

DETERMINAÇÃO DA QUEIMA DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS DO  
REATOR IEAR-1 PELO MÉTODO NÃO DESTRUTIVO DE ESPECTROMETRIA GAMA

TUFIC MADI FILHO

E

LAO HOLLAND

Centro de Engenharia Nuclear

Área de Física de Reatores

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares

São Paulo - SP

RESUMO

Foram feitas determinações de queima, por espectrometria gama não destrutiva de elementos combustíveis usados de baixa (IEA-14) e de alta atividade (IEA-80) do reator IEAR-1, usando o Cs-137 como monitor de queima. Para medir a distribuição de Cs-137 nesses elementos foi usado um detector Ge(Li) de volume =  $73,7\text{cm}^3$ , em dois sistemas de medidas com geometria definida e boa colimação. O IEA-14, retirado do caroço a aproximadamente 20 anos, apresenta um espectro gama essencialmente devido ao Cs-137. O IEA-80, com tempo de resfriamento de aproximadamente 5 anos, mostra um espectro gama mais complexo devido a outros produtos de fissão ainda presentes em quantidades significativas. As medidas do IEA-14 foram feitas em um sistema de medidas usado fora da piscina do reator (S.I), sendo a eficiência global desse sistema obtida, usando-se uma fonte de Ag-110m plana, extensa e calibrada. Medidas detalhadas da transmissão gama, usando fonte de Cs-137 puntiforme calibrada, demonstraram a alta homogeneidade das placas combustíveis. (autor).

As medidas da atividade do IEA-80 foram feitas num segundo sistema (S.II) com o elemento combustível posicionado a 2,17m da superfície da piscina do reator. Esse sistema foi calibrado usando o IEA-14. (autor).

## I. INTRODUÇÃO

Atualmente a queima dos elementos combustíveis do reator IEAR-1 é calculada usando-se o método de energia térmica que utiliza a energia total gerada e a distribuição do fluxo de nêutrons no reator.

Com a finalidade de verificar os resultados desses cálculos e possivelmente aumentar o tempo de uso desses elementos, foram feitas medidas para cálculo da queima de dois elementos combustíveis pelo método não destrutivo de espectrometria gama. Nesse método a queima é relacionada com a atividade gama proveniente do decaimento de produtos de fissão, que funcionam como registro da densidade de fissão. Quando a meia vida do produto de fissão radioativo usado como monitor é longa, em comparação com o tempo de irradiação, pode-se calcular a integral do fluxo no tempo a partir da densidade do monitor. Desse modo evita-se um extensivo tratamento do fluxo no tempo, evitando assim a necessidade de conhecer a história de irradiação do elemento. O Cs-137, com meia vida de 30 anos e com um pico ( $E_{\gamma} = 661,6$  kev) bem definido é muito usado como monitor de fissão.

A determinação da distribuição da queima dos elementos combustíveis é necessária para a operação do reator e otimização do ciclo do combustível nuclear. Erros nos valores de queima introduzem erros nos cálculos de utilização do combustível, enriquecimento, equipamento de transporte, blindagem requerida e reprocessamento do combustível. Todos estes fatores afetam o custo da geração da energia /3,8/.

Para o cálculo dessa distribuição de queima por métodos não destrutivos, geralmente é necessário conhecer a distribuição do fluxo de nêutrons no reator. Na medida desse fluxo podem ser usados vários tipos de detectores. Mas, de modo geral, o próprio detector provoca uma distorção no fluxo que está sendo medido, e desta forma são introduzidos erros nos cálculos de queima.

A espectrometria gama não destrutiva é um método importante para a medida de queima dos elementos combustíveis irradiados. A análise da intensidade e distribuição da radiação gama, emitida pelos produtos de fissão contidos no elemento combustível, fornece o valor da fração de combustível consumida durante o período de irradiação /2/. Para produtos de fissão, monitores de fissão, com meia vida longa em comparação com o tempo de irradiação, é possível calcular a queima sem necessidade de conhecimento da distribuição do fluxo de nêutrons.

