

# MEDIDA DE ÍNDICES ESPECTRAIS POR VARREDURA GAMA DA VARETA COMBUSTÍVEL NO REATOR IPEN/MB-01

Leda C. C. B. Fanaro, Adimir dos Santos e Paulo T. D. Siqueira

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN / CNEN - SP)  
Av. Professor Lineu Prestes 2242  
05508-000 São Paulo, SP  
lcfanaro@ipen.br

## RESUMO

Os índices espectrais  $^{28}\rho$  e  $^{25}\delta$  são medidos pela técnica da varredura gama da vareta combustível, através da contagem integral dos fotopicos do  $^{239}\text{Np}$  (277,6 keV) e do  $^{143}\text{Ce}$  (293,3 keV), que permite a coleta dos dados nas condições do sistema perturbado e não-perturbado da mesma irradiação. Este fato possibilita a eliminação da maioria dos fatores de correções advindos dos cálculos. A análise teórica do experimento é efetuada com o programa MCNP-4C.

## 1. INTRODUÇÃO

Historicamente os índices espectrais  $^{28}\rho$  e  $^{25}\delta$  têm sido determinados por meio da irradiação de folhas de urânio nuas e cobertas com cádmio [1]. O presente trabalho introduz um método experimental inédito para a obtenção desses índices espectrais no qual é eliminada a necessidade de manter o nível de potência nas irradiações, bem como em quase a sua totalidade, dos fatores de correções.

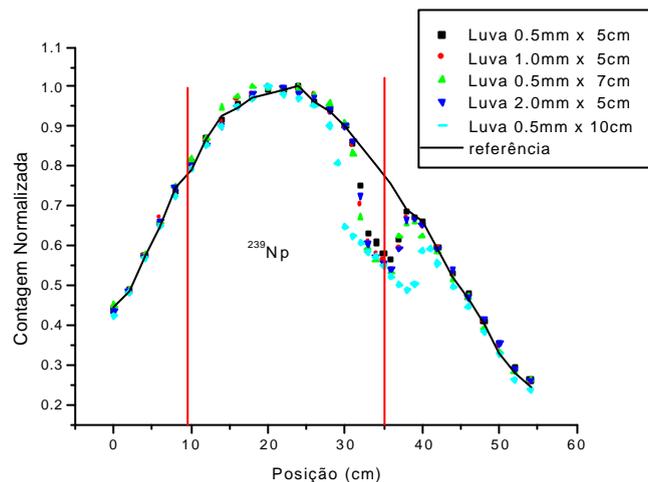
Através desta técnica as medidas dos índices espectrais  $^{28}\rho$  e  $^{25}\delta$ , no reator IPEN/MB-01, são realizadas sem a utilização de folhas de ativação e numa única operação do reator. Inicialmente determinam-se dois pontos simétricos de densidade de potência, na região assintótica da vareta combustível, na posição central do núcleo do reator (vareta M14). A medida consiste na operação do reator com a vareta combustível central envolta por uma luva de cádmio centrada num dos pontos selecionados, e a espectrometria gama é executada nesses pontos simétricos, utilizando-se o detector de HPGe e sua instrumentação associada.

Os dados experimentais consideram a contagem integral dos fotopicos do  $^{239}\text{Np}$  (277,6 keV) e do  $^{143}\text{Ce}$  (293,3 keV). A análise teórica do experimento é efetuada com o programa MCNP-4C [2] considerando uma descrição tridimensional do sistema, simulando a luva de cádmio.

## 2. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Inicialmente determinam-se dois pontos simétricos de densidade de potência, na região assintótica da vareta combustível, na posição central do núcleo do reator (M14). Para tanto, irradia-se uma vareta combustível experimental e a seguir realiza-se a varredura gama em toda sua região ativa. Através da análise do perfil de distribuição axial de densidade de potência, determinam-se dois pontos simétricos com a mesma densidade de potência, onde serão realizadas as medidas. Após terem sido definidos os pontos, a medida consiste em

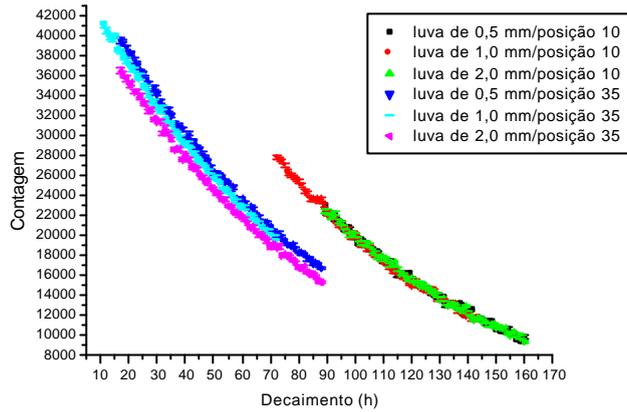
irradiar-se a vareta combustível por 1 hora, na potência de 100 W, revestindo-se um dos pontos com uma luva externa de cádmio. Todas as medidas foram realizadas para a condição: posição 10 cm nua e posição 35 cm no centro da luva de cádmio. Várias luvas de cádmio foram utilizadas e comprovou-se que a presença da luva de cádmio não perturba a distribuição de densidade de potência na posição nua, a perturbação é local, limitada às proximidades da luva, como mostra a Figura 1.



