os modos assimétricos *S1* e *S2*, com H para o fragmento mais pesado e L para o fragmento mais leve.

$K_i^{H(L)}$, $A_i^{H(L)}$ e $\Gamma_i^{H(L)}$ são parâmetros da distribuição gaussiana dos modos assimétricos ($i = 1, 2$), enquanto K_S , A_S e Γ_S são os parâmetros do modo simétrico. Considera-se as restrições $\Gamma_i^L = \Gamma_i^H$, $\Gamma_i^L = \Gamma_i^H$ e $A_i^L = 2A_S - A_i^H$.

Z_f é o número atômico mais provável:

$$Z_f = \mu_1 + \mu_2 A \quad (63)$$

e Γ_Z , a largura da distribuição do número atômico:

$$\Gamma_Z = \nu_1 + \nu_2 A \quad (64)$$

μ_i e ν_i são parâmetros de ajustes.

A massa do fragmento mais pesado A^H é amostrada de acordo com a probabilidade:

$$p(A) = \sum_i \frac{p_i}{\sqrt{2\pi}\Gamma_i} \exp\left[-\frac{(A - A_i)^2}{2\Gamma_i^2}\right] \quad (65)$$

onde p_i é a probabilidade de fissão no i -ésimo modo, dada por:

$$p_i = \frac{K_i}{\sum_i K_i} \quad (66)$$

A carga do fragmento mais pesado Z^H é sorteada de acordo com a distribuição de probabilidade:

$$p(Z) = \frac{1}{\sqrt{\pi}\Gamma_Z} \exp\left[-\frac{(Z - Z_f)^2}{\Gamma_Z^2}\right] \quad (67)$$

O fragmento mais leve é dado por $A^L = A - A^H$ e $Z^L = Z - Z^H$.

A energia de excitação dos fragmentos é calculada com base na conservação de energia do processo de fissão e a divisão é feita proporcionalmente à massa do fragmento (ANDRADE-II, 2012). Após cisão, os fragmentos perdem essa energia de excitação por evaporação.

2.2.3 MCNP

O MCNP – *Monte Carlo N-Particle* – é um código Monte Carlo bastante difundido no estudo de transporte de radiação na matéria desenvolvido pelo LANL (Los Alamos National Laboratory) (LANL, 2016).

Em análise de reatores nucleares, o MCNP resolve a equação de transporte de nêutrons considerando suas interações com a matéria (espalhamento elástico, espalhamento inelástico, captura radioativa, emissão de nêutrons e fissão).

Seu arquivo de entrada contém a geometria, os materiais, as fontes de nêutrons e os tipos de cálculos na forma de *cartões* (blocos de códigos e instruções). Dados nucleares (como as seções de choque das reações) são lidos a partir de bibliotecas nucleares (como a ENDF – *Evaluated Nuclear Data File*).

O resultado das simulações (*tallies*) estão na forma de correntes e fluxos de nêutrons e taxas de reações calculados em uma região (superfície ou volume) do espaço. Esses dados podem ser utilizados para calcular outros parâmetros relevantes em um reator.

A evolução isotópica do combustível nuclear durante sua queima (depleção) pode ser calculada com a versão MCNPX ou com códigos externos, como o Serpent (SERPENT, 2016), que resolvam as equações de Bateman do decaimento radioativo (CETNAR, 2006).

O MCNP/MCNPX é amplamente utilizado no estudo de reatores ADS, como visto em (PEREIRA, 2002; CARLUCCIO, 2011; ROSSI, 2011; BERDEGUEZ, 2012; BARROS et al., 2010; BARROS et al., 2015; YAMAMOTO; SHIROYA, 2003a; YAMAMOTO; SHIROYA, 2003b; KIM et al., 2016).

2.2.4 ROOT

ROOT (CERN, 2016), desenvolvido pelo CERN, é uma plataforma científica modular, orientada a objetos, escrita em C++ e que fornece ferramentas de análise e tratamento de grandes volumes de dados. É empregado em diversas áreas, em especial em física de partículas.

O CRISP utiliza bibliotecas do ROOT para realizar a simulação, gerar gráficos e armazenar dados.

Todas as análises deste trabalho foram realizadas com o ROOT v5.34.28.

2.2.5 Descrição do método

Inicialmente, foram feitos três estudos preliminares utilizando o modelo CRISP (versão disponível em Janeiro/2015) com base em artigos ligados às reações em questão:

- Estudo da relação entre multiplicidade de nêutrons e evaporação, com base na referência (LERAY et al., 2002).
- Estudos da relação entre multiplicidade de nêutrons e fissão, com base na referência (CHUNG; HOGAN, 1981).
- Estudo da produção de resíduos de *spallation*, com base na referência (ENQVIST et al., 2001).

A reação escolhida para análise foi $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$. Utilizou-se o modelo CRISP (versão disponível em Janeiro/2016) para estudar tal reação e conhecer os parâmetros relevantes da produção de nêutrons (multiplicidade, energia e distribuição angular) e as características dos fragmentos produzidos.

Por último, foi simulado um reator ADS com o código MCNP5/MCNPX para estudo do acoplamento entre a fonte de *spallation* e o meio multiplicativo subcrítico:

- Uma simulação prévia utilizando o MCNP5-1.60 e o código Serpent v.2.1.23 foi realizada para determinação da composição isotópica característica do combustível nuclear queimado em reatores de potência do tipo PWR.
- A fonte de *spallation* apresentava distribuição de nêutrons isotrópica, com espectro de energia de evaporação (Weisskopf).
- O reator ADS escolhido foi simulado com os códigos MCNP5/MCNPX e Serpent;

2.3 Resultados e Discussão

2.3.1 Estudo das reações nucleares

2.3.1.1 Estudo da relação entre multiplicidade de nêutrons e evaporação.

Os estudos das reações nucleares foram iniciados com base no artigo de (LERAY *et al.*, 2011), que descreve o estudo experimental da multiplicidade de nêutrons para a reação de próton e alvos de Al, Fe, Zr, W, Pb e Th – materiais que poderão ser utilizados como alvo ou estrutura de um reator ADS. A energia representativa escolhida foi 1,2 GeV; para o Pb e o Fe, ainda foram realizados experimentos para as energias 0,8 GeV e 1,6 GeV.

O núcleo de ^{208}Pb foi escolhido para as primeiras análises por ser um alvo já utilizado em fontes de *spallation*, como o SINC (PSI, 2015), na Suíça, e, também, porque a liga de Pb-Bi eutético na forma líquida foi o material escolhido para sistemas acionados por aceleradores em desenvolvimento, como o TEF-T (J-PARC, 2015), no Japão, e o reator MYRRHA (SCK·CEN, 2015), na Bélgica. Dados experimentais e de simulações realizadas com diversos códigos estão disponíveis no portal da AIEA – Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 2015).

No artigo, a multiplicidade de nêutrons é obtida através de interpolação entre as curvas de seção de choque duplamente diferencial, integração sobre 4π e divisão pela seção de choque da reação de evaporação.

No estudo de *spallation*, é comum definir duas categorias:

- Nêutrons de baixas energias ($E_n < 20$ MeV): faixa de energia característica das emissões da evaporação;

- Nêutrons de altas energias ($E_n \geq 20$ MeV): faixa de energia característica das emissões da cascata intranuclear.

Dessa forma, pôde-se estimar experimentalmente a multiplicidade de cada etapa da reação. Nêutrons de energias ainda mais baixas (entre 0 e 2 MeV) não foram medidos devido às limitações dos detectores.

A Figura 1 apresenta a comparação entre os dados experimentais e aqueles obtidos por simulação (pelo CRISP neste trabalho e em trabalho anterior (ANÉFALOS et al., 2005b), pelo código INCL4 e pelo código LAHET) da multiplicidade de nêutrons para as faixas de energia (a) de 2 a 20 MeV e (b) de 20 à energia máxima E_{max} em MeV.

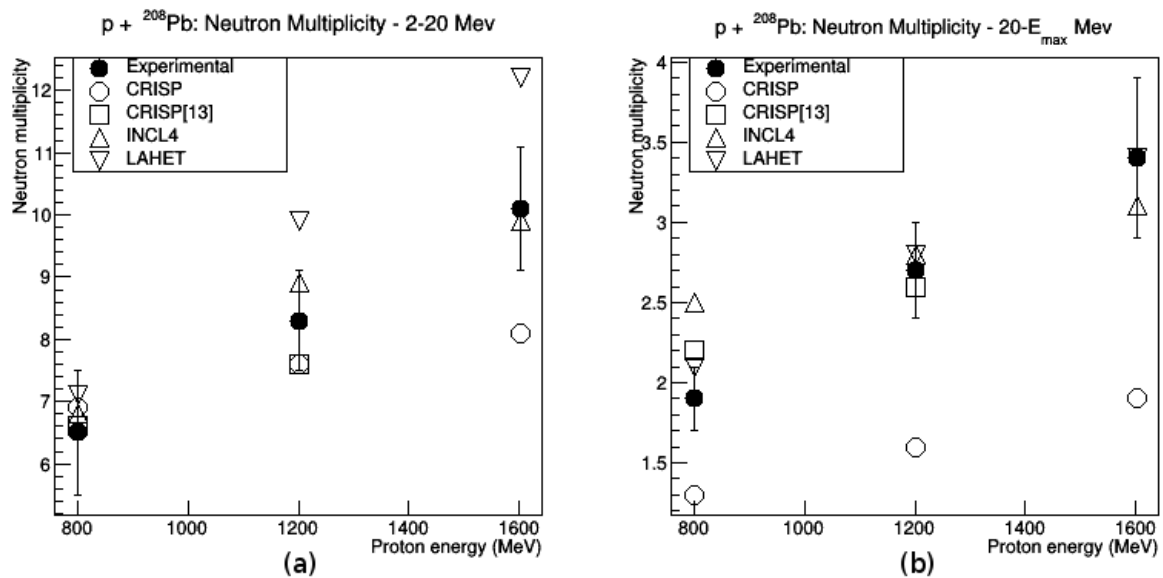


Figura 1 – Multiplicidade de nêutrons para duas faixas de energia: (a) 2-20 MeV e (b) 20- E_{max} MeV. A reação é $p + {}^{208}\text{Pb}$ para três energias de incidência: 800 MeV, 1200 MeV e 1600 MeV. Comparação entre o valor experimental (●), o CRISP – este trabalho (○) e trabalho anterior (□) (ANÉFALOS et al., 2005b) – e os códigos INCL4 (△) e LAHET(▽).

O resultado preliminar indica que a emissão de nêutrons de altas energias (acima de 20 MeV), cuja origem é a cascata intranuclear, está sendo subestimado. O CRISP foi capaz de prever satisfatoriamente a multiplicidade para a faixa de energia 2-20 MeV cuja origem é principalmente a etapa da evaporação, com exceção daquela para 1600 MeV.

2.3.1.2 Estudos da relação da multiplicidade de nêutrons e a fissão.

Para o estudo da multiplicidade de nêutrons, iniciou-se uma investigação da produção de nêutrons relacionada com as propriedades nucleares do ^{232}Th com base no artigo de (CHUNG; HOGAN, 1981).

O modelo proposto pelos autores sugeria que o aumento da energia de excitação pudesse abrir diferentes canais de fissão por meio da evaporação de partículas: se houvesse apenas um modo de fissão, ela poderia ser simétrica ou assimétrica, mas não ambas; no caso de dois modos de fissão, as fissões simétrica e assimétrica competiriam entre si.

No primeiro estudo, os núclídeos foram classificados com base em um valor crítico para o parâmetro de fissilidade $(Z^2/A)_{A/S}$:

$$\left(\frac{Z^2}{A}\right)_{A/S} = 36 + \frac{1}{2}(Z - 91) \quad (68)$$

onde:

- $(Z^2/A) < (Z^2/A)_{A/S}$: o núclídeo fissionaria assimetricamente;
- $(Z^2/A) > (Z^2/A)_{A/S}$: o núclídeo fissionaria simetricamente;

A curva de seção de choque de produção de fragmentos em função da massa ($Yield$ $Y(A)$), obtida da literatura, foi decomposta nas componentes simétrica e assimétrica, mostrando que o modelo era pertinente.

Outro estudo levou em consideração a dispersão de carga Z com base em três postulados existentes, um baseado na comparação da fissão de núcleos isobáricos (ECD), outro que considerava a repulsão coulombiana (MPE) e um terceiro que propunha que os fragmentos tenderiam a manter razão nêutrons/prótons do núcleo fissionante (UCD).

A melhor proposta foi uma combinação desses estudos:

- Para parâmetros de fissilidade acima do valor crítico, o núclídeo fissionaria simetricamente de acordo com o postulado UCD ;
- Para valores inferiores ao valor crítico, a fissão seria assimétrica e com distribuição de carga segundo o modelo MPE .

Quanto à multiplicidade de nêutrons, os autores constataram que o número de nêutrons evaporados antes da fissão aumentava com a energia de excitação até que seu

parâmetro de fissilidade se tornasse grande o suficiente para que a fissão fosse o modo predominante de decaimento.

No caso dos nêutrons pós-fissão (evaporação dos fragmentos), a multiplicidade aumentava com o excesso de energia da partícula incidente, que se refletia no aumento da energia cinética total dos fragmentos; os fragmentos evaporavam nêutrons até que sua energia de excitação fosse inferior à energia de ligação do nêutron.

Inicialmente, comparou-se a seção de choque de fissão para a reação $p + {}^{232}\text{Th}$ para as energias consideradas no estudo (20, 30, 40, 50, 60, 70 e 85 MeV) com os valores da curva empírica da seção de choque de fissão dada pela sistemática de Prokofiev (PROKOFIEV, 2001), que corresponde a um ajuste a dados experimentais. A Figura 2 mostra que o comportamento geral é reproduzido, embora sistematicamente inferior aos valores experimentais. Isso se deve ao fato de o CRISP e o modelo de cascata possuírem limitações a baixas energias (< 50 MeV).