## II. TEORIA : EQUAÇÕES PARA CÁLCULO DO CONSUMO DE COMBUSTÍVEL

O cálculo do consumo é significativamente simplificado, usando a variável  $W$  denominada integral do fluxo no tempo ou exposição definida por :

$$W = \int_0^t \phi(t') dt' \quad (1) \quad //$$

Desse modo, no lugar de escrevermos as equações de consumo de U-235, U-238, formação e consumo de Pu-239 em função do tempo, as escrevemos em função de  $W$  /5/.

$$Q_{125}(W) = N_{25}(0) [1 - e^{-\bar{\sigma}_{a25} W}] \quad (2)$$

$$Q_{238}(W) = N_{28}(0) [1 - e^{-\bar{\sigma}_{a28} W}] \quad (3)$$

$$F_{49}(W) = N_{28}(0) \frac{\bar{\sigma}_{c28}}{\bar{\sigma}_{a28}} [1 - e^{-\bar{\sigma}_{a28} W}] \quad (4)$$

$$Q_{49}(W) = N_{28}(0) \frac{\bar{\sigma}_{c28} \bar{\sigma}_{a49}}{\bar{\sigma}_{a49} - \bar{\sigma}_{a28}} \left[ \frac{1 - e^{-\bar{\sigma}_{a28} W}}{\bar{\sigma}_{a28}} - \frac{1 - e^{-\bar{\sigma}_{a49} W}}{\bar{\sigma}_{a49}} \right] \quad (5)$$

onde

$N_A(0)$  = número de átomos iniciais do isótopo físsil ou fissionável, iniciais do isótopo físsil ou fissionável, inicialmente presente no elemento combustível.

$\bar{\sigma}_{aA}$  = secção de choque média de absorção do isótopo A.

$\bar{\sigma}_{cA}$  = secção de choque média de captura do isótopo A.

$Q_A(W)$  = consumo do isótopo A, em função de  $W$ .

$F_A(W)$  = formação do isótopo A, em função de  $W$ .

Depois de ser retirado do caroço, a densidade de cada produto de fissão formado poderá ser calculada por:

$$R_o = \frac{C}{\lambda e^{-\lambda t_r} + \lambda \bar{\epsilon} F_{ab} F_R \eta \sum_{i=1}^n (F_T)^{i-1}} \quad (6)$$

onde

$C$  = contagem medida

$\lambda$  = constante de decaimento do produto de fissão

$t_r$  = tempo de resfriamento (intervalo de tempo entre a retirada do caroço e a medida)

$T$  = tempo de contagem

$\bar{\epsilon}$  = espessura da placa do elemento combustível

$\bar{\epsilon}$  = fração de emissão gama na energia considerada

$F_{ab}$  = fator de auto-absorção de raios gama (para parte ativa da placa)

$F_R$  = fator de transmissão de raios gama, de uma das faces do revestimento da parte ativa

$\eta = \eta_i \alpha_i$  = constante = produto da eficiência global do sistema de detecção para a posição de cada placa pela área definida pelo ângulo sólido sobre cada placa.

$(F_T)^{i-1}$  = fator de transmissão de raios gama para a  $i$ -ésima placa, pelo fato de ter  $i-1$  placas sobre ela.

Sendo  $f_c$  = fator de correção para o decaimento desse produto de fissão ocorrido durante a irradiação, temos que a densidade total corrigida pa-

ra o decaimento é :

$$N_x = f_C R_0.$$

Dependendo do período de irradiação, e do produto de fissão escolhido, podemos desprezar seu consumo durante a irradiação /5/. Para o Cs-137, produto de fissão usado neste trabalho como monitor, seu consumo para o tempo de permanência dos elementos no caroço é considerado desprezível uma vez que sua secção de choque de absorção de nêutrons é pequena, sendo :

$$\sigma_a (2200\text{m/s}) = (0,11 \pm 0,03) \text{ barns e R.I. (integral de ressonância)} = (0,3 \pm 0,3) \text{ barns 141.}$$

Em resumo para obter o valor de queima dos elementos combustíveis estudados, as etapas são as seguintes :

- 1) determinar o valor dos parâmetros que influem no cálculo de  $R_0$ ;
- 2) calcular  $R_0$ ;
- 3) determinar  $f_C$  e então calcular  $N_x$ ;
- 4) com o valor de  $N_x$ , calcular  $W$
- 5) com o valor de  $W$  determinar a queima.