**Figura 1. Perturbação da Distribuição de Densidade de Potência pela Luva.**

A espectrometria gama é executada utilizando-se o detector de HPGe e sua instrumentação associada. Os dados experimentais consideram a contagem integral dos fotopicos do  $^{239}\text{Np}$  (277,6 keV) e do  $^{143}\text{Ce}$  (293,3 keV). A escolha do  $^{143}\text{Ce}$  como produto de fissão monitorado deve-se a dois fatores importantes: primeiro, o tempo de espera para o início da contagem é relativamente curto e segundo, a maior eficiência global de detecção propicia uma maior estatística de contagem para um mesmo tempo de aquisição. A aquisição é efetuada de maneira automática. Após cerca de 24 h de decaimento inicia-se a espectrometria gama no ponto revestido com cádmio por cerca de 72 h e a seguir a espectrometria gama no ponto sem cádmio por cerca de 72 h. Isto se deve ao fato do tempo morto ser muito alto na posição nua logo após a irradiação e também devido à contagem na posição com cádmio ser muito mais baixa do que na posição nua, principalmente do fotopico do  $^{143}\text{Ce}$ .

As curvas de decaimento são traçadas e estes dados são ajustados por uma função exponencial usando-se o código ORIGIN. Os coeficientes de amplitude da função exponencial, para as posições da vareta combustível nua e coberta com cádmio são as contagens integrais dos fotopicos do  $^{239}\text{Np}$  e do  $^{143}\text{Ce}$  no instante imediatamente após o término da irradiação ( $N_{\text{Np}}$  e  $N_{\text{Ce}}$ ). A Figura 2 mostra novamente que as luvas de cádmio centradas na posição 35 não perturbam a densidade de potência na posição 10, e que na posição 35 ela é tão menor quanto maior for a espessura da luva.



**Figura 2. Decaimento do  $^{239}\text{Np}$  nas posições 10 e 35**

Os índices espectrais  $^{28}\rho^*$  e  $^{25}\delta^*$ , obtidos experimentalmente conforme o método proposto, são funções tanto do comprimento das luvas de cádmio como também da espessura das mesmas. A notação  $*$  refere-se ao corte térmico do cádmio, neste caso, o corte térmico também é função da espessura e do comprimento da luva e não há a transformação para o valor 0,625 eV. Os fatores de correção que permanecem são a relação da eficiência de contagem na posição perturbada, o rendimento de fissão efetivo do  $^{143}\text{Ce}$  e a fração de fissão do  $^{235}\text{U}$ .

## 2.1 Determinação Experimental dos Índices Espectrais

A contagem integral dos fotopicos do  $^{239}\text{Np}$  e do  $^{143}\text{Ce}$  durante o período de decaimento segue uma lei exponencial. As seguintes relações são utilizadas para obter a taxa de reação relativa em função das taxas de contagem dos raios gama medidos. Para a taxa de captura [3] tem-se:

$$C_8 = \frac{\lambda_{\text{U9}} - \lambda_{\text{Np}}}{\lambda_{\text{U9}}} \frac{\lambda_{\text{Np}} N_{\text{Np}}}{g_{\text{Np}} \eta_{\text{Np}} [1 - \exp(-\lambda_{\text{Np}} t_m)] \exp(-\lambda_{\text{Np}} t_e) [1 - \exp(-\lambda_{\text{Np}} t_c)]}, \quad (1)$$

e para a taxa de fissão [3] tem-se:

$$F = \frac{\lambda_{\text{Ce}} N_{\text{Ce}}}{\bar{Y}_{\text{Ce}} g_{\text{Ce}} \eta_{\text{Ce}} [1 - \exp(-\lambda_{\text{Ce}} t_m)] \exp(-\lambda_{\text{Ce}} t_e) [1 - \exp(-\lambda_{\text{Ce}} t_c)]}, \quad (2)$$

