

## Medida de Taxa de Reação ao Longo do Raio da Pastilha Combustível do Núcleo do Reator IPEN/MB-01

Luís Felipe L. Mura<sup>1</sup>, Ulysses d'Utra Bitelli<sup>2</sup> e Leda C.C.B.Fanaro<sup>3</sup>

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP  
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária – CEP 05508-000  
São Paulo – SP – Brasil

[lflmura@gmail.com](mailto:lflmura@gmail.com), [lflmura@ipen.br](mailto:lflmura@ipen.br), [lmura@terra.com.br](mailto:lmura@terra.com.br)<sup>1</sup>  
[ubitelli@ipen.br](mailto:ubitelli@ipen.br)<sup>2</sup>  
[lcfanaro@ipen.br](mailto:lcfanaro@ipen.br)<sup>3</sup>

### RESUMO

Este trabalho apresenta as medidas preliminares realizadas de taxas de reação, ao longo da direção radial da pastilha combustível, obtidas a partir da irradiação e posterior espectrometria gama de uma fina lâmina de  $UO_2$  de urânio natural (pellet), amostrada em função de diâmetros internos diferentes, a partir da utilização de diversos colimadores de chumbo de diâmetros variáveis. Da mesma forma é apresentada uma comparação com os mesmos valores obtidos através dos cálculos com o código MCNP-4C [4,5]. Por fim, foi realizado o cálculo da taxa de captura de reação de captura radioativa no  $^{238}U$  (C8).

### 1. INTRODUÇÃO

O conhecimento das taxas de reação nuclear no combustível de um reator é um problema fundamental na área de Física de Reatores. De seu conhecimento podemos obter informações extremamente importantes sobre a operação e segurança em um reator nuclear. Com o conhecimento preciso dessas taxas podemos determinar vários parâmetros tais como a taxa de queima de combustível de uma central nuclear e assim determinar o tempo do ciclo de paradas para recarregamento do combustível nuclear ou o espectro de energia dos nêutrons que é um parâmetro fundamental, não só para se estimar com precisão as taxas de reação no interior do núcleo do reator, mas também se estimar o tempo de vida de uma usina nuclear, já que o fluxo de nêutrons rápidos no vaso de pressão determina a sua fragilização devido aos danos por irradiações. No quesito segurança, o conhecimento preciso das taxas de reação no combustível permite estimar de forma precisa a taxa de geração de calor, verificando se as mesmas se encontram dentro das especificações técnicas de projeto.

Dada a grande dificuldade experimental de se medir as taxas de reação no combustível nuclear, estas são normalmente estimadas a partir de cálculos de Física de Reatores que utiliza vários programas (Ex: MCNP) e suas bibliotecas de dados nucleares associadas (ENDF, JENDL, etc). Muitos destes valores calculados se valem de cálculos de auto-blindagem nas ressonâncias do

$^{238}\text{U}$  obtidas a partir de métodos como o de NORDHEIM [1] e BONDARENKO [2] que aparentemente superestimam a taxa de reação nuclear de captura radioativa nestas ressonâncias. Isto pode ser observado a partir da comparação de medidas do índice espectral  $^{28}\rho$  com valores calculados do mesmo que sistematicamente indicam a sua superestimação [3].

## 2. MÉTODOLOGIA EXPERIMENTAL

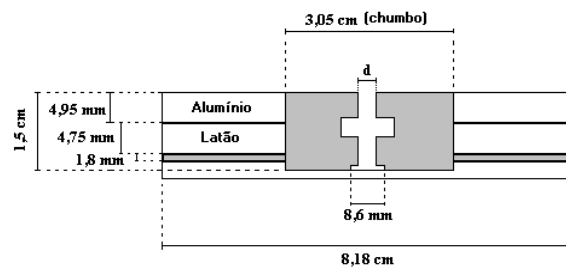
O reator de potência zero IPEN/MB-01 foi especialmente desenvolvido para a medição de uma grande variedade de experimentos na área de física de reatores. Assim nele é possível determinar vários parâmetros físicos que podem ser usados como benchmark experimental para checar metodologias de cálculo e dados nucleares comumente usados em projetos de reatores. Uma descrição completa do reator pode ser encontrada na referência [4].