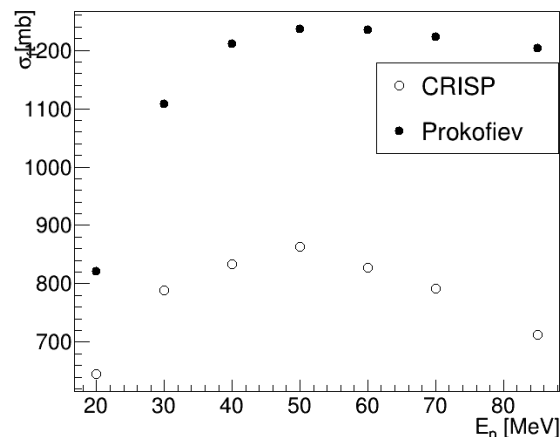


Figura 2 – Seção de choque de fissão induzida por próton para o ${}^{232}\text{Th}$: comparação entre o valor calculado com o CRISP (\circ) e o valor empírico (\bullet) do ajuste a dados experimentais realizado por (PROKOFIEV, 2001).

A multiplicidade de nêutrons também foi obtida. Na Figura 3, é possível verificar a comparação entre a multiplicidade média de nêutrons pré-fissão (emitidos entre o fim da cascata intranuclear e a fissão) e pós-fissão (emitidos pelos fragmentos de fissão, não considerando os nêutrons decorrentes de decaimento beta ou os nêutrons de cisão). O CRISP apresenta multiplicidade total de nêutrons maior que a indicada no artigo; em média, a multiplicidade de nêutrons pré-fissão da simulação corresponde a 29% do total,

enquanto que a do artigo corresponde a 25%, ou seja, a simulação superestimou a emissão de nêutrons de evaporação.

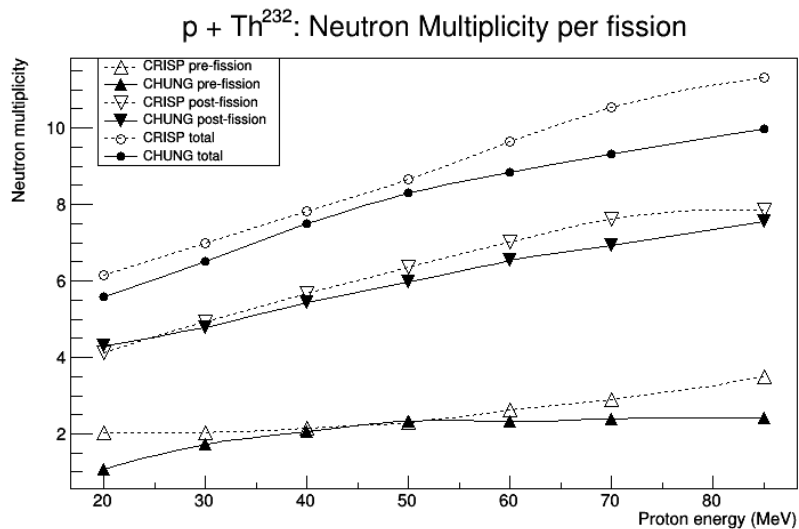


Figura 3 – Cálculo da multiplicidade de nêutrons por fissão para o ²³²Th em função da energia do próton incidente. Comparação com os dados de (CHUNG; HOGAN, 1981). As linhas são apenas para visualização do comportamento.

Na Figura 4 é possível encontrar o mesmo estudo para energias do próton incidente de 100 a 600 MeV; nele, é possível observar que a emissão de nêutrons por núcleos que atingiram a fissão permanece praticamente constante (crescimento mais lento), enquanto que as multiplicidades advindas da evaporação (núcleos que perderam toda sua energia de excitação por emissão de partículas) e da fissão multimodos (emissão dos fragmentos de fissão) aumentam, esta última mais rapidamente, como era o esperado.

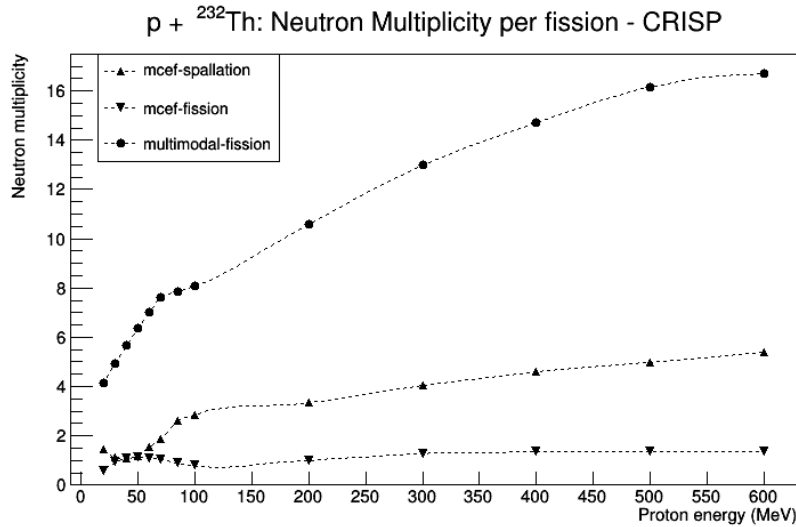


Figura 4 – Cálculo da multiplicidade de nêutrons para o ${}^{232}\text{Th}$ em função da energia e por número de fissão por módulo do CRISP. As linhas são apenas para visualização do comportamento.

2.3.1.3 Estudo da produção de fragmentos na reação de spallation.

Para a produção caracterização de resíduos de *spallation*, comparou-se os dados simulados com o CRISP com os dados experimentais obtidos para a reação ${}^{208}\text{Pb}$ (1 A GeV) + p por (ENQVIST et al., 2001).

Segundo os autores, o estudo dos resíduos de *spallation* tem grande importância para análise de degradação da fonte e de risco radiológico: embora os produtos de fissão tenham maior energia cinética, os resíduos de *spallation* dominam a produção isotópica da reação e, portanto, são responsáveis pela maior parte dos danos por radiação. A conclusão a que se chegou foi de que tal reação favorece a produção de isótopos pesados, de massa próxima ao do ${}^{208}\text{Pb}$, ricos em nêutrons.

A Figura 5 mostra que os dados calculados pelo CRISP reproduzem bem as maioria das parábolas de *spallation* da reação para $Z \sim 82$; para $Z < 74$, não há um bom ajuste – fato já observado em (DEPPMAN et al., 2012); a possível causa de tal discrepância seria o núcleo excitado que, após a cascata intranuclear, poderia estar longe da linha de estabilidade, enquanto que os parâmetros para os modelos nucleares levam em consideração o núcleo estável e não-excitado. Os parâmetros utilizados na simulação foram previamente calculados por (ANDRADE-II, 2012).

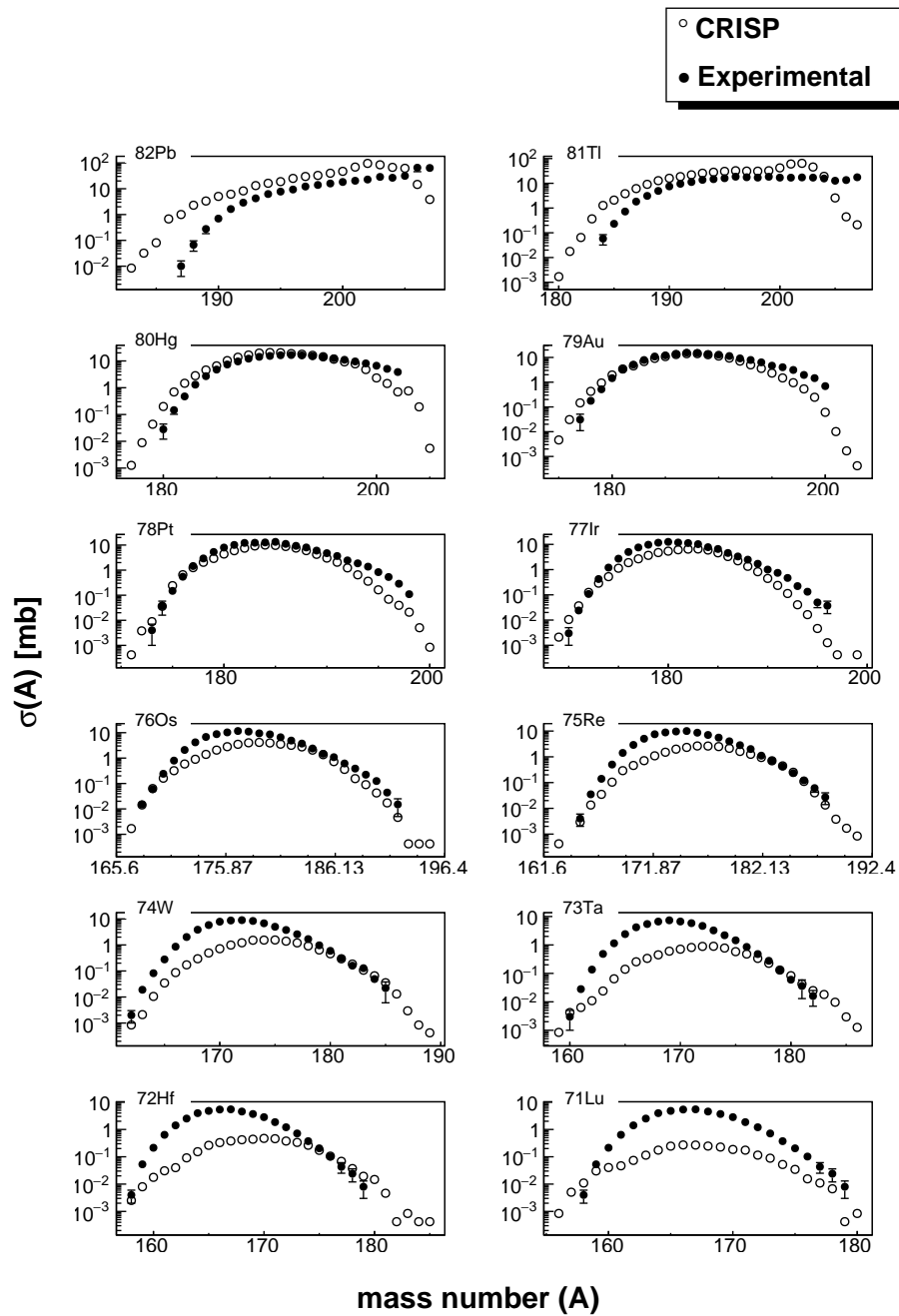


Figura 5 – Seções de choque para a produção de resíduos de spallation da reação ^{208}Pb (1 A GeV) + p.

Como a energia de excitação do núcleo em reações entre prótons da ordem de 1 GeV e núcleos pesados é apenas uma fração da energia incidente, o limiar de 3 MeV/nucleon para multifragmentação nuclear dificilmente é observado. Estudos indicaram que a inclusão da etapa de multifragmentação no processo de desexcitação nessas reações não é determinante para a reprodução das principais características da produção de fragmentos (MANCUSI et al., 2011).

2.3.2 Fonte de spallation

Reações de *spallation* ocorrem entre hádrons de energia relativamente alta que interagem com um núcleo-alvo, provocando a emissão de diversas partículas – principalmente nucleons, mas de outros tipos (como píons) em menor quantidade (CUGNON; VOLANT; VUILLIER, 1997). Os estudos desse tipo de reação ganhou importância com projetos de fontes de *spallation* para uso em reatores ADS (GUDOWSKI, 1999; GUDOWSKI, 2000) e na pesquisa de propriedades materiais (ORNL, 2015).

O chumbo e o chumbo-bismuto eutético (LBE) – preferencialmente em sua forma líquida – são materiais de interesse no desenvolvimento de fontes de *spallation* e de refrigerante de reatores inovativos. No primeiro caso, contam a seu favor a elevada multiplicidade de nêutrons por próton incidente e as seções de choque pequenas para absorção e espalhamento de nêutrons rápidos. No segundo, destacam-se suas propriedades térmicas (pontos de ebulição elevados e boa eficiência na remoção do calor) e químicas (inertes quanto a reações com água) (NEA, 2015; IAEA, 2012).

Sendo assim, a reação escolhida para o estudo de uma fonte de nêutrons de *spallation* foi a de prótons a 1200 MeV e ^{208}Pb .

Multiplicidade de nêutrons

A distribuição da multiplicidade de nêutrons por próton incidente emitidos pela reação considerada pode ser vista na Figura 6:

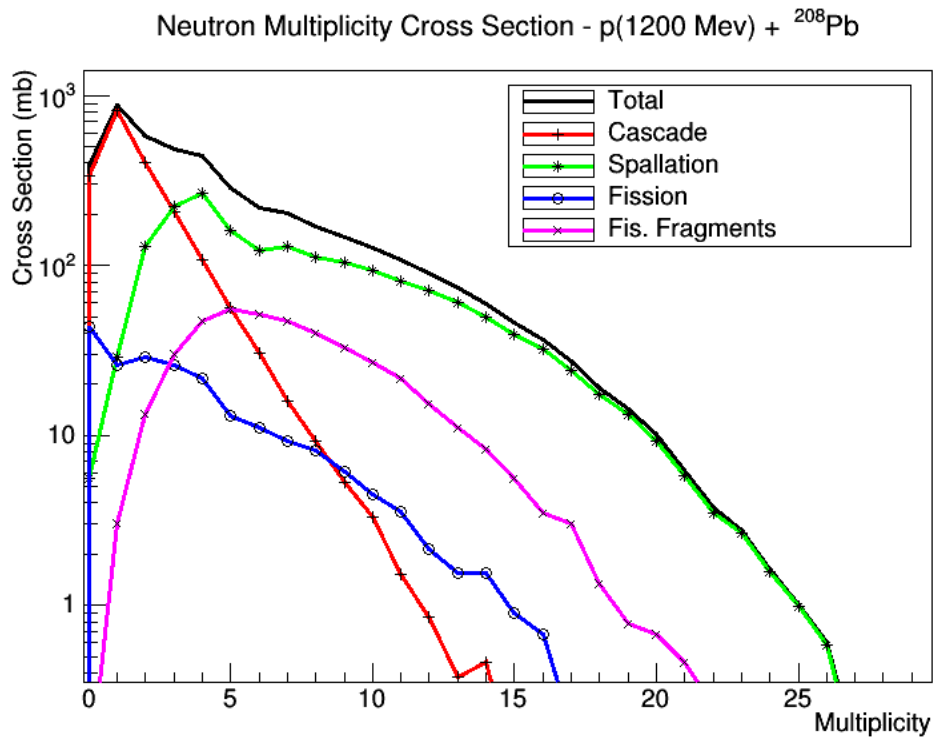


Figura 6 – Distribuição da multiplicidade de nêutrons emitidos na reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . As etapas da reação são: cascata intranuclear (*Cascade*), evaporação (*Spallation*), emissões pré-fissão (*Fission*) e pós-fissão, ou seja, de fragmentos (*Fis. Fragments*). Em escala logarítmica.