O valor de  $W$  usado como artifício para calcular a queima é introduzido porque o valor da queima não é devido apenas à fissão, mas também à transformação do urânio por absorção de nêutrons. Além disso o Cs-137 produzido é devido à fissão do U-235, U-238 e Pu-239. O valor de  $W$  é calculado através da equação :

$$N_x(W) = N_{25}^{(0)} \frac{\bar{\sigma}_{235}}{\bar{\sigma}_{235}} \gamma_1 [1 - e^{-\bar{\sigma}_{235} W}] + N_{26}^{(0)} \frac{\bar{\sigma}_{238}}{\bar{\sigma}_{238} - \bar{\sigma}_{235}} \gamma_2 \left[ \frac{1 - e^{-\bar{\sigma}_{238} W}}{\bar{\sigma}_{238}} - \frac{1 - e^{-\bar{\sigma}_{235} W}}{\bar{\sigma}_{235}} \right] + N_{26}^{(0)} \frac{\bar{\sigma}_{238}}{\bar{\sigma}_{238}} \gamma_3 [1 - e^{-\bar{\sigma}_{238} W}] \quad (7)$$

sobre esta equação foi usada a simplificação :  $1 - e^{-x} = x + \frac{x^2}{2!}$

$Y$  = taxa de formação por fissão

### III. ELEMENTOS DE TESTE E SISTEMAS DE MEDIDAS

#### III.1 Elementos Combustíveis

Neste trabalho foi feita a determinação da queima de dois elementos combustíveis usados do reator IEAR-1 : IEA-14 e 80. Esses elementos são do tipo M.T.R. (Material Testing Reactor), tem placas tipo sanduíche, nas quais a liga urânio-alumínio é revestida por duas placas de alumínio. O IEA-14 (Fig. 1.a) possui 19 placas curvas, o IEA-80 (Fig. 1.b) possui 18 placas planas e paralelas. Na Tabela 1 são apresentados dados de fabricação e utilização desses elementos.