onde:  $\lambda_i$  é a constante de decaimento do nuclídeo  $i$  ( $\text{Np} = ^{239}\text{Np}$ ,  $\text{U9} = ^{239}\text{U}$  e  $\text{Ce} = ^{143}\text{Ce}$ ),  $N_i$  é a contagem do fotopico para o nuclídeo  $i$ ,  $g_i$  é a probabilidade de emissão de raio gama do nuclídeo  $i$ ,  $\eta_i$  é a eficiência para detecção do raio gama do nuclídeo  $i$ ,  $t_e$ ,  $t_c$ ,  $t_m$  são os tempos de espera, contagem e irradiação, respectivamente e  $\bar{Y}_{\text{Ce}}$  é o rendimento de fissão efetivo do  $^{143}\text{Ce}$ , definido por:

$$\bar{Y}_{Ce} = \frac{Y_{Ce}^{25} (\sum_f \Phi)_{25} + Y_{Ce}^{28} (\sum_f \Phi)_{28}}{(\sum_f \Phi)_{25} + (\sum_f \Phi)_{28}}, \quad (3)$$

onde:  $Y_{Ce}^i$  é o rendimento de fissão do  $^{143}\text{Ce}$  para o radioisótopo  $i$  ( $25=^{235}\text{U}$  e  $28=^{238}\text{U}$ ) e  $(\sum_f \Phi)_i$  é a taxa de fissão do radioisótopo  $i$ .

A contagem do fotopico medida no experimento é proporcional a  $Y^{25} \sum_f^{25} \Phi + Y^{28} \sum_f^{28} \Phi$ .

Desse modo quando divide-se essa grandeza por  $\bar{Y}_{Ce}$  obtém-se a taxa de fissão total conforme expressa pela equação:

$$(\sum_f^{25} + \sum_f^{28}) \Phi = \frac{(Y^{25} \sum_f^{25} \Phi + Y^{28} \sum_f^{28} \Phi)}{\bar{Y}_{Ce}}. \quad (4)$$

Assim a taxa de fissão no  $^{235}\text{U}$  é dada por  $F_{25} (\sum_f^{25} + \sum_f^{28}) \Phi$ , onde  $F_{25}$  é a fração de fissão no  $^{235}\text{U}$ . Os índices espectrais  $^{28}\rho$  e  $^{25}\delta$  são definidos como sendo:

$$IE = \frac{\text{Valor Perturbado}}{\text{Valor Não Perturbado} - \text{Valor Perturbado}}, \quad (5)$$

onde: IE representa o índice espectral ( $\rho^{28}$  ou  $\delta^{25}$ ), valor perturbado significa medida na posição com cádmio e valor não perturbado significa medida na posição sem cádmio.

Substituindo-se as Equações 1 e 2 na Equação 5 vários termos são cancelados e tem-se:

$$IE = \frac{\epsilon_i \frac{h_i}{h_i^*} N_i^*}{N_i - \epsilon_i \frac{h_i}{h_i^*} N_i^*}, \quad (6)$$

onde:  $\eta_i$  é a eficiência para detecção gama do nuclídeo  $i$ , não perturbado,  $h_i^*$  é a eficiência para detecção gama do nuclídeo  $i$ , perturbado,  $N_i$  é a contagem do fotopico para o nuclídeo  $i$ , não perturbado,  $N_i^*$  é a contagem do fotopico para o nuclídeo  $i$ , perturbado e  $\epsilon_i = 1,0$  para o  $\rho^{28}$  e para o  $\delta^{25}$  é dado por:

$$\epsilon_i = \frac{F_{25}^* \bar{Y}_{Ce}}{F_{25} Y_{Ce}^*} \quad (7)$$

Os índices espectrais  $^{28}\rho^*$  e  $^{25}\delta^*$  definidos na Equação 6 são determinados considerando-se o valor perturbado como medido na posição 35 (centro da luva de cádmio) e o valor não perturbado medido na posição 10 (nua).

Durante a realização das medidas não é possível distinguir o  $^{143}\text{Ce}$  produzido pelas fissões no  $^{235}\text{U}$  do produzido devido às fissões no  $^{238}\text{U}$ , desse modo o que se mede é a emissão gama

total do  $^{143}\text{Ce}$ . A tabela 1 mostra os valores medidos para as diferentes espessuras das luvas de cádmio com 5 cm de altura.