A curva pode ser decomposta nas contribuições da cascata intranuclear, evaporação, emissões pré-fissão e emissões dos fragmentos de fissão – conforme legenda. Nota-se que a etapa de evaporação é aquela que produz o maior número de nêutrons por próton incidente.

Espectro de energia

Os espectros de energia cinética dos nêutrons emitidos na cascata e no processo competitivo evaporação/fissão encontram-se, respectivamente, na Figura 7 e na Figura 8.

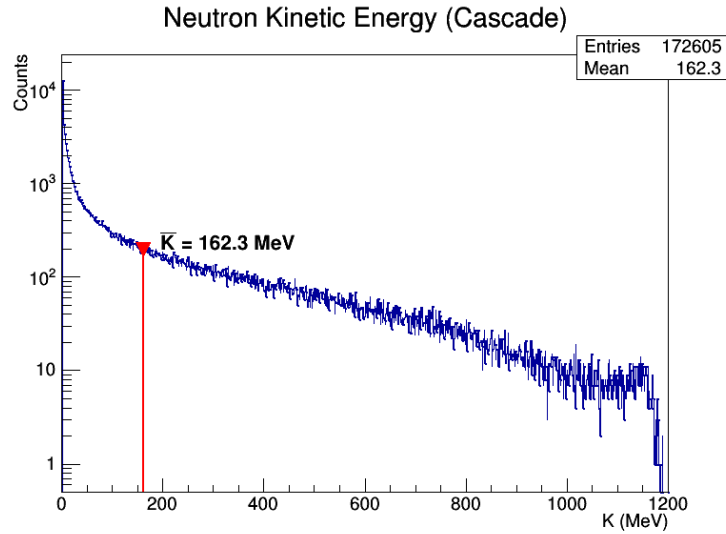


Figura 7 – Distribuição da energia cinética dos nêutrons emitidos durante a cascata intranuclear, em escala logarítmica, da reação $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$. Valor médio $\bar{K} = 162,3 \text{ MeV}$ em destaque no gráfico.

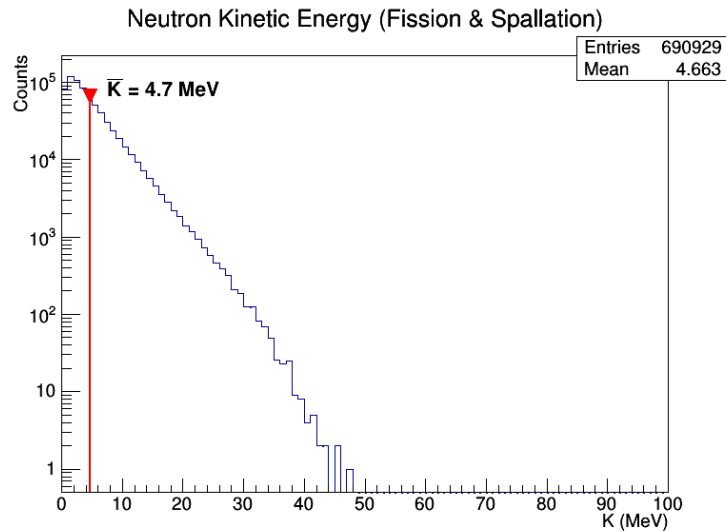


Figura 8 – Distribuição da energia cinética dos nêutrons evaporados no processo competitivo evaporação-fissão, em escala logarítmica, da reação $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$. Valor médio $\bar{K} = 4,7 \text{ MeV}$ em destaque no gráfico.

Percebe-se que nêutrons de evaporação são mais numerosos e de menor energia (máximo de 50 MeV, com energia média de 4,7 MeV). Já os nêutrons emitidos durante a cascata intranuclear apresentam um espectro contínuo até a energia do próton incidente (no caso, até 1200 MeV, sendo a média, 162,3 MeV).

Momento e distribuição angular

Quanto à distribuição angular, é possível observar que os nêutrons de cascata são emitidos preferencialmente a ângulos fechados (média de $\sim 59^\circ$), ou seja, próximos à direção de incidência, como visto na Figura 9, enquanto que, para os nêutrons da etapa de evaporação/fissão, as Figuras 10 e 11 indicam emissão isotrópica no referencial do laboratório.

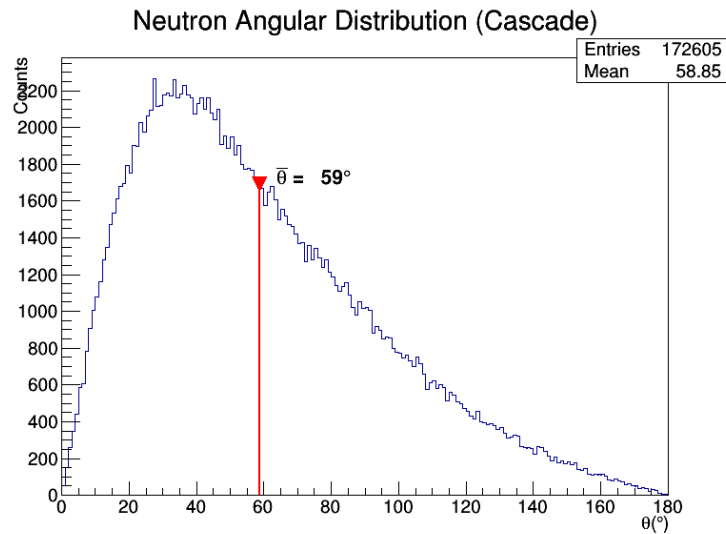


Figura 9 – Distribuição angular dos nêutrons emitidos durante a cascata intranuclear da reação $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$ em relação à direção de incidência. Valor médio $\bar{\theta} = 59^\circ$ em destaque no gráfico.

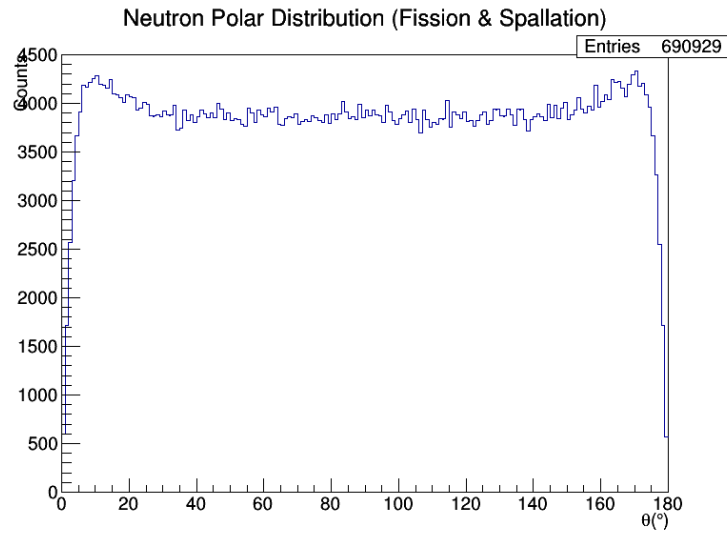


Figura 10 – Distribuição polar dos nêutrons evaporados no processo competitivo evaporação-fissão da reação $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$. Referencial do laboratório.

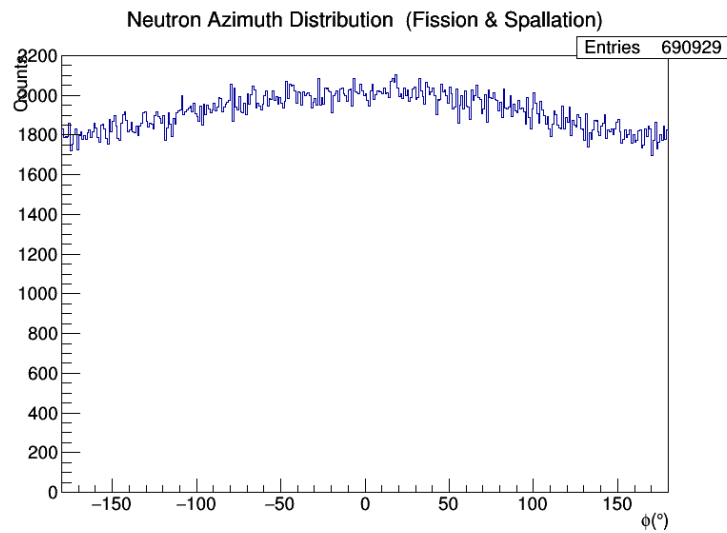


Figura 11 – Distribuição azimutal dos nêutrons evaporados no processo competitivo evaporação-fissão da reação $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$. Referencial do laboratório.

A distribuição de momentos dos nêutrons evaporados é apresentada na Figura 12.

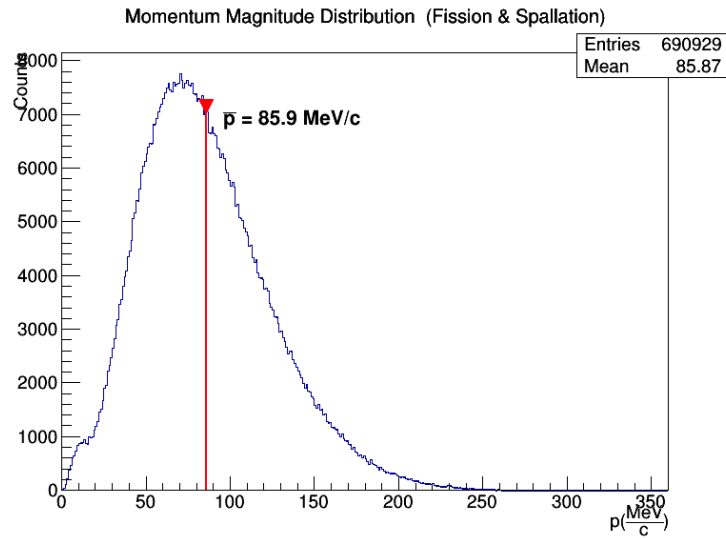


Figura 12 – Distribuição de momentos dos nêutrons evaporados no processo competitivo evaporação-fissão da reação $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$. Valor médio $\bar{p} = 85,9 \text{ MeV/c}$ em destaque no gráfico.

Cascata intranuclear

As características do núcleo ao fim da cascata intranuclear determinam a etapa seguinte (competição evaporação/fissão). A distribuição de massa encontra-se na Figura 13; a de carga, na Figura 14; e, a de energia de excitação, na Figura 15.

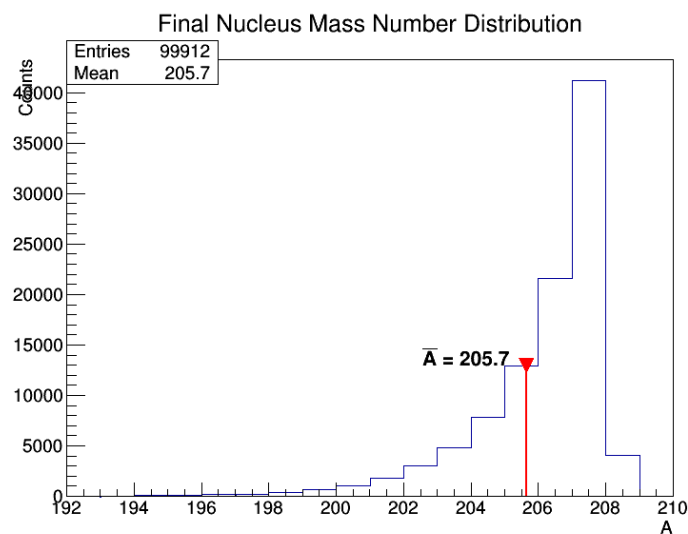


Figura 13 – Distribuição de massa do núcleo ao final da cascata nuclear da reação $p(1200 \text{ MeV}) + {}^{208}\text{Pb}$. Valor médio $\bar{A} = 205,7$ em destaque no gráfico.

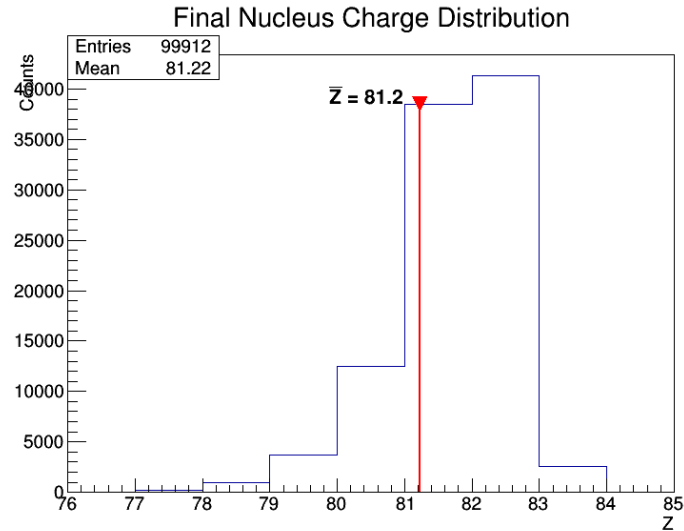


Figura 14 – Distribuição de carga do núcleo ao final da cascata nuclear da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{Z} = 81,2$ em destaque no gráfico.