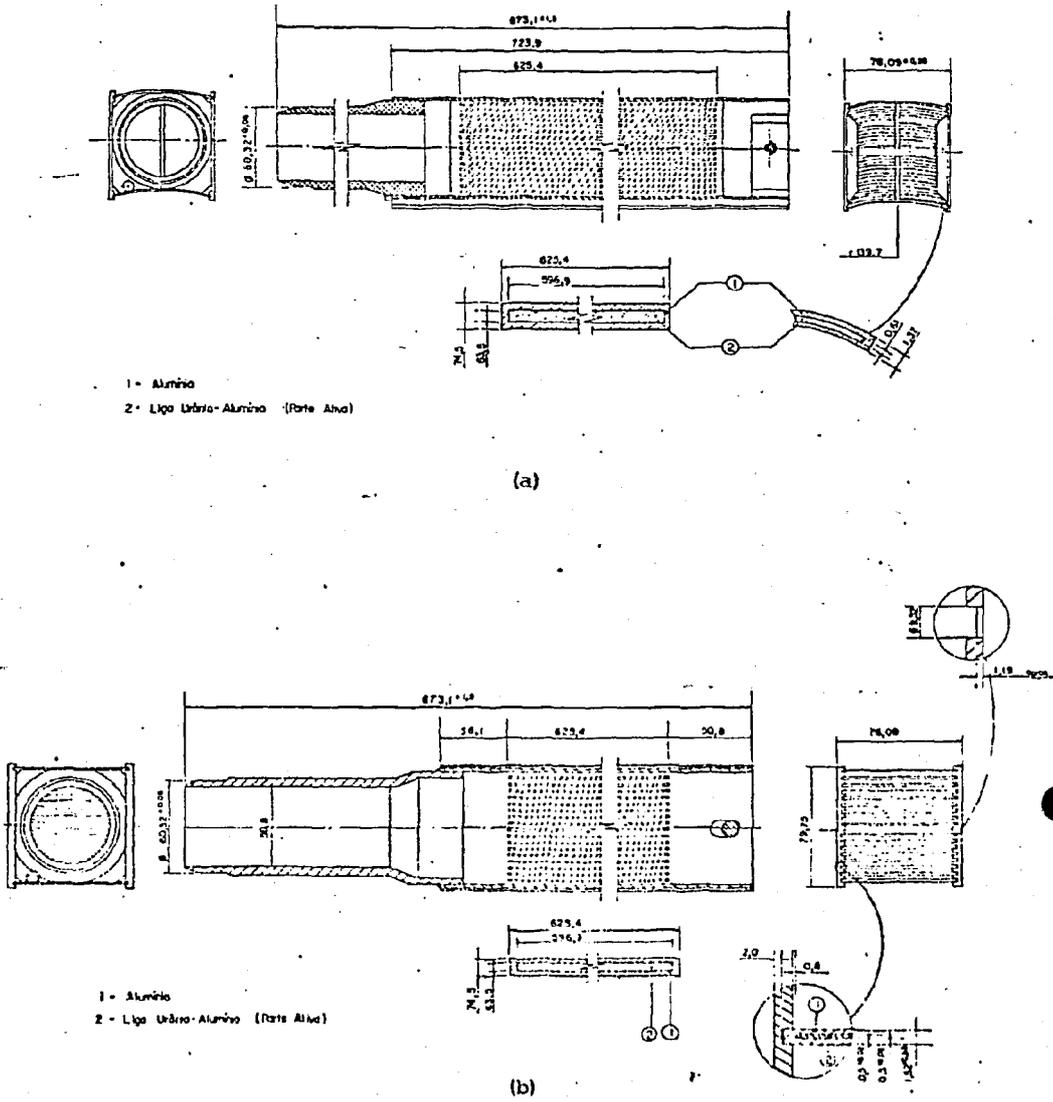


Figura 1 : Elementos Combustíveis do Reator IEAR-1

a) Elemento IEA-14

b) Elemento IEA-80

(Dimensões em mm)

ELEMENTO	DADOS DE FABRICAÇÃO			DADOS DE UTILIZAÇÃO			
	Enriquecimento	Massa Inicial de U-235 (g)	Massa Inicial total de U(g)	Data de Entrada no caroço	Data de Saída do caroço	Massa Final de U-235(g)**	Massa Final total de U(g)**
IEA-14	20%	157,38	804,27	28/08/1958	19/12/1958	157,37	804,26
IEA-80	93%	187,28	201,05	08/10/1968	17/01/1968	126,17	149,23

Tabela 1 - Dados de Fabricação e Utilização dos Elementos Estudados (\*)

\* os dados de fabricação e utilização dos elementos combustíveis estudados foram fornecidos pelo COURP/AOMR (Centro de Operação e Utilização do Reator de Pesquisa - Área de Operação e Manutenção do Reator).

\*\* calculadas pelo método indireto de energia térmica pelo COURP/AOMR.

### III.2 Sistemas de Medidas

Na realização deste trabalho foram utilizados dois sistemas de medidas: sistema I (S.I) e sistema II (S.II). O S.I (Figura 2.A.) foi montado para medida de elementos combustíveis que apresentam baixa-atividade, de tal modo que permitam seu manuseio sem necessidade de blindagem para fins de proteção radiológica. O S.II (Figura 2.B) foi montado para medida de elementos que apresentam uma atividade tal, que não permite que sejam manipulados fora da piscina sem blindagem para fins de proteção radiológica. O colimador do S.II é composto de um tubo de alumínio de 2,09 metros de comprimento e 15,4 milímetros de diâmetro interno, com um cilindro de chumbo de 130 milímetros de diâmetro por 100 milímetros de altura, na base, e um cilindro de chumbo, de 100 milímetros de diâmetro por 50 milímetros de altura no topo. O tubo é vedado na base com lucite para impedir a entrada de água.

A montagem mecânica de cada sistema é utilizada com um detector Ge(Li) e equipamento eletrônico associado. A Figura 3 apresenta o esquema desse detector e equipamento eletrônico associado.



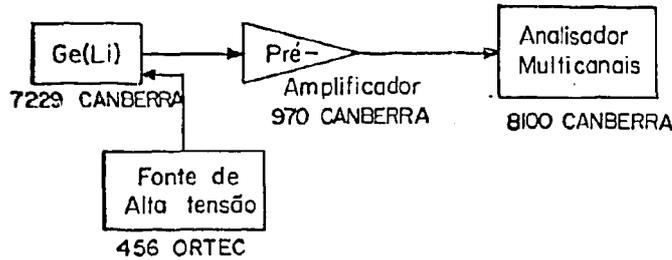


Figura 3 : Esquema do Detector Ge (Li) com Equipamento Eletrônico Associado.

#### IV. MEDIDAS E RESULTADOS

No S.I foram feitas medidas detalhadas com fontes padrão e com o IEA-14 para determinar os parâmetros envolvidos no cálculo da densidade de Cs-137 nesse elemento. Os valores obtidos para o fator de transmissão  $F_T$  (Tabela 2) demonstram a homogeneidade das placas combustíveis. Baseado nisso, foi calculado um valor teórico para  $F_T$  para os dois elementos, utilizando-se dados tirados da literatura /1,6/ e fornecidos pelo fabricante dos elementos. A eficiência global,  $\eta$ , do S.I foi obtida para várias energias de decaimento gama da Ag-110m, para três distâncias fonte-detector e com valores médios para cada energia foi feito um ajuste linear por mínimos quadrados. Através do ajuste linear por mínimos quadrados temos que para a energia dos raios gama do Cs-137  $\eta(661,6 \text{ kev}) = (0,582 \pm 0,003)10^{-4} \text{ cm}^2$ .