**Tabela 1 Valores Medidos das Contagens do Fotopico do  $^{239}\text{Np}$  e  $^{143}\text{Ce}$ .**

Espessura do Cd (mm)	$^{239}\text{Np}$ (Incerteza)		$^{143}\text{Ce}$ (Incerteza)	
	Posição 10	Posição 35	Posição 10	Posição 35
0,5	$6,7938 \cdot 10^4$ (87)	$4,9113 \cdot 10^4$ (41)	$5,8975 \cdot 10^4$ (176)	$8,4023 \cdot 10^3$ (33)
1,0	$6,7412 \cdot 10^4$ (63)	$4,7340 \cdot 10^4$ (29)	$5,8702 \cdot 10^4$ (138)	$7,9723 \cdot 10^3$ (22)
2,0	$6,7933 \cdot 10^4$ (88)	$4,5355 \cdot 10^4$ (40,)	$5,8705 \cdot 10^4$ (178)	$7,4093 \cdot 10^3$ (33)

### 3. ANÁLISE TEÓRICA DO EXPERIMENTO

Paralelamente à execução dos experimentos, foi realizada uma avaliação teórica dos mesmos a partir de simulação com o programa MCNP-4C que é um código de transporte de nêutrons e radiação  $\gamma$  baseado no método Monte Carlo. O núcleo do reator IPEN/MB-01, à exceção das barras de segurança e dos detectores, foi modelado integralmente. Cada simulação, tipicamente com dois bilhões de histórias, demorou aproximadamente 10 dias para um processamento paralelo utilizando quatro processadores do CLUSTER (procedimento análogo). Para a obtenção de resultados mais precisos, adotaram-se dois procedimentos distintos na execução dos cálculos: o análogo e o reduzido.

O procedimento reduzido constitui-se na adoção da truncagem geométrica que é uma das variantes do método de redução de variância. Este procedimento, que é dividido em duas etapas, apresenta um tempo de execução muito inferior ao procedimento análogo mesmo utilizando um único processador. Inicialmente utiliza-se o procedimento análogo com a simulação de apenas 50 milhões de histórias com a opção de geração de fonte fixa (WSSA). Esta opção permite gravar ao longo dos ciclos ativos da simulação, todas as partículas que entram na região de interesse, bem como todas aquelas que são geradas dentro desta região que é compreendida por um paralelepípedo tão extenso quanto a descrição da vareta simulada (98 cm). Por esta razão somente as partículas que entraram na região central através dos planos laterais foram gravadas nos arquivos de fonte fixa. Numa segunda etapa, simula-se o sistema representando-o apenas pela região central e utiliza-se o arquivo de fonte fixa previamente criado como fonte de entrada. A Tabela 1 mostra os resultados obtidos com os dois métodos utilizando-se a biblioteca de dados ENDFB-IV.8 [4].

Verifica-se que os dois métodos fornecem resultados estatisticamente compatíveis, e as incertezas associadas ao método reduzido é aproximadamente metade da obtida pelo método análogo. Isto se deve ao maior número de histórias simuladas possibilitadas pelo menor tempo de execução requerido por este método. Calculando-se a média ponderada para cada índice espectral associado a uma espessura específica da luva de Cd, obtém-se a melhor estimativa teórica para os parâmetros analisados.

**Tabela 1. Índices Espectrais Calculados para Diferentes Espessuras da Luva de Cd.**

Espessura (mm)	Método				Estimativa Teórica	
	Análogo		Reduzido		$^{28}\mathbf{r}$	$^{25}\mathbf{d}$
	$^{28}\mathbf{r}$	$^{25}\mathbf{d}$	$^{28}\mathbf{r}$	$^{25}\mathbf{d}$		
0,5	2,262 (52)	0,1391 (52)	2,203 (25)	0,1384 (32)	2,214 (23)	0,1386 (27)
1,0	2,014 (59)	0,1267 (68)	2,075 (24)	0,1280 (29)	2,066 (22)	0,1287 (27)
2,0	1,769 (35)	0,1169 (45)	1,857 (17)	0,1181 (25)	1,840 (15)	0,1178 (22)

#### 4. COMPARAÇÃO DOS ÍNDICES ESPECTRAIS CALCULADOS X MEDIDOS

A auto-blindagem gama associada às diferenças entre perfis radiais de taxa de reação, existente das duas regiões de inter-comparação (com e sem Cd), é responsável pela apresentação de diferentes valores de eficiência de detecção gama, o que impõe a inclusão de um termo de correção para a correta avaliação dos índices espectrais, particularmente do  $^{28}\mathbf{r}$ :

Buscando apresentar um fator de correção para a diferença de eficiência geométrica de detecção do fotopico  $^{239}\text{Np}$  referentes às posições de inter-comparação com e sem Cd, calculou-se o perfil radial de taxa de captura de nêutrons pelo  $^{238}\text{U}$  no elemento combustível nas cotas correspondentes, 35 cm e 10 cm respectivamente.