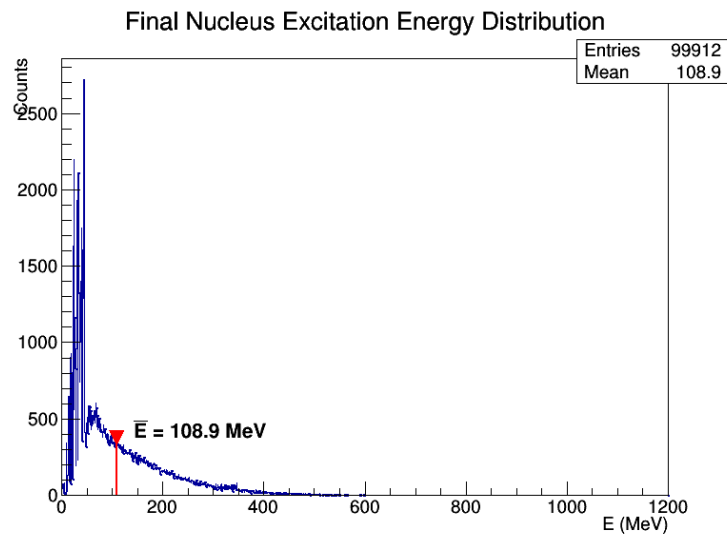


Figura 15 – Distribuição da energia de excitação do núcleo ao final da cascata nuclear da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{E} = 108,9$ MeV em destaque no gráfico.

Novamente, nota-se que a cascata intranuclear tende a emitir poucos nucleons (número de massa médio $\bar{A} = 205,7$, ou seja, emissão de 2,3 nucleons em média); a carga também tende a variar pouco (número atômico médio $\bar{Z} = 81,2$). A energia de excitação média do núcleo remanescente é apenas uma fração (aproximadamente 10 %) da energia original.

Resíduos de spallation

Após a evaporação de nêutrons (e outras partículas), as características do núcleo remanescente – o resíduo de *spallation* – são bastante diferentes das do núcleo inicial do alvo.

Como pode ser vista na Figura 16, a distribuição de massa indica produção de núclídeos de número de massa variando desde aproximadamente $A = 150$ até aproximadamente $A = 209$; nota-se maior concentração de núclídeos de massa próxima a $A = 203$. A seção de choque total da reação de *spallation* encontrada foi de $\sigma_{spall} = 1788$ mb – compatível com o valor experimental $\sigma_{spall}^{exp} = 1719$ mb (LERAY et al., 2002).

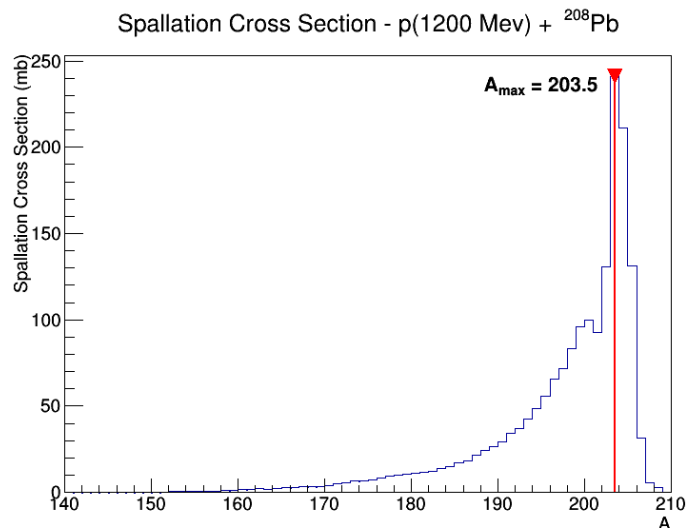


Figura 16 – Seção de choque da produção de resíduos de *spallation* da reação p (1200 MeV) + ²⁰⁸Pb, calculada com o CRISP. Valor mais provável $A_{max} = 203,5$ em destaque no gráfico. A seção de choque total encontrada foi $\sigma_{spall} = 1788$ mb – compatível com o valor experimental $\sigma_{spall}^{exp} = 1719$ mb (LERAY et al., 2002).

Para a distribuição de carga, apresentada na Figura 17, o comportamento é similar, indo desde aproximadamente $Z = 65$ até aproximadamente $Z = 84$: nota-se maior concentração de núclídeos de massa próxima à carga original do ²⁰⁸Pb ($Z = 82$).

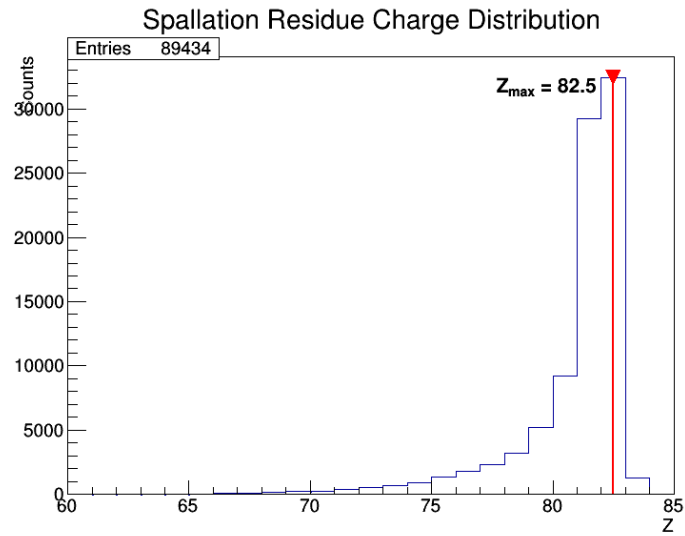


Figura 17 – Distribuição de carga dos resíduos de *spallation* da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor mais provável $Z_{max} = 82,5$ em destaque no gráfico.

As parábolas de *spallation* – distribuição do número de massa para cada valor de número atômico – obtidas pela simulação para os principais resíduos encontram-se na Figura 18.

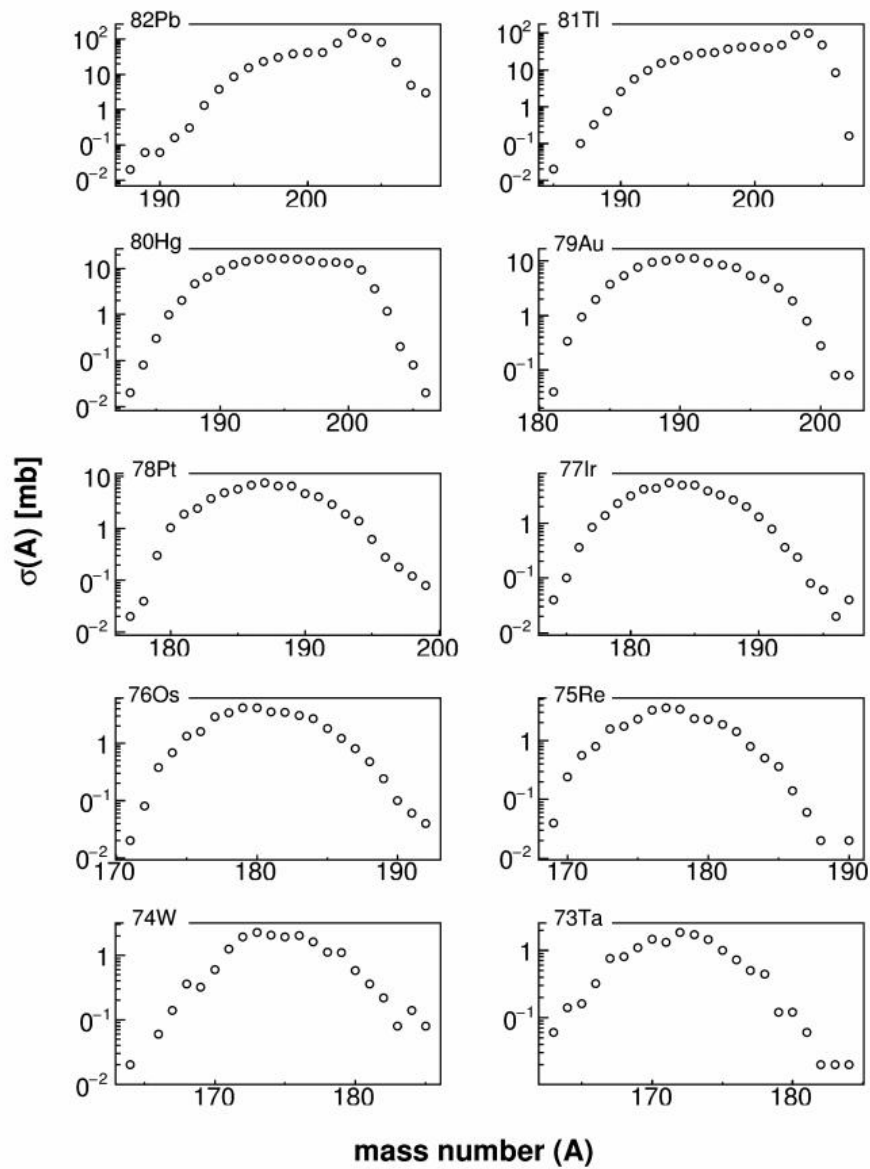


Figura 18 – Parábolas de *spallation* dos principais elementos produzidos na reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb .

Fragmentos de Fissão

O núcleo resultante da cascata intranuclear encontra-se excitado e o processo de desexcitação ocorre por evaporação ou por fissão.

Comparando a Figura 13 com a Figura 19, nota-se que a distribuição do número de massa do núcleo fissionante é mais larga que a do núcleo excitado, indicando evaporação de partículas. A presença de regiões de maior ou menor ocorrência de fissão é um indicativo da dependência do parâmetro de fissilidade Z^2/A : observa-se pela comparação entre a

Figura 14 e a Figura 20 que a distribuição de carga não varia tanto quanto a de massa, indicando que há predomínio da evaporação de nêutrons e que tal fato acarreta aumento do parâmetro de fissilidade e, portanto, da probabilidade de fissão.

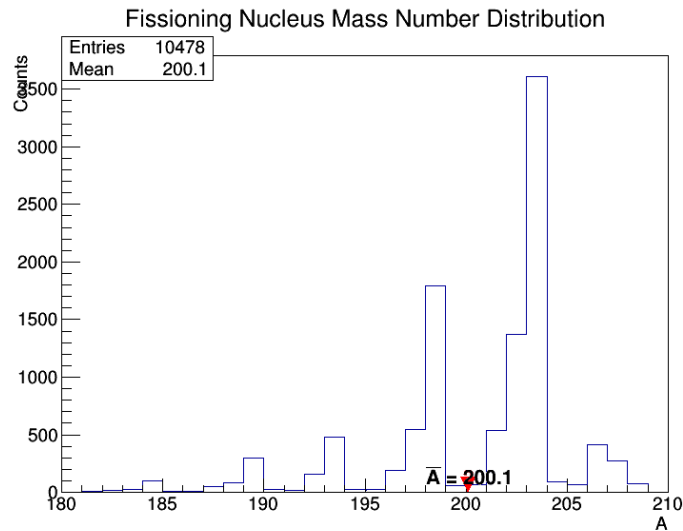


Figura 19 – Distribuição de massa dos núcleos fissionantes da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{A} = 200,1$ em destaque no gráfico.

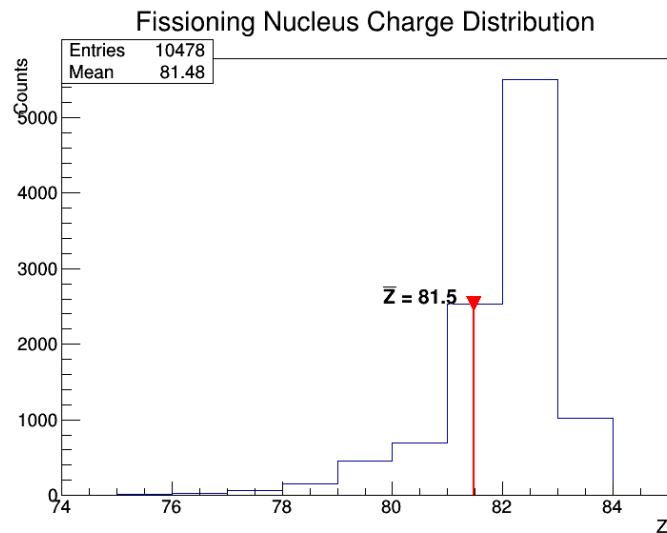


Figura 20 – Distribuição de carga dos núcleos fissionantes da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb . Valor médio $\bar{Z} = 81,5$ em destaque no gráfico.

A energia de excitação do núcleo fissionante, apresentada na Figura 21, é distribuída entre os produtos de fissão na forma de energia interna tal que o fragmentos recém formados

também possam evaporar partículas (neutrons, prótons e alfas) até que não seja mais possível por critérios energéticos.

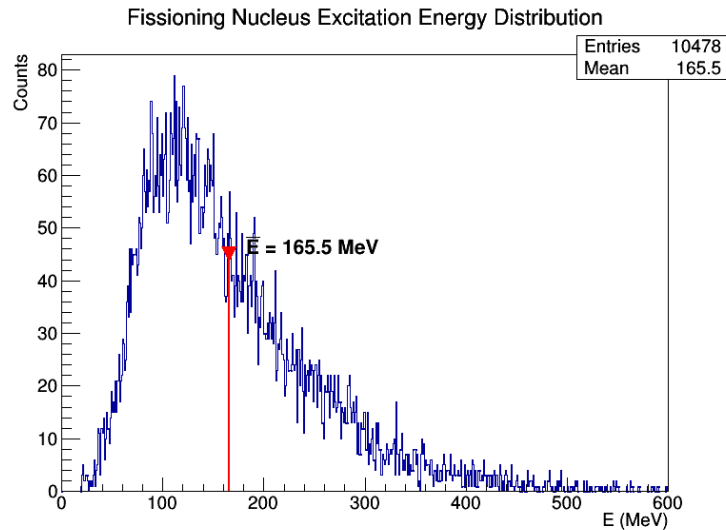


Figura 21 – Distribuição da energia de excitação dos núcleos fissionantes da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb , calculada com o CRISP. Valor médio $\bar{E} = 165,5$ MeV em destaque no gráfico.

A seção de choque de produção dos fragmentos de fissão, apresentada na Figura 22 indica prevalência da fissão simétrica. O valor encontrado foi de $\sigma_f = 209,46$ mb, próximo do valor experimental $\sigma_f^{exp} = 157 \pm 26$ encontrado por (ENQVIST et al., 2001) no caso ^{208}Pb (1 A GeV) + p . A distribuição de carga dos fragmentos estão na Figura 23.