Os sistemas I e II foram usados para medir a atividade de Cs-137 contido nos elementos IEA-14 e IEA-80 respectivamente, em três linhas ao longo dos elementos em pontos igualmente espaçados.

Pela impossibilidade de determinar diretamente a eficiência do S.II, as medidas feitas nesse sistema foram normalizadas em relação as do S.I usando-se um fator de correção, fator de similaridade (S). Relacionando as contagens obtidas na linha central do elemento IEA-14 (posição central (0mm) e  $\pm 130 \text{ mm}$ ) nos dois sistemas, temos que  $S = 59 \pm 4$ , independente da posição. A contagem devido a alta intensidade do IEA-80 foi reduzida usando-se um filtro de chumbo de 7,5 mm de espessura sobre a abertura superior do colimador. Em consequência as contagens obtidas no S.II foram corrigidas pelo fator  $\frac{S}{F_{Pb}}$ , onde  $F_{Pb}$  é o fator de transmissão do filtro de chumbo.

Os espectros dos elementos IEA-14 e 80 são mostrados nas Figuras 5 e 6 respectivamente, A Figura 5, na qual o espectro do IEA-14 é comparado com o espectro de uma fonte de Cs-137, demonstra que nesse elemento o único produto de fissão ainda existe em quantidades significantes é o Cs-137. Na figura 7 é mostrada a distribuição de Cs-137 medido ao longo da linha central nos dois elementos.

A Tabela 5 apresenta os resultados de queima obtidos. Neste trabalho comparando-os com os resultados previamente calculados pelo COURP/AOMR (método indireto de energia térmica) e por Soares /5/ usando detector NaI (TI) (método não destrutivo de espectrometria gama).

Posição da Fonte em Relação às Placas do IEA-14	Distância da Fonte ao Centro da parte ativa das placas	Fator de Transmissão para uma placa do elemento IEA-14 (F+)
Entre a 1ª e 2ª (P <sub>1,2</sub> )	0,0	0,952 ± 0,070
P <sub>7,8</sub>	0,0	0,956 ± 0,017
P <sub>13,14</sub>	0,0	0,957 ± 0,015
Sob as 19 placas	0,0	0,955 ± 0,014
Sob as 19 placas	0,0	0,957 ± 0,008
Sob as 19 placas	-130 mm (base)	0,957 ± 0,008
Sob as 19 placas	+130 mm (topo)	0,957 ± 0,007

Tabela IV.2 - Fator de Transmissão para uma Placa do IEA-14. As 4 primeiras medidas foram feitas com fonte de Cs-137 de atividade 5  $\mu$ Ci e as 3 últimas com fonte de Cs-137 de atividade 8,18  $\mu$ Ci.

ELEMENTO	CALCULADO POR	Q(U-235) (g)	Q(U-238) (g)	F(Pu-239) (g)	Q(Pu-239) (g)
IEA-14	este trabalho	$(3,22 \pm 0,33) \cdot 10^{-3}$	$(2,13 \pm 0,25) \cdot 10^{-4}$	$(2,05 \pm 1) \cdot 10^{-4}$	$10^{-7}$
	Soares	$(3,3 \pm 0,8) \cdot 10^{-3}$	$(2,7 \pm 0,7) \cdot 10^{-4}$	$(2,6 \pm 1,2) \cdot 10^{-4}$	-
	COURP	$2,63 \cdot 10^{-3}$ *	-	-	-
IEA-80	este trabalho	$24,44 \pm 2,46$	$(7,96 \pm 1,08) \cdot 10^{-2}$	$(7,83 \pm 1,08) \cdot 10^{-2}$	$(1,032 \pm 0,036) \cdot 10^{-2}$
	COURP/AOMR	61,11	-	-	-

Tabela IV.5 - Comparação dos Valores de Queima Obtidos Para os Dois Elementos Analisados.

\*valor calculado mais recentemente pelo COURP

Pode ser observado que os valores de queima obtidos neste trabalho, para o elemento IEA-14, estão em boa concordância com os valores previamente obtidos. Mas, para o IEA-80, há uma disparidade entre os valores obtidos neste trabalho e os obtidos pelo método de energia térmica (COURP-AOMR). A razão dessa disparidade ainda não está estabelecida.