O perfil de taxa de captura foi obtido pelo cálculo deste parâmetro em dez posições radiais diferentes, caracterizada pela divisão da região normalmente amostrada (um cilindro com diâmetro da pastilha combustível e com 1 cm de altura) em dez regiões concêntricas (1 disco e 9 anéis) de mesmo volume.

Posteriormente, adotaram-se estes diferentes perfis radiais de intensidade de captura radioativa para caracterizar as fontes das simulações nos casos em que uma fonte de fótons monocromáticos (277,6 keV) são amostrados numa pastilha combustível de 1 cm de altura. Calculou-se, em cada uma das simulações, o número de fótons que chegavam à superfície do detector posicionado a 10 cm do centro da pastilha. Nestas simulações restringiu-se a descrição do sistema vareta-detector à região compreendida entre os 2 planos paralelos, distantes 1 cm, que delimitam a pastilha-fonte.

Verificou-se, nestes cálculos, que existe uma diferença de 3% entre as eficiências calculadas, ou seja, a fonte descrita por um perfil radial correspondente à região sem luva de Cd apresenta uma eficiência geométrica de detecção do fotopico do  $^{239}\text{Np}$  cujo valor equivale a 97% do valor obtido por uma fonte descrita por um perfil radial correspondente à região com luva de Cd. O cálculo da taxa de fissão do  $^{238}\text{U}$  também foi executado devido à necessidade de avaliar a contribuição da fissão deste nuclídeo ( $F^{28}$ ) na composição do rendimento efetivo de produção de  $^{143}\text{Ce}$  ( $Y_{\text{eff}}$ ). A Tabela 2 mostra os valores dos fatores de correção determinados para o experimento.

**Tabela 2. Fatores de Correção Calculados**

Fator	Condição	Espessura da Luva (mm)		
		0,5	1,0	2,0
$\bar{Y}$ (%)	s/Cd	5,885	5,884	5,884
	c/Cd	5,649	5,628	5,612
$F_{25}$	s/Cd	0,960	0,960	0,960
	c/Cd	0,789	0,773	0,761
$\eta_{Np} / \eta_{Np}^*$		0,97	0,97	0,97
$\eta_{Ce} / \eta_{Ce}^*$		1,00	1,00	1,00

Corrigindo-se adequadamente as taxas de contagem medidas obtêm-se os índices espectrais  $\rho^{28}$  e  $\delta^{25}$ . Os parâmetros calculados com o código MCNP-4C foram comparados com os valores medidos como mostra a Tabela 3.

**Tabela 3. Comparação entre os Valores Calculados e os Resultados Experimentais.**

Espessura Cd (mm)	$^{28}\rho$			$^{25}\delta$		
	Cálculo	Experimento	C/E (%)	Cálculo	Experimento	C/E (%)
0,5	2,214	2,3469	-5,66	0,1386	0,1389	-0,22
1,0	2,066	2,1366	-3,30	0,1287	0,1291	-0,31
2,0	1,840	1,8379	0,11	0,1178	0,1172	0,49

## 5. CONCLUSÕES

Há uma boa concordância entre os valores calculados e os medidos. O desvio máximo encontrado é de 5,66 %, para o  $^{28}\rho$  com luva de cádmio de 0,5 mm de espessura. Pode-se afirmar que a metodologia empregada na determinação desses índices espectrais é eficiente. Em trabalhos futuros deve ser proposta uma técnica para medida do fator de auto-blindagem e dessa forma melhorarmos a medida do parâmetro  $^{28}\rho$ , sem a utilização de fatores de correção advindos de cálculos.

## AGRADECIMENTOS

À FAPESP pelo financiamento do projeto de pesquisa 2001/14450-0 que possibilitou a compra do detector HPGe e de módulos eletrônicos para a automação do sistema de movimentação das varetas combustíveis.

## REFERÊNCIAS

1. U. Bitelli., “Medida de Parâmetros Integrais no Reator IPEN/MB-01”, *Tese de Doutorado IPEN-CNEN/SP*, (2001).
2. “MCNP4C - Monte Carlo N-Particle Transport Code System”, *RSICC Computer Code Collection*, Oak Ridge National Laboratory, CCC-70 MCNP4C, (March 2001).
3. K. Nakajima and M.Akai, “Modified Conversion Ratio Measurement Light Water-Moderated UO<sub>2</sub> Lattices”, *Nuclear Technology*, **113**, pp. 375-379, (Mar.ch 1996).
4. “ENDF/B-VI Summary Documentation”, BNL-NCS-17451 (ENDF-201), 4<sup>th</sup> ed. (ENDF/B-VI), P.F.Rose, Ed., National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, Release-8, (2000).