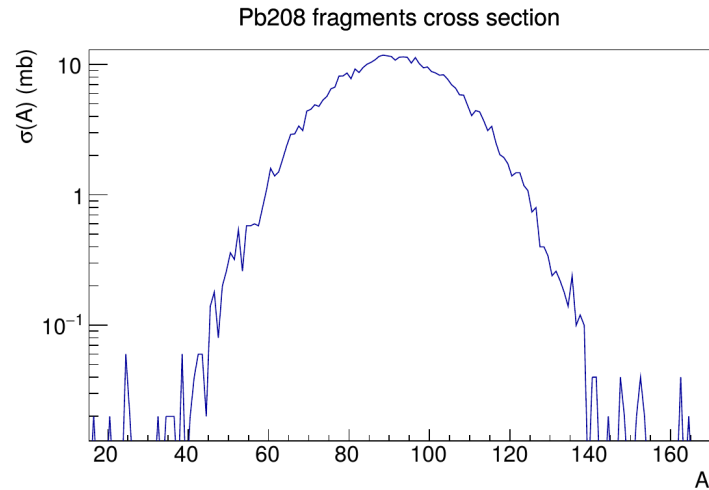


Figura 22 – Seção de choque da produção de fragmentos de fissão em função da massa da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb , calculada com o CRISP. Seção de choque total $\sigma_f = 210$ mb, comparável ao valor experimental $\sigma_f^{exp} = 157 \pm 26$ mb da reação ^{208}Pb (1 A GeV) + p (ENQVIST et al., 2001).

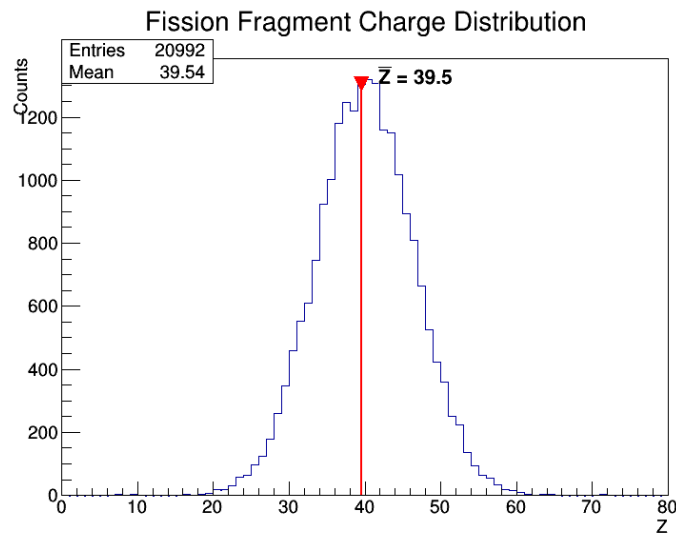


Figura 23 – Distribuição de carga dos fragmentos de fissão da reação p (1200 MeV) + ^{208}Pb , calculada com o CRISP. Valor médio $\bar{Z} = 39,5$ em destaque no gráfico.

2.3.3 Reator ADS

Para o estudo de um reator ADS, foi necessário determinar os materiais e a geometria utilizadas.

A fonte de *spallation* escolhida foi do tipo LBE líquido e a energia do próton incidente foi de 1200 MeV – conforme reação representativa estudada anteriormente.

Uma primeira tentativa de estudar o comportamento de um reator ADS foi a de utilizar um reator térmico PWR comercial adaptado para receber uma fonte de *spallation*. O combustível seria oriundo da troca anual (1/3 dos elementos) após o primeiro ciclo (tempo aproximado de 350 dias).

A justificativa para essa abordagem seria a de entender formas de introduzir a tecnologia ADS gradualmente na indústria nuclear: esta seria apenas a primeira parte de uma sequência de ações para maximizar utilização do combustível e minimizar a geração de rejeitos.

Reator térmico PWR

Realizou-se uma simulação utilizando o código MCNP5-1.60 da operação de um reator industrial do tipo PWR cujo combustível nuclear (dióxido de urânio) apresentava três valores usuais de enriquecimento (2,35%, 3,40% e 4,45%) em ^{235}U . O revestimento era uma liga de zircônio (*Zircaloy-4*).

Detalhes da geometria do reator encontram-se nas Figuras 24 e 25.

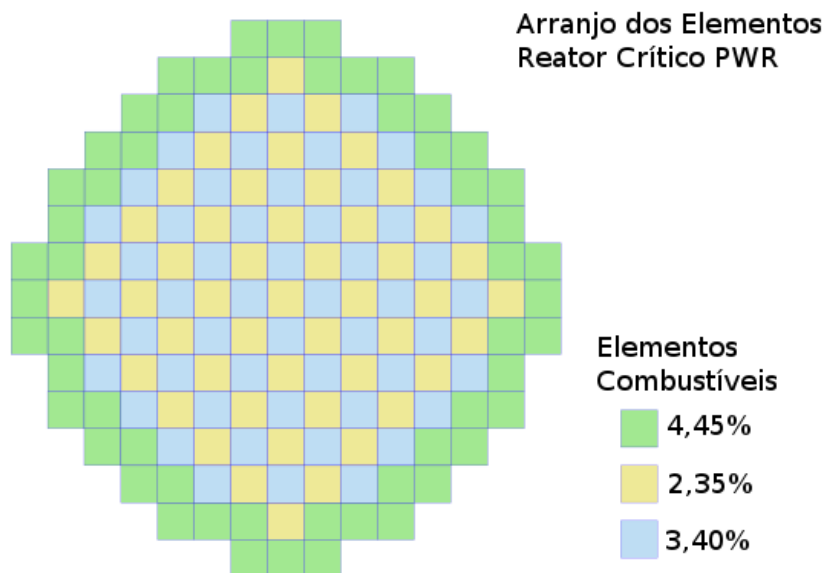


Figura 24 – Configuração do núcleo do reator crítico utilizado para a simulação da composição representativa do combustível queimado de um reator PWR comercial.

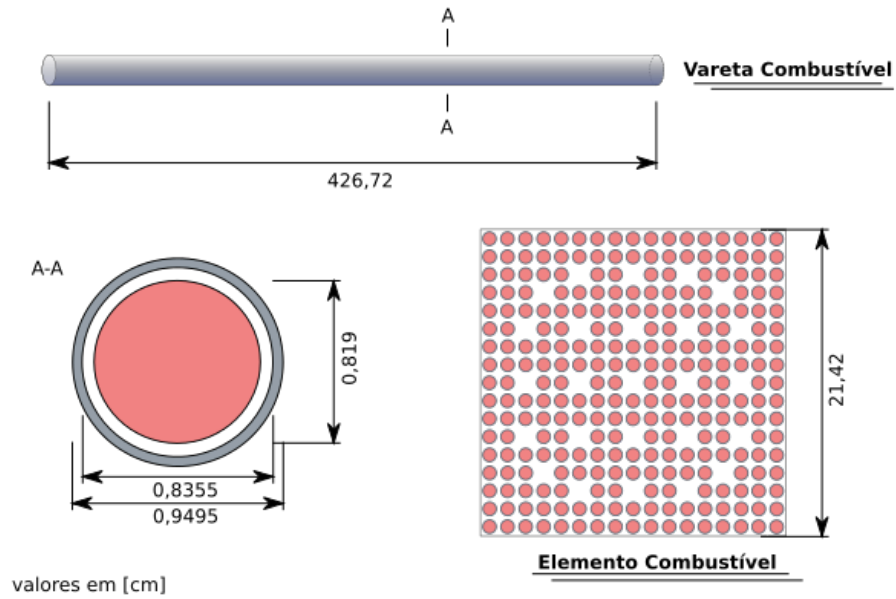


Figura 25 – Detalhes das dimensões do pino e do elemento combustível utilizado para a simulação da composição representativa do combustível queimado de um reator PWR comercial.

A distribuição do fluxo de nêutrons na seção transversal no centro do reator pode ser vista na Figura 26

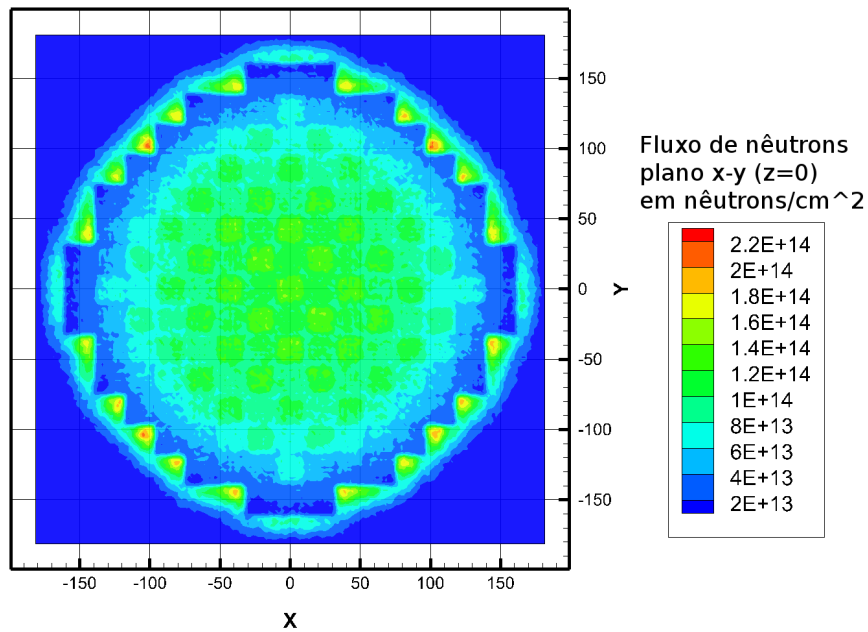


Figura 26 – Fluxo de nêutrons no plano transversal no centro do reator PWR simulado.

Utilizou-se o código Serpent v.2.1.23 e os valores de fluxo de nêutrons nas varetas-combustível para estudar os parâmetros da queima em um período de 350 dias.

A evolução do fator multiplicativo encontra-se na Figura 27.

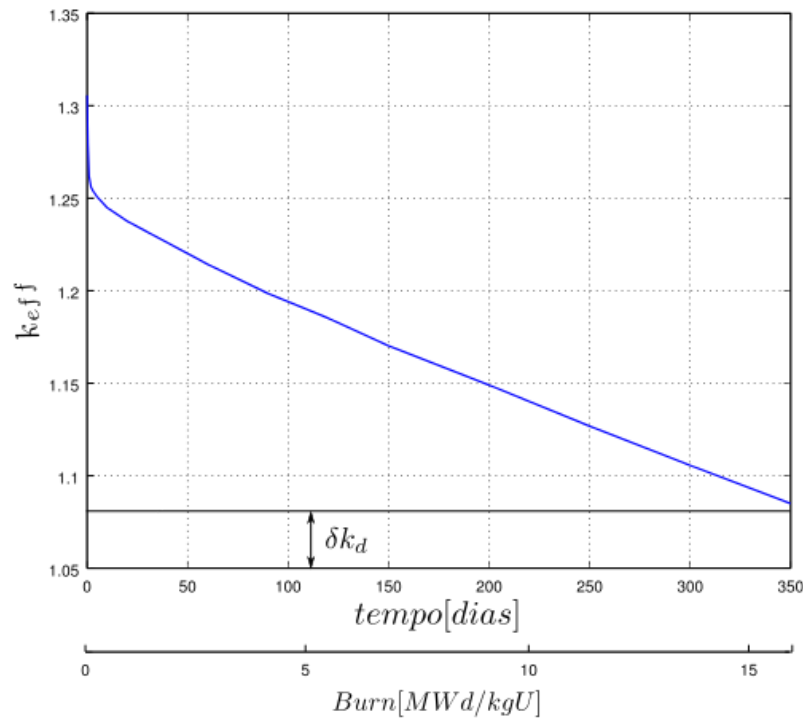


Figura 27 – Evolução do coeficiente de multiplicação k_{eff} da simulação da composição representativa do combustível nuclear durante sua queima em um reator PWR por aproximadamente um ano (350 dias).

O sistema de controle de reatividade de um reator é composto por barras de controle, veneno queimável e boro solúvel (a ser dissolvido no refrigerante), que contêm em sua composição materiais absorvedores de nêutrons. Assim, o fato de que o valor de k_{eff} é superior a 1, como observado na Figura 27, é compensado por tal sistema de controle de reatividade de forma que o reator opere no estado crítico ($k_{eff} = 1$). À medida que o combustível é queimado, o valor de k_{eff} diminui, fazendo com que, conseqüentemente, haja menor necessidade da atuação de absorvedores de nêutrons.

A queima do ^{235}U pode ser vista na Figura 28.

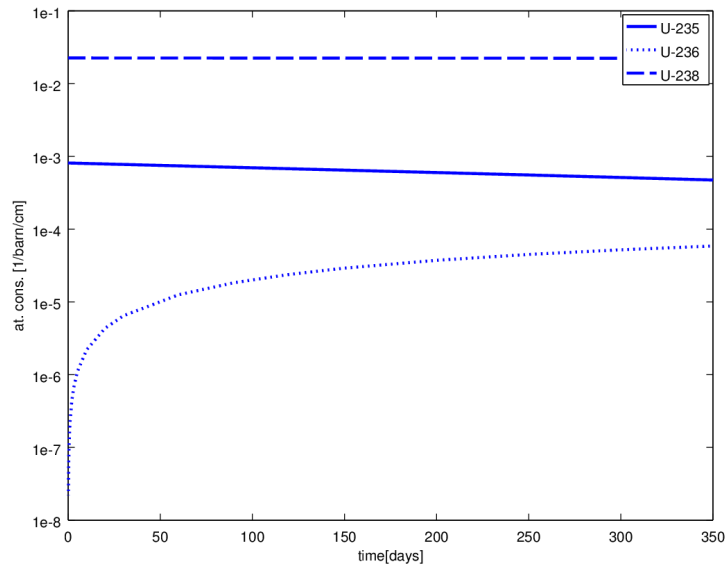


Figura 28 – Evolução dos isótopos de urânio presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator PWR por aproximadamente um ano (350 dias).