Os erros nos valores obtidos foram calculados através da equação 8, onde f é função de vários parâmetros  $X_i$  ( $i=1, \dots, n$ )

$$\Delta X_i = \left[ \left( \frac{\partial f(X_i)}{\partial X_i} \right)^2 (\Delta X_i)^2 \right]^{1/2} \quad (8)$$

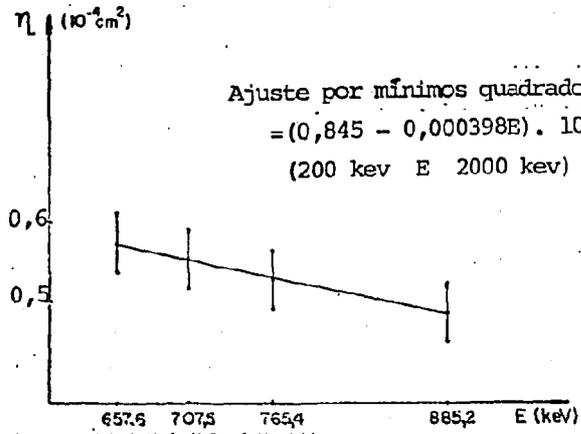


Figura 4 : Variação da Eficiência Global ( )  
 com a Energia (E)

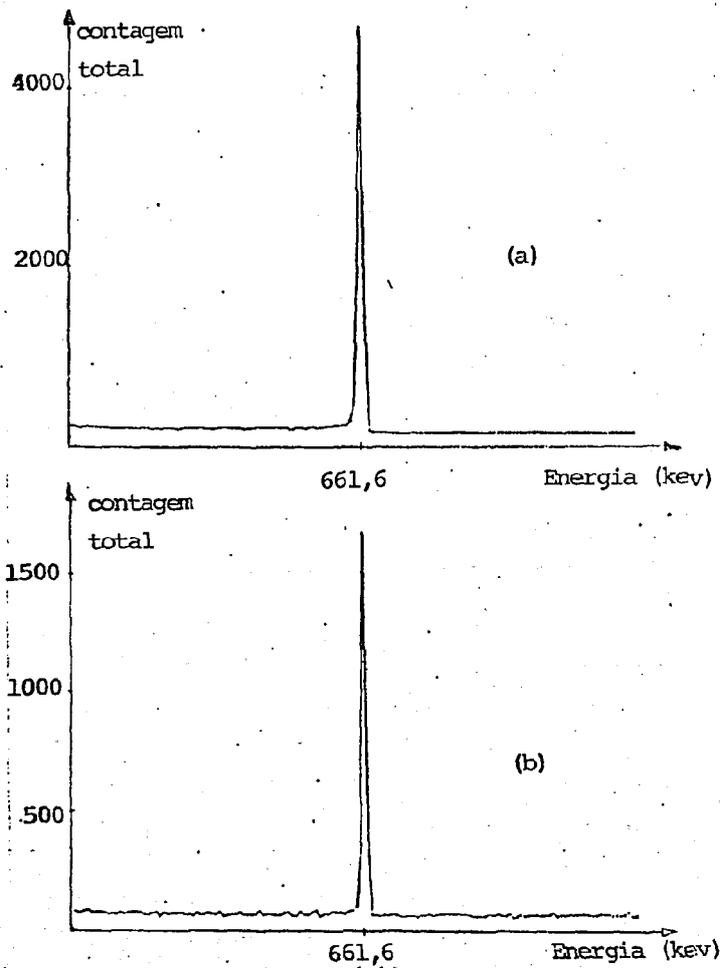


Figura 5 : Comparação entre os espectros do IEA-14 e uma fonte de Cs-137  
 a) espectro do IEA-14 (tempo de resfriamento ~20 anos)  
 b) espectro da fonte de Cs-137  
 Tempo de contagem = 300 seg.