Partindo da composição isotópica do combustível nuclear novo, é perceptível que, enquanto há crescimento do isótopo ^{236}U , o ^{235}U é consumido. A concentração de ^{238}U – que compõe a maior parte do combustível – permaneceu praticamente constante.

Outro item de grande importância é o crescimento de elementos físséis; desses, o mais importante em um reator crítico é o ^{239}Pu , produzido a partir da absorção de nêutrons por parte do ^{238}U . Na Figura 29, nota-se que todos os isótopos de plutônio considerados – ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu e ^{242}Pu – aumentam na operação de um reator PWR.

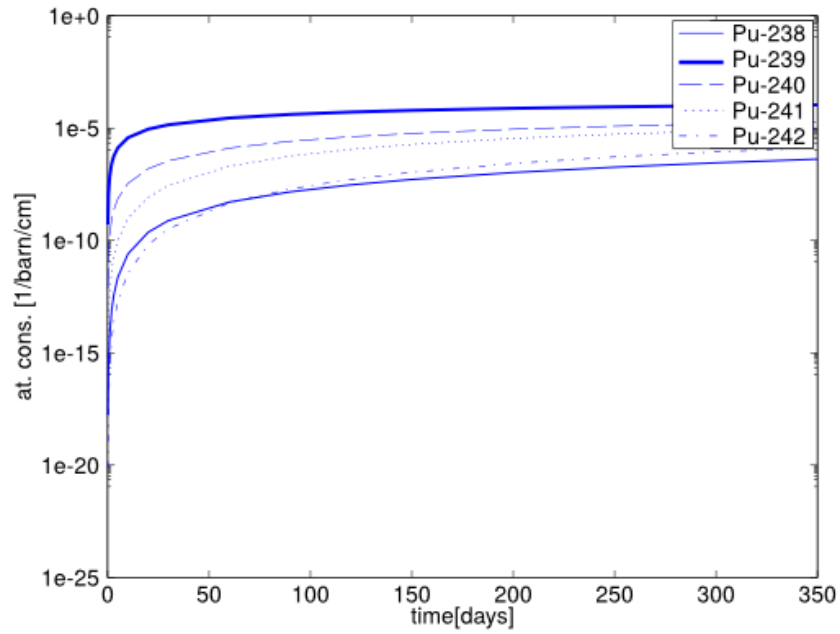


Figura 29 – Evolução dos isótopos de plutônio presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator PWR por aproximadamente um ano (350 dias).

A produção de amerício é indicada na Figura 30.

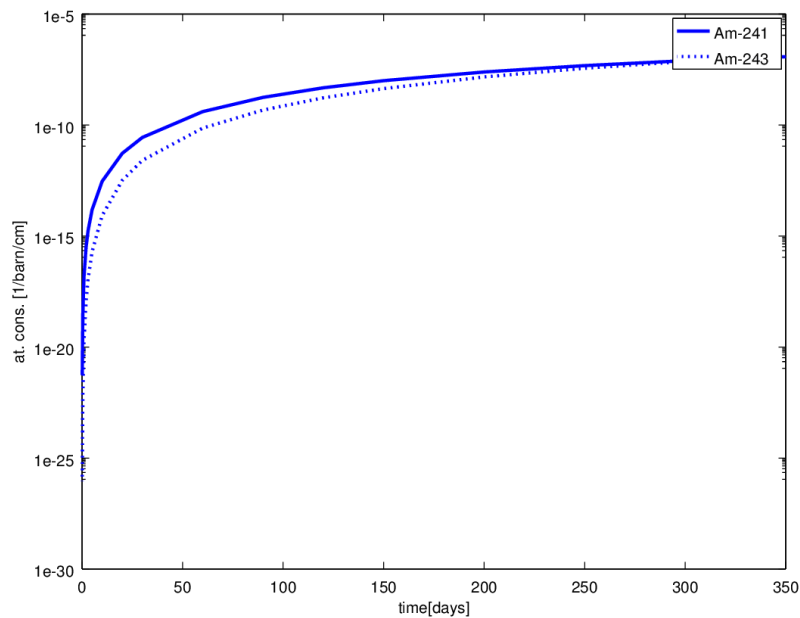


Figura 30 – Evolução dos isótopos de amerício presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator PWR por aproximadamente um ano (350 dias).

Primeira configuração do reator ADS

Como descrito anteriormente, a primeira configuração a ser simulada – reator térmico adaptado para ser um ADS – foi uma tentativa de maximizar a utilização do combustível. O arranjo do reator encontra-se na Figura 31.

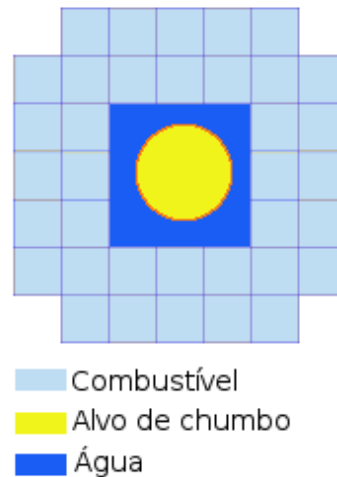


Figura 31 – Arranjo do reator ADS.

Os elementos combustíveis eram oriundo do terço de troca do reator PWR simulado anteriormente. A geometria, portanto, era similar à anterior, com exceção da retirada dos 9 elementos centrais para a acomodação da fonte de *spallation* (cilindro de LBE líquido) e do fato de ter aproximadamente 1/4 do tamanho do PWR. A emissão de nêutrons era isotrópica na superfície da fonte (cilindro de 3 m de comprimento e raio de 20 cm alinhado axialmente ao núcleo do reator). O espectro de energia era o da evaporação.

Na Figura 32, encontra-se a flutuação do k_{eff} por um período de 350 dias de operação do modelo ADS, para análise de reatividade. Nota-se forte subcriticalidade – muito abaixo dos valores previstos para um reator ADS (ao redor de 0,98). A variação do k_{eff} é acentuada, indicando queima elevada de elementos físséis, possivelmente como consequência de fluxo de nêutrons também elevado no núcleo do reator.

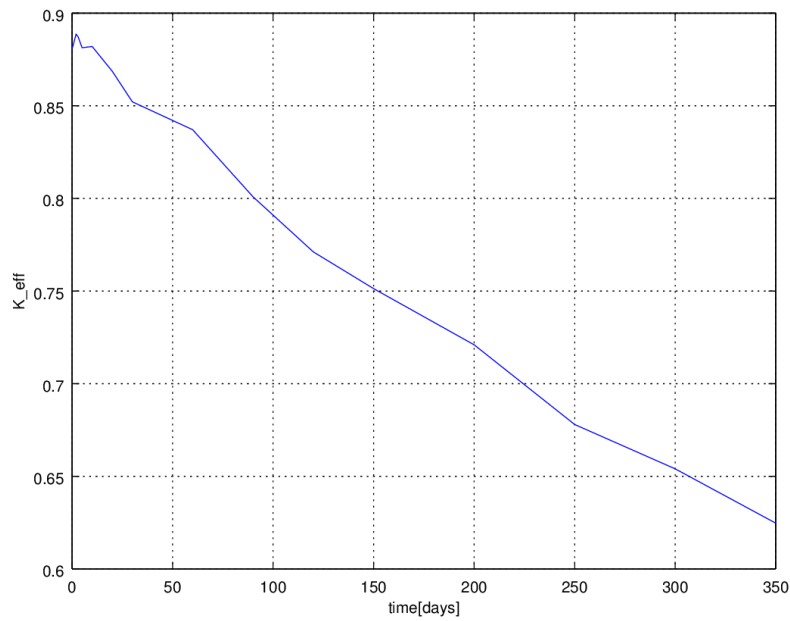


Figura 32 – Evolução do fator efetivo de multiplicação k_{eff} da simulação da composição representativa do combustível nuclear durante sua queima em um reator ADS térmico por aproximadamente um ano (350 dias).

A Figura 33 indica o consumo de ^{235}U , responsável pela potência, enquanto o ^{236}U aumenta. O ^{238}U permanece relativamente constante.

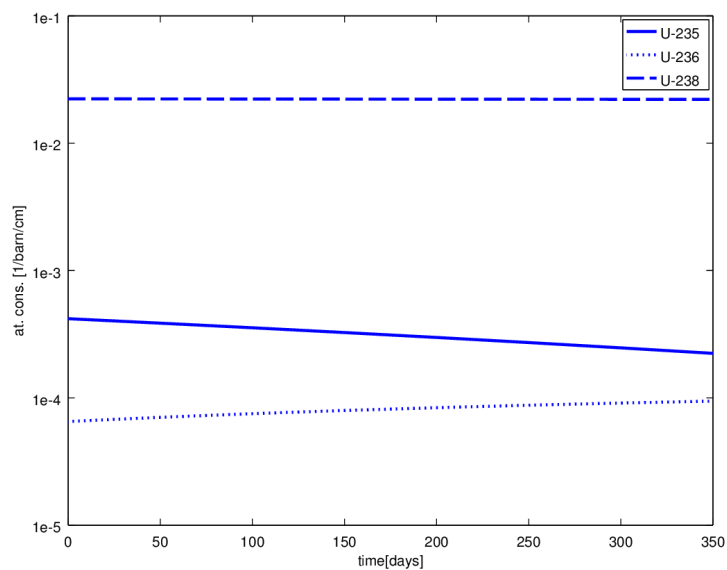


Figura 33 – Evolução dos isótopos de urânio presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator ADS térmico por aproximadamente um ano (350 dias).

Houve leve aumento do ^{239}Pu , mas com tendência a equilíbrio, como visto na Figura 34.

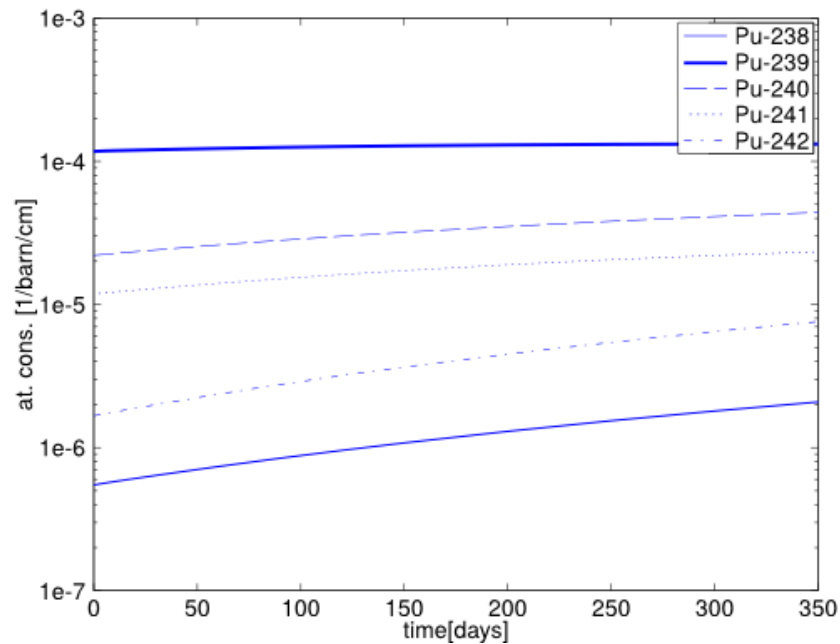


Figura 34 – Evolução dos isótopos de plutônio presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator ADS térmico por aproximadamente um ano (350 dias).

A produção de plutônio indica que essa configuração promove maior depleção do combustível (uma vez em que há produção de energia de 200 MW elétrico). Contudo, o fato de não ter sido constatado a redução da concentração de ^{239}U aponta para a possibilidade de uso de reatores em cadeia: nesse contexto, essa primeira abordagem poderia ser um ADS intermediário, ou seja, uma alternativa ao reprocessamento imediato do combustível queimado de um reator comercial; após o reprocessamento, seria utilizado um ADS incinerador de elementos transurânicos.

Quanto ao amerício, também é observado crescimento de seus isótopos, como indicado na Figura 35.

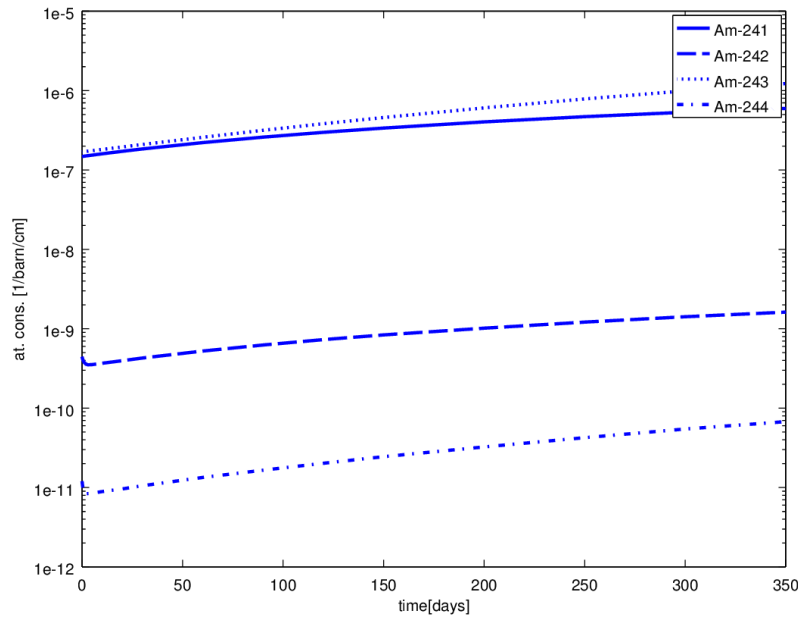


Figura 35 – Evolução dos isótopos de amerício presentes no combustível nuclear durante sua queima em um reator ADS térmico por aproximadamente um ano (350 dias).

Discussão

Bowman (BOWMAN et al., 1992) indicava que nêutrons térmicos não seriam recomendados para a transmutação nuclear, pois o combustível nuclear queimado possui em sua composição nuclídeos com seções de choque de absorção pequena (produtos de fissão), após mais de um ano de irradiação em um reator comercial. Actinídeos menores (^{237}Np e ^{241}Am), apresentariam seção de choque de captura radioativa maior que a de fissão: logo, a irradiação com nêutrons térmicos promoveria o aumento da massa do núcleo. Reactores rápidos aproveitam-se do aumento da razão do número de fissões pelo número de capturas radioativas de alguns nuclídeos para nêutrons na energias na faixa de keV-MeV. Contudo, é necessário que a concentração desses núcleos a serem incinerados seja elevada, uma vez que as seções de choque são pequenas.

Com essas observações, Bowman propôs um reator ADS com alvo de LBE líquido, moderado por água pesada e com actinídeos dissolvidos em sal fundido: essa configuração permitiria o controle da concentração dos núcleos a serem incinerados e dos venenos (nuclídeos que reduziriam a taxa de queima). O fluxo de nêutrons térmicos era elevado

(10^{16} n/cm²·s), aumentando a taxa de captura para o ²³⁸U e possibilitando a regeneração de combustível.

No caso em questão, nota-se que, devido à grande concentração de ²³⁸U, há uma produção elevada de ²³⁹Pu. Observa-se, na Figura 33 e na Figura 34, que a concentração de ²³⁸U encontra-se em equilíbrio, assim como a de ²³⁹Pu, enquanto há queima de ²³⁵U. Isso pode indicar que o plutônio esteja sendo consumido (fissão) e também que esteja sendo transmutado para núclídeos mais pesados – como sugerido pelo aumento da concentração dos outros isótopos de plutônio e do amerício. Eventualmente, o acúmulo de produtos de fissão e de elementos transurânicos pode comprometer a depleção do combustível (STACEY, 2007).

Outra possibilidade seria um modelo de reator rápido, nos moldes da proposta de (CARMINATI et al., 1993; RUBBIA et al., 1995): alvo e moderador de LBE líquido, para tirar vantagem do aumento da seção de choque de fissão em relação à de absorção para nêutrons mais energéticos.

3 Conclusão

O estudo das reações nucleares indicou que as características da distribuição de nêutrons produzidos é um indicativo da estrutura nuclear e dos mecanismos da reação.

Foi visto que, para a reação de *spallation* com prótons a 1200 MeV e alvo de ^{208}Pb , a emissão de nêutrons de evaporação era compatível com valores experimentais, enquanto que a emissão de nêutrons de altas energias (acima de 20 MeV) estava sendo subestimada pelo CRISP.

Já no estudo da fissão para o ^{232}Th na reação com prótons até 85 MeV indicou que, embora quantitativamente a seção de choque de fissão fosse sistematicamente inferior ao valor experimental (neste caso, representado por uma equação empírica ajustado a valores experimentais), o comportamento geral era reproduzido. Quando à multiplicidade de nêutrons, foi visto que, no geral, os valores calculados eram superiores aos valores experimentais; o mesmo comportamento ocorreu com as componentes (evaporação pré-fissão e evaporação pós-fissão). Atribuiu-se tais flutuações ao fato de o modelo de cascata nuclear e sua implementação no CRISP possuírem limitações para energias ao redor de 50 MeV.

A produção de fragmentos da reação ^{208}Pb e prótons a 1 GeV foi calculada e as parábolas de *spallation*, determinadas. Houve boa concordância para $Z > 74$; para $Z < 74$, notou-se discrepâncias que foram atribuídas às incertezas dos parâmetros iniciais utilizados no cálculo.

A reação escolhida como representativa no estudo de uma fonte de nêutrons de *spallation* foi a de prótons a 1200 MeV em alvo de ^{208}Pb .

A seção de choque de *spallation* encontrada foi $\sigma_{spall} = 1788$ mb – compatível com o valor experimental $\sigma_{spall(Exp)} = 1719$ mb (LERAY et al., 2002). Esse foi o indicativo de que o CRISP reproduzia satisfatoriamente a emissão de nêutrons de evaporação.

Pode-se dizer, com base nos dados calculados, que, durante a cascata intranuclear, a multiplicidade de nêutrons por partícula incidente é baixa, mas os nêutrons emitidos são os mais energéticos: praticamente todos os nêutrons emitidos com mais de 50 MeV são oriundos da fase rápida da reação. Outra característica dos nêutrons rápidos é a tendência de serem emitidos preferencialmente ao redor da direção de incidência (ângulos frontais). O núcleo remanescente encontra-se com energia de excitação muito inferior à energia de incidência: a maior parte é carregada pela própria partícula incidente e/ou por outras

partículas produzidas e emitidas. A composição do núcleo excitado é próxima ao núcleo original.

Os nêutrons evaporados na etapa competitiva evaporação/fissão possuem espectro característico de Weisskopf ($\propto CE \exp[-E/D]$, sendo C e D constantes a serem determinadas, E a energia do nêutron), com energia máxima de 50 MeV e média de aproximadamente 4,7 MeV. A emissão é claramente isotrópica. A produção de resíduos de *spallation* era a esperada: predominância de núcleos com A e Z ao redor dos valores do núcleo-alvo, mas com uma longa cauda na direção de valores menores, indicando grande variedade isotópica.

Os núcleos fissionantes apresentaram Z médio próximo ao valor original, mas A inferior ao A do núcleo-alvo, indicando que a emissão de nêutrons pré-fissão promove o aumento do parâmetro de fissilidade (Z^2/A), o que significa aumentar a probabilidade de fissão.

Na reação considerada, o núcleo fissionante não era necessariamente o núcleo-alvo (^{208}Pb). Isso ocasionou uma grande variedade de produtos de fissão. Entretanto, para a faixa de núcleos fissionantes, era esperado que a seção de choque de fissão fosse pequena e que, devido à energia de incidência do próton, os fragmentos produzidos fossem relativamente simétricos.

Quanto à aplicação em reatores nucleares, concluiu-se que a tentativa inicial de adaptar uma fonte de nêutrons de *spallation* a um reator térmico convencional permitiu a produção de energia com maior depleção do combustível nuclear, porém com a formação de elementos transurânicos. Entretanto, pôde-se, a partir dessa percepção, sugerir outras estratégias de maximização dos recursos / minimização dos rejeitos e, também, outros modelos de reatores ADS.

Referências

- ANDRADE-II, E. *Estudo da fissão induzida de núcleos pesados por fótons e prótons a energias intermediárias e altas via Monte Carlo*. Dissertação (Mestrado) — Universidade de São Paulo, São Paulo, 2012. Disponível em: <<http://www.teses.usp.br/teses-disponiveis/43/43134/tde-07082012-172416/publico/AndradeEvandro.pdf>>. Citado 3 vezes nas páginas 40, 42 e 49.
- ANDRADE-II, E. et al. Fragment mass distributions in the fission of heavy nuclei by intermediate- and high-energy probes. *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*, v. 38, n. 8, p. 085104, 2011. Disponível em: <<http://stacks.iop.org/0954-3899/38/i=8/a=085104>>. Citado na página 36.
- ANÉFALOS, S. et al. The crisp code for nuclear reactions. *AIP Conference Proceedings*, v. 769, n. 1, p. 1299–1302, 2005. Disponível em: <<http://scitation.aip.org/content/aip/proceeding/aipcp/10.1063/1.1945244>>. Citado na página 37.
- ANÉFALOS, S. et al. The utilization of CRISP code in hybrid reactor studies. *Brazilian Journal of Physics*, Scielo, v. 35, p. 912 – 914, 09 2005. ISSN 0103-9733. Disponível em: <http://www.scielo.br/scielo.php?script=sci_arttext&pid=S0103-97332005000500053&nrm=iso>. Citado 3 vezes nas páginas 8, 37 e 45.
- ANÉFALOS, S. et al. Spallation product distributions and neutron multiplicities for accelerator-driven system using the crisp code. *Nuclear Science and Engineering*, v. 159, n. 1, p. 102–105, 2008. Disponível em: <http://www.ans.org/pubs/journals/nse/a_2763>. Citado na página 37.
- BARROS, G. et al. Thorium and reprocessed fuel utilization in an accelerator-driven system. *Annals of Nuclear Energy*, v. 80, p. 14 – 20, 2015. ISSN 0306-4549. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0306454915000080>>. Citado na página 43.
- BARROS, G. P. et al. Neutron production evaluation from a ADS target utilizing the MCNPX 2.6.0 code. *Brazilian Journal of Physics*, scielo, v. 40, p. 414 – 418, 12 2010. ISSN 0103-9733. Disponível em: <http://www.scielo.br/scielo.php?script=sci_arttext&pid=S0103-97332010000400010&nrm=iso>. Citado na página 43.
- BERDEGUEZ, M. B. T. *Modelagem Computacional de um ADS para Transmutação de Rejeitos e Produção de Hidrogênio*. Dissertação (Mestrado) — Universidade Estadual de Santa Cruz, Ilhéus, 2012. Disponível em: <http://www.uesc.br/cursos/pos_graduacao/mestrado/profisica/dissertacoes/mirta_barbara_torres_berdeguez.pdf>. Citado na página 43.
- BERTINI, H. W. Low-energy intranuclear cascade calculation. *Phys. Rev.*, American Physical Society, v. 131, p. 1801–1821, Aug 1963. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.131.1801>>. Citado na página 19.
- BOHR, N. Neutron capture and nuclear constitution. *Nature*, v. 137, p. 344–348, Feb 1936. Disponível em: <<http://www.nature.com/nature/journal/v137/n3461/abs/137344a0.html>>. Citado 2 vezes nas páginas 16 e 21.

BOHR, N.; WHEELER, J. A. The mechanism of nuclear fission. *Phys. Rev.*, American Physical Society, v. 56, p. 426–450, Sep 1939. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.56.426>>. Citado 2 vezes nas páginas 24 e 25.

BONDORF, J. et al. Statistical multifragmentation of nuclei. *Physics Reports*, v. 257, n. 3, p. 133 – 221, 1995. ISSN 0370-1573. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/037015739400097M>>. Citado 2 vezes nas páginas 28 e 30.

BOWMAN, C. et al. Nuclear energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, v. 320, n. 1, p. 336 – 367, 1992. ISSN 0168-9002. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0168900292907956>>. Citado 4 vezes nas páginas 13, 14, 32 e 72.

BROSA, U.; GROSSMANN, S.; MÜLLER, A. Nuclear scission. *Physics Reports*, v. 197, n. 4, p. 167 – 262, 1990. ISSN 0370-1573. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/037015739090114H>>. Citado 2 vezes nas páginas 27 e 41.

CARLUCCIO, T. *Implementação e qualificação de metodologia de cálculos neutrônicos em reatores subcríticos acionados por fontes externa de nêutrons e aplicações*. Tese (Doutorado) — Universidade de São Paulo, São Paulo, 2011. Disponível em: <<http://www.teses.usp.br/teses/disponiveis/85/85133/tde-18112011-161310/pt-br.php>>. Citado 2 vezes nas páginas 31 e 43.

CARMINATI, F. et al. An energy amplifier for cleaner and inexhaustible nuclear energy production driven by a particle beam accelerator. *CERN*, Nov 1993. Disponível em: <<https://cdsweb.cern.ch/record/256520/files/at-93-047.pdf>>. Citado 3 vezes nas páginas 14, 32 e 73.

CERN. *ROOT Data Analysis Framework*. 2016. Acesso: 01/09/2016. Disponível em: <<http://montecarlo.vtt.fi/>>. Citado na página 43.

CETNAR, J. General solution of bateman equations for nuclear transmutations. *Annals of Nuclear Energy*, v. 33, n. 7, p. 640 – 645, 2006. ISSN 0306-4549. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0306454906000284>>. Citado na página 43.

CHEN, K. et al. Vegas: A monte carlo simulation of intranuclear cascades. *Phys. Rev.*, American Physical Society, v. 166, p. 949–967, Feb 1968. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.166.949>>. Citado na página 20.

CHUNG, C.; HOGAN, J. J. Fission of ^{232}Th at energies up to 90 Mev. *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 24, p. 180–191, Jul 1981. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.24.180>>. Citado 5 vezes nas páginas 8, 27, 43, 46 e 48.

CHUNG, C.; HOGAN, J. J. ^{238}U fission at energies up to 100 Mev. *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 25, p. 899–908, Feb 1982. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.25.899>>. Citado na página 27.

CHUNG, K. C. *Introdução à Física Nuclear*. [S.l.]: EdUERJ, Rio de Janeiro, 2001. Citado na página 24.

CNEN. *Glossário de segurança nuclear*. [S.l.], 2015. Acesso: 18/06/2015. Disponível em: <<http://appasp.cnen.gov.br/seguranca/normas/pdf/glossario.pdf>>. Citado na página 30.

CUGNON, J. Proton-nucleus interaction at high energy. *Nuclear Physics A*, v. 462, n. 4, p. 751 – 780, 1987. ISSN 0375-9474. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375947487905756>>. Citado na página 20.

CUGNON, J.; VOLANT, C.; VUILLIER, S. Nucleon and deuteron induced spallation reactions. *Nuclear Physics A*, v. 625, n. 4, p. 729 – 757, 1997. ISSN 0375-9474. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947497006027>>. Citado na página 51.

DAVID, P. et al. High-energy photofission of gold and uranium. *Nuclear Physics A*, v. 197, n. 1, p. 163 – 176, 1972. ISSN 0375-9474. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375947472907531>>. Citado na página 27.

DEMEKHINA, N. A.; KARAPETYAN, G. S. Multimode approximation for ^{238}U photofission at intermediate energies. *Physics of Atomic Nuclei*, v. 71, n. 1, p. 27–35, 2008. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1134/S1063778808010031>>. Citado na página 27.

DEMEKHINA, N. A.; KARAPETYAN, G. S. Symmetric and asymmetric modes of ^{232}Th photofission at intermediate energies. *Physics of Atomic Nuclei*, v. 73, n. 1, p. 24–33, 2010. ISSN 1562-692X. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1134/S1063778810010047>>. Citado na página 27.

DEPPMAN, A. et al. Proton-induced fission on ^{241}Am , ^{238}U , and ^{237}Np at intermediate energies. *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 88, p. 024608, Aug 2013. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.88.024608>>. Citado na página 36.

DEPPMAN, A. et al. Supersymmetric fission of heavy nuclei induced by intermediate-energy protons. *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 88, p. 064609, Dec 2013. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.88.064609>>. Citado 2 vezes nas páginas 36 e 41.