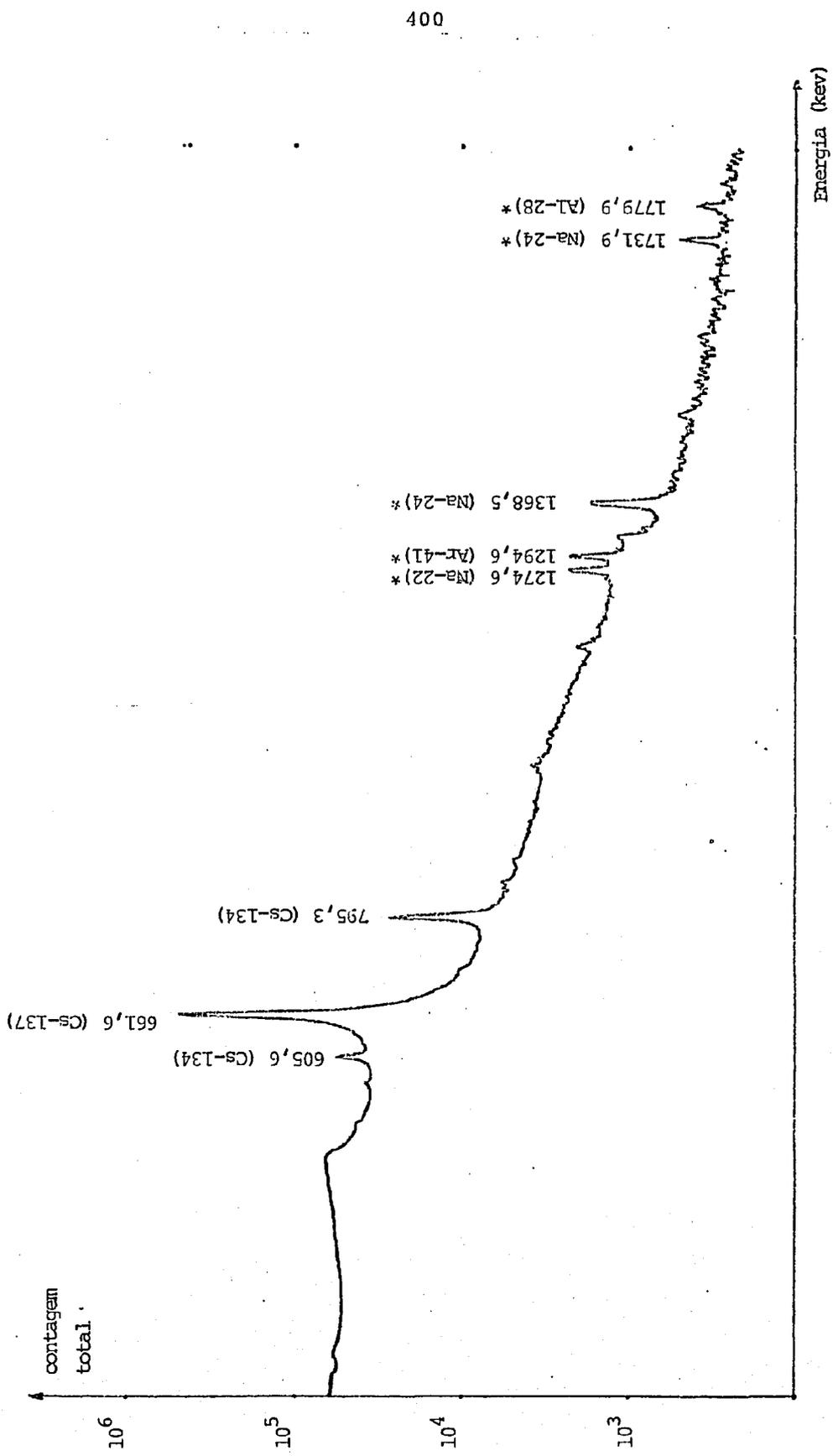


Figura 6 : Espectro do Elemento Combustível IFA-80  
(tempo de resfriamento ~ 5 ano)

Os núclídeos com \* são devido a radioatividade ambiente - Tempo de contagem = 50 seg.