DEPPMAN, A. et al. Photofission of ^{232}Th and ^{238}U at intermediate energies. *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 87, p. 054604, May 2013. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.87.054604>>. Citado na página 36.

DEPPMAN, A. et al. Monte carlo calculation of fragment distributions in nuclear reactions. *Science and Technology of Nuclear Installations*, v. 2012, p. 9, 2012. Disponível em: <<http://www.hindawi.com/journals/stni/2012/480343/cta/>>. Citado 4 vezes nas páginas 16, 36, 39 e 49.

DEPPMAN, A. et al. The CRISP package for intermediate- and high-energy photonuclear reactions. *Journal of Physics G: Nuclear and Particle Physics*, v. 30, n. 12, p. 1991, 2004. Disponível em: <<http://stacks.iop.org/0954-3899/30/i=12/a=016>>. Citado na página 36.

DEPPMAN, A. et al. Bremsstrahlung-induced fission and spallation of the pre-actinide nucleus ^{181}Ta . *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 91, p. 024620, Feb 2015. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.91.024620>>. Citado na página 36.

DEPPMAN, A. et al. Photofission and total photoabsorption cross sections in the energy range of shadowing effects. *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 73, p. 064607, Jun 2006. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.73.064607>>. Citado na página 36.

DEPPMAN, A. et al. The mcef code for nuclear evaporation and fission calculations. *Computer Physics Communications*, v. 145, n. 3, p. 385 – 394, 2002. ISSN 0010-4655. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0010465502002783>>. Citado na página 39.

DEPPMAN, A. et al. Photofissility of actinide nuclei at intermediate energies. *Phys. Rev. Lett.*, American Physical Society, v. 87, p. 182701, Oct 2001. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.87.182701>>. Citado na página 36.

DOSTROVSKY, I.; RABINOWITZ, P.; BIVINS, R. Monte carlo calculations of high-energy nuclear interactions. i. systematics of nuclear evaporation. *Phys. Rev.*, American Physical Society, v. 111, p. 1659–1676, Sep 1958. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.111.1659>>. Citado na página 39.

DUDERSTADT, J.; HAMILTON, L. *Nuclear Reactor Analysis*. New York: Wiley, 1976. 650p. Citado na página 31.

DUIJVESTIJN, M. C. et al. Proton-induced fission at 190 mev of ^{nat}W , ^{197}Au , ^{nat}Pb , ^{208}Pb , and ^{232}Th . *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 59, p. 776–788, Feb 1999. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.59.776>>. Citado na página 27.

ENQVIST, T. et al. Isotopic yields and kinetic energies of primary residues in 1 A GeV $^{208}\text{Pb}+p$ reactions. *Nuclear Physics A*, v. 686, n. 1–4, p. 481 – 524, 2001. ISSN 0375-9474. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947400005637>>. Citado 5 vezes nas páginas 10, 43, 49, 62 e 63.

GOLDBERGER, M. L. The interaction of high energy neutrons and heavy nuclei. *Phys. Rev.*, American Physical Society, v. 74, p. 1269–1277, Nov 1948. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.74.1269>>. Citado na página 17.

GUDOWSKI, W. Accelerator-driven transmutation projects. the importance of nuclear physics research for waste transmutation. *Nuclear Physics A*, v. 654, n. 1–2, p. C436 – C457, 1999. ISSN 0375-9474. Proceedings of the International Nuclear Physics Conference. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947499002699>>. Citado na página 51.

GUDOWSKI, W. Transmutation of nuclear waste. *Nuclear Physics A*, v. 663–664, p. 169c – 182c, 2000. ISSN 0375-9474. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947499005850>>. Citado na página 51.

IAEA. *Radioactive Waste Management Glossary*. [S.l.], 2003. Acesso: 18/06/2015. Disponível em: <http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/Pub1155_web.pdf>. Citado na página 30.

IAEA. *Liquid Metal Coolants for Fast Reactors Cooled by Sodium, Lead, and Lead-Bismuth Eutectic*. Vienna, 2012. Acesso: 01/02/2016. Disponível em: <http://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/P1567_web.pdf>. Citado na página 51.

IAEA. *IAEA – Benchmark of Spallation Models*. 2015. Acesso: 18/06/2015. Disponível em: <<https://www-nds.iaea.org/spallations>>. Citado na página 44.

J-PARC. *J-PARC – TEF: Transmutation Experimental Facility*. 2015. Acesso: 18/06/2015. Disponível em: <<http://j-parc.jp/Transmutation/en/index.html>>. Citado na página 44.

KALOS, M.; WHITLOCK, P. *Monte Carlo Methods*. 2nd. ed. [S.l.]: Wiley-Blackwell, Darnstadt, 2008. Citado 2 vezes nas páginas 33 e 35.

KIM, W. et al. Monte carlo analysis of the accelerator-driven system at kyoto university research reactor institute. *Nuclear Engineering and Technology*, v. 48, n. 2, p. 304 – 317, 2016. ISSN 1738-5733. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1738573315002569>>. Citado na página 43.

LAMARSH, J. R. *Introduction to nuclear reactor theory*. Reading, Mass.: Addison-Wesley Pub. Co, 1966. 585p. Citado na página 31.

LAMARSH, J. R. *Introduction to nuclear engineering*. Reading, Mass.: Addison-Wesley Pub. Co, 1975. 626p. Citado na página 31.

LANDAU, D. P.; BINDER, K. *A Guide to Monte-Carlo Simulations in Statistical Physics*. 3rd. ed. [S.l.]: Cambridge Univ. Press, New York, 2009. Citado na página 34.

LANL. *A General Monte Carlo N-Particle (MCNP) Transport Code*. 2016. Acesso: 01/02/2016. Disponível em: <<https://laws.lanl.gov/vhosts/mcnp.lanl.gov/mcnp5.shtml>>. Citado na página 42.

LERAY, S. et al. Spallation neutron production by 0.8, 1.2, and 1.6 GeV protons on various targets. *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 65, p. 044621, Apr 2002. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.65.044621>>. Citado 4 vezes nas páginas 9, 43, 58 e 74.

LERAY, S. et al. Results from the IAEA benchmark of spallation models. *J. Korean Phys.Soc.*, Journal of Korean Physical Societ, v. 59, p. 791–796, Aug 2011. Disponível em: <http://www.kps.or.kr/jkps/abstract_view.asp?articleuid=96AB861A-AE45-4722-826C-FCEDAE6B26DA>. Citado na página 44.

MAGALHÃES, M. N. *Probabilidade e Variáveis Aleatórias*. 2a. ed. [S.l.]: EdUSP, São Paulo, 2006. Citado 3 vezes nas páginas 34, 35 e 36.

MANCUSI, D. et al. Elusiveness of evidence for multifragmentation in 1-gev proton-nucleus reactions. *Phys. Rev. C*, American Physical Society, v. 84, p. 064615, Dec 2011. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevC.84.064615>>. Citado na página 50.

- MASLOV, V. Symmetric/asymmetric 238u neutron-induced fission up to 200 mev. *Nuclear Physics A*, v. 717, n. 1, p. 3 – 20, 2003. ISSN 0375-9474. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0375947403005931>>. Citado na página 27.
- MEDINA, I. *Estudos de processos a energias médias e altas pelo método Monte Carlo*. Tese (Doutorado) — Universidade de São Paulo, São Paulo, 2014. Disponível em: <<http://www.teses.usp.br/teses/disponiveis/43/43134/tde-02102014-143638/pt-br.php>>. Citado na página 38.
- METROPOLIS, N. et al. Monte carlo calculations on intranuclear cascades. i. low-energy studies. *Phys. Rev.*, American Physical Society, v. 110, p. 185–203, Apr 1958. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.110.185>>. Citado na página 18.
- METROPOLIS, N. C.; ULAM, S. M. The monte carlo method. *Journal of the American Statistical Association*, v. 44, n. 247, p. 335–341, 1949. PMID: 18139350. Disponível em: <<http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/01621459.1949.10483310>>. Citado 2 vezes nas páginas 17 e 34.
- MONGELLI, S. T. et al. Spallation physics and the ADS target design. *Brazilian Journal of Physics*, scielo, v. 35, p. 894 – 897, 09 2005. ISSN 0103-9733. Disponível em: <http://www.scielo.br/scielo.php?script=sci_arttext&pid=S0103-97332005000500048&nrm=iso>. Citado na página 37.
- NEA. *Handbook on Lead-bismuth Eutectic Alloy and Lead Properties, Materials Compatibility, Thermal-hydraulics and Technologies*. 2015. ed. [S.l.], 2015. Acesso: 05/04/2015. Disponível em: <<https://www.oecd-nea.org/science/pubs/2015/7268-lead-bismuth-2015.pdf>>. Citado na página 51.
- NIFENECKER, H. et al. Basics of accelerator driven subcritical reactors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, v. 463, n. 3, p. 428 – 467, 2001. ISSN 0168-9002. Accelerator driven systems. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900201001607>>. Citado 2 vezes nas páginas 13 e 31.
- NIX, J. R. Calculation of fission barriers for heavy and superheavy nuclei. *Annual Review of Nuclear Science*, American Physical Society, v. 22, p. 65–120, Dec 1972. Disponível em: <<http://dx.doi.org/10.1146/annurev.ns.22.120172.000433>>. Citado na página 40.
- ORNL. *SNS – Spallation Neutron Source*. 2015. Acesso: 18/06/2015. Disponível em: <<https://neutrons.ornl.gov/sns>>. Citado na página 51.
- PEREIRA, S. A. *Reações nucleares de alta energia ("Spallation") e sua aplicação em cálculo de sistemas nucleares acionados por Fonte*. Tese (Doutorado) — Universidade de São Paulo, São Paulo, 2002. Disponível em: <http://pelicano.ipen.br/PosG30/TextoCompleto/Sergio%20Anefalos%20Pereira_D.pdf>. Citado na página 43.
- PROKOFIEV, A. Compilation and systematics of proton-induced fission cross-section data. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, v. 463, n. 3, p. 557 – 575,

2001. ISSN 0168-9002. Accelerator driven systems. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S016890020100170X>>. Citado 2 vezes nas páginas 8 e 47.

PSI. *Paul Scherrer Institut – Spallation Target*. 2015. Acesso: 18/06/2015. Disponível em: <<http://www.psi.ch/bsq/spallation-target>>. Citado na página 44.

RODRIGUES, T. *O modelo de cascata intranuclear MCMC e aplicações para o mecanismo do quase-dêuteron e a fotoprodução de pions em energias intermediárias e altas*. Tese (Doutorado) — Universidade de São Paulo, São Paulo, 2005. Disponível em: <<http://www.teses.usp.br/teses/disponiveis/43/43134/tde-27042009-114231/pt-br.php>>. Citado na página 37.

ROSSI, P. C. R. *Um conceito alternativo de um reator híbrido (conjunto sub-crítico acoplado com acelerador)*. Tese (Doutorado) — Universidade de São Paulo, São Paulo, 2011. Disponível em: <<http://www.teses.usp.br/teses/disponiveis/85/85133/tde-16062011-132603/pt-br.php>>. Citado na página 43.

RUBBIA, C. et al. Conceptual design of a fast neutron operated high power energy amplifier. *CERN*, Sep 1995. Disponível em: <<https://www.oecd-nea.org/trw/docs/rubbia/concept.pdf>>. Citado 2 vezes nas páginas 32 e 73.

RUBCHENYA, V. et al. Neutron and fragment yields in proton-induced fission of ^{238}U at intermediate energies. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, v. 463, n. 3, p. 653 – 662, 2001. ISSN 0168-9002. Accelerator driven systems. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900201001760>>. Citado na página 27.

SCK·CEN. *MYRRHA – Multi-purpose hybrid research reactor for high-tech applications*. 2015. Acesso: 18/06/2015. Disponível em: <<http://myrrha.sckcen.be/>>. Citado na página 44.

SERBER, R. Nuclear reactions at high energies. *Phys. Rev.*, American Physical Society, v. 72, p. 1114–1115, Dec 1947. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.72.1114>>. Citado na página 17.

SERPENT. *A continuous-energy Monte Carlo reactor physics burnup calculation code*. 2016. Acesso: 01/09/2016. Disponível em: <<http://montecarlo.vtt.fi/>>. Citado na página 43.

STACEY, W. M. *Nuclear Reactor Physics*. 2nd. ed. Weinheim: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2007. ISBN 978-3-527-40679-1. Citado 2 vezes nas páginas 32 e 73.

TURNER, L. A. Nuclear fission. *Rev. Mod. Phys.*, American Physical Society, v. 12, p. 1–29, Jan 1940. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.12.1>>. Citado na página 24.

ULAM, S. M.; NEUMANN, J. von. On combination of stochastic and deterministic processes. In: *The Summer meeting in New Haven*. Bulletin of the American Mathematical Society, 1947. v. 53, n. 11, p. 1120. Disponível em: <<http://www-ams-org.ez67.periodicos.capes.gov.br/journals/bull/1947-53-11/S0002-9904-1947-08918-7/S0002-9904-1947-08918-7.pdf>>. Citado 2 vezes nas páginas 17 e 34.

VANDENBOSCH, R.; HUIZENGA, J. *Nuclear Fission*. New York: Academic Press Inc., 1973. 422p. Citado 3 vezes nas páginas 24, 25 e 27.

WEISSKOPF, V. Statistics and nuclear reactions. *Phys. Rev.*, American Physical Society, v. 52, p. 295–303, Aug 1937. Disponível em: <<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.52.295>>. Citado na página 21.

YAMAMOTO, A.; SHIROYA, S. Study on neutronics design of accelerator driven subcritical reactor as future neutron source, part 1: static characteristics. *Annals of Nuclear Energy*, v. 30, n. 14, p. 1409 – 1424, 2003. ISSN 0306-4549. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S030645490300077X>>. Citado na página 43.

YAMAMOTO, A.; SHIROYA, S. Study on neutronics design of accelerator driven subcritical reactor as future neutron source, part 2: kinetic characteristics. *Annals of Nuclear Energy*, v. 30, n. 14, p. 1425 – 1435, 2003. ISSN 0306-4549. Disponível em: <<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0306454903000781>>. Citado na página 43.