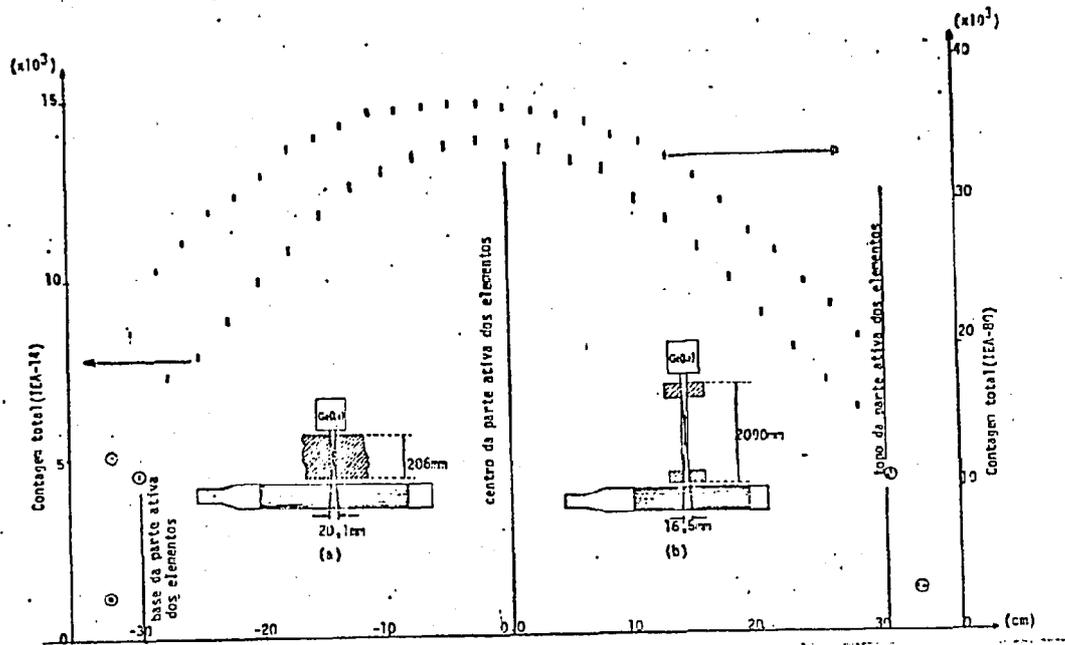


Figura 7 : Comparação da Distribuição da Atividade de Cs-137, em Função da Contagem total obtida, nos Elementos IEA-14 (tempo de medida 600 seg.) e IEA-80 (tempo de medida 20 seg.).

- a) Esquema de Medida com o IEA-14 (S.I)  
 b) Esquema de Medida com o IEA-80 (S.II)

#### CONCLUSÃO

Em porcentagem de massa os valores de queima obtidos para os elementos combustíveis IEA-14 e IEA-80 do reator IEAR-1 através das medidas não destrutivas de espectrometria gama são  $Q(\text{IEA-14}) = (0,0020 \pm 0,0002) \%$  e  $Q(\text{IEA-80}) = (13,05 \pm 1,3) \%$ .

Comparando os valores calculados através da energia total gerada no reator, temos que para valores de baixa queima (IEA-14) os cálculos atualmente utilizados são adequados, mas para níveis de alta queima (IEA-80) uma reavaliação desse método é aconselhável. Os termos baixa e alta queima são relativos ao período de irradiação dos elementos.

As medidas indicam que o nível de queima atualmente utilizado pode ser aumentado sem prejudicar os elementos combustíveis, para os quais um valor máximo de 40% de queima é permitido.

## BIBLIOGRAFIA

1. CONNER, A.L.; AIWATER, H.F.; PLASSMANN, E.H.; MACCRAY, J.H.//Gamma-ray attenuation coefficient measurements.// Phys.Rev.A.Ser.3, 1 (3):539-44, 197.
2. DIGGLE, W.R. & BLACKADDER, W.H.// Gamma Scanning for Burnup//. Nucleonics, 23 (3): 71-4, 1975.
3. FUDGE, A.J. & FOSTER, E.// Procedures for the determination of burn up by chemical methods and nuclear data requirements in burn up calculations// In: BRITISH NUCLEAR ENERGY SOCIETY. Chemical nuclear data, measurements and applications, proceedings of the international conference, held on 20-22 September 1971// 1971//p.65-74.
4. JOHANSSON, E.// Some burn up experiments in Sweden//. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.//Reactor burn up physics:proceedings of an international conference on ... held in Vienna, 12-16 July, 1971//Vienna, 1973//p.171-90.
5. SOARES, A.J.//Determinação da queima de elementos combustíveis do IEAR-1 pelo método não destrutivo de espectrometria gama// São Paulo, 1977.// (Dissertação de Mestrado, Instituto de Energia Atômica).
6. TIPTON, Jr.; C.R.// Reactor hand-book// 2 ed.// New York, Inter science, 1960//v.1.
7. TZOU, C.K. & YANG, C.M.//Nondestructive burn up determination by gamma-ray spectroscopy. Nucl.Technol., 24 (2): 246-51, 1974.
8. TSURUTA, H.; SUZAKI, T.; MATSUMURA, S.//Profiles of activity ratios of fission products, Cesium-134, Cesium-137 and ruthenium-106 in low enriched PuO<sub>2</sub> fuel assemblies.// J.Nucl.Sci.Technol., 14 (1): 43-53, 1977.