A obtenção da variação da taxa de reação de captura radioativa ao longo do raio combustível de uma pastilha combustível é realizada a partir do corte de uma pastilha normal, obtida de uma vareta combustível experimental desmontável. Assim a única diferença do diminuto disco de  $\text{UO}_2$  em relação a pastilha normal foi a sua espessura que passou de 10,5 mm para apenas 0,4906 mm, após o corte além de ter sido feita a partir de uma pastilha de urânio natural. O objetivo ao se cortar a pastilha combustível é minimizar os efeitos de auto-absorção gama durante a espectrometria gama do alvo (disco de  $\text{UO}_2$ ) irradiado. O diâmetro do disco é o mesmo da pastilha combustível, ou seja, 8,49 mm e a massa medida numa balança de precisão para o disco cortado é de 0,28261 gramas.

Após a confecção do alvo o mesmo é posicionado no interior de uma vareta combustível desmontável, posicionado entre as pastilhas 9 (inferior) e 10 (superior), correspondendo a uma cota axial de 94 mm acima do início do comprimento ativo de combustível no núcleo do reator IPEN/MB-01. A vareta combustível vez é inserida no centro do reator na posição M-14, sendo a configuração de varetas no núcleo a padrão retangular 28x26 varetas combustíveis. A vareta combustível desmontável contendo em seu interior o diminuto disco de  $\text{UO}_2$  foi então irradiada por 1 hora a potência de 100 watts com as barras de controle do reator BC#1 e BC#2 mantidas igualmente retiradas (59%). A temperatura da água (moderador) foi monitorada por 12 termopares que registraram uma temperatura média de 20,6 °C.

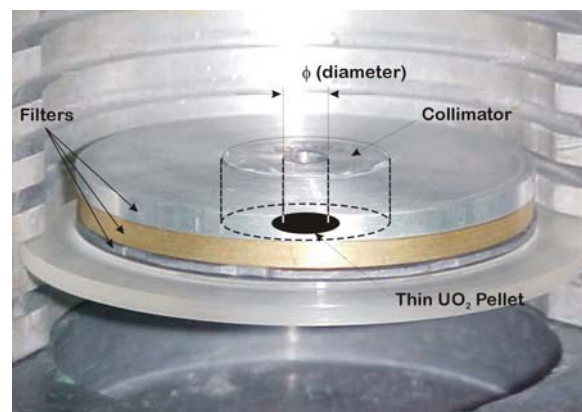
No dia seguinte a irradiação, a vareta combustível experimental é retirada do núcleo do reator, sob monitoração da proteção radiológica e transportada para o laboratório para assim ser desmontada no interior de uma capela de chumbo (Gloved Box), a fim de se retirar o disco de  $\text{UO}_2$  irradiado e dar início a sua espectrometria gama num sistema de detecção de germânio hiperpuro (HPGe). Tal sistema, calibrado em energia, tem a sua curva de eficiência global de contagem obtida a partir de uma fonte padrão de Eu-152. A distância utilizada para espectrometria gama do disco foi a de aproximadamente 5,9 cm do detector, correspondente a 6ª gaveta no castelo de chumbo do sistema HPGe. Foram realizadas as espectrometrias gama dos diâmetros menores (3,0, 4,0, 4,5, 5,0 e 5,5 mm) para os diâmetros maiores (6,0, 6,5, 7,0, 7,5, 8,0, 8,1, 8,2, 8,3, 8,4 e 8,5 mm), pois de outro modo a incerteza estatística dos diâmetros amostrados menores seria bem menos precisa. O tempo de espera para o início das contagens foi de 17 horas após o término da irradiação.

A reação nuclear de captura radioativa ocorre nos átomos de  $^{238}\text{U}$  que ao absorverem um nêutron se transmutam no  $^{239}\text{U}$  de meia-vida de 23 minutos tornando-o difícil de ser detectado. Assim opta-se pela detecção do  $^{239}\text{Np}$ , radionuclídeo oriundo do decaimento do  $^{239}\text{U}$  e que tem uma meia-vida maior (2,335 dias) e que facilita a detecção da radiação gama por ele emitida. O fotopico gama no qual acompanhamos o decaimento gama do  $^{239}\text{Np}$  está centrado a energia de 277,6 keV sendo emitido com uma probabilidade de emissão gama de 14,38% [3]. Na espectrometria realizamos um mínimo de 30 aquisições de 900 segundos cada, chegando a um máximo de aproximadamente 70 aquisições, dependendo do período de aquisição de dados na espectrometria gama. As medidas realizadas ao longo do dia permitiram um número de aquisições menores, enquanto as medidas realizadas no começo da noite e que se estendem de madrugada, permitiram um número maior de espectros gama. Os colimadores utilizados nestas medidas foram construídos com a finalidade de amostrar diferentes raios (diâmetros) do disco irradiado de  $\text{UO}_2$  e podem ser visualizados na Figura 1 dada a seguir:



**Figura 1 – Colimadores de diâmetro  $d$  (mm) com seu suporte de acrílico.**

A base de acrílico (lucite) serve de suporte ao colimador que amostra região a de interesse na folha (diâmetro), impedindo que fótons gama contribuam nas contagens no detector de Germânio hiper-puro (HPGe). Além do acrílico, foram utilizados e apoiados no mesmo, placas de latão e alumínio com a finalidade de blindar a radiação secundária (espalhada) que contribuem de forma indesejável na borda gama durante a espectrometria. A Figura 2 mostra o posicionamento do colimador e da respectiva blindagem no compartimento onde é realizada a espectrometria.



**Figura 2 – Colimador e respectiva blindagem utilizadas na obtenção do fotopico gama do  $^{239}\text{Np}$  (277.6 keV).**

### 3. ANALISE DOS DADOS OBTIDOS NA ESPECTROMETRIA GAMA

A partir dos espectros obtidos no programa Maestro que amostra as contagens integradas do fotopico gama do Np-239 a energia de 277,6 keV em função do diâmetro (raio) amostrado no disco de UO<sub>2</sub> irradiado e do tempo de espera, é possível se traçar uma reta média (Programa ORIGIN) e se obter o valor médio da contagem ao término da irradiação ( $C_0$ ) para um dado tipo de colimador utilizado, ou seja em função do raio amostrado. Este procedimento apresenta o mesmo resultado daquele de dividir as contagens em classes e se ajustar uma distribuição gaussiana aos valores de contagem corrigidos quanto ao decaimento radioativo para obtenção do  $C_0$  e que permite obter da mesma forma o seu valor médio.

A partir desses valores médios é possível obter valores relativos e absolutos de taxa de captura. Os valores relativos são obtidos diretamente do gráfico de  $C_0$  médio e facilitam a comparação com os valores obtidos através de cálculo.

Os valores absolutos de contagem são obtidos a partir da relação:

$$C8 = \frac{C_0}{{}^{Np}f\gamma \cdot {}^{Np}I \cdot {}^{Np}\eta \cdot [1 - \exp(-{}^{Np}\lambda \cdot ti)]} \quad (1)$$

Onde  ${}^{Np}f\gamma$  é o fator de auto-blindagem da vareta para o fotopico de 277,6 KeV do <sup>239</sup>Np que vale 1,058,  ${}^{Np}I$  é a probabilidade de emissão gama de energia 277,6 KeV do <sup>239</sup>Np e vale 14,38%,  ${}^{Np}\eta$  é a eficiência global de contagem para o fotopico de 277,6 KeV do <sup>239</sup>Np e vale  $0,01531 \pm 0,00142$ ,  ${}^{Np}\lambda$  é a constante de decaimento do <sup>239</sup>Np que vale  $3,44 \times 10^{-6}$  e  $ti$  é o tempo de irradiação que vale 1 hora.

### 4. RESULTADOS

#### 4.1 Tabelas

Os resultados obtidos das contagens ao término da irradiação ( $C_0$ ) podem ser visualizados na Tabela 1 para os diversos colimadores utilizados e que amostram os respectivos raios do disco de UO<sub>2</sub> irradiado. Estes valores ( $C_0$ ) são diretamente proporcionais à taxa de reação de captura radioativa e na mesma tabela se encontram os seus valores relativos normalizados em relação a contagem máxima referente ao colimador de diâmetro 8,5 mm e também é possível através da relação (1) obter os valores absolutos de taxa de captura (C8).

**Tabela 1 – Valores das Taxas de Reação de Captura Radioativa obtidos em função do raio da pastilha Combustível do Reator IPEN/MB-01.**

Raio da pastilha combustível de UO <sub>2</sub> (cm)	Taxa de reação de captura radioativa *	Valores normalizados	Valores Absolutos (C8)
0,14975	1,50249 ± 0,08356	0,0354 ± 0,0019	52973,68 ± 2946,10
0,19592	4,38736 ± 0,10333	0,1034 ± 0,0024	154686,3 ± 3643,1
0,2235	5,76794 ± 0,11216	0,1359 ± 0,0026	203361,7 ± 3954,4
0,261	12,44718 ± 0,17776	0,2932 ± 0,0042	438853,4 ± 6267,3
0,2735	13,94925 ± 0,22839	0,3286 ± 0,0054	491812,3 ± 8052,4
0,298	19,15531 ± 0,283	0,4513 ± 0,0067	675363,7 ± 9977,8
0,32325	23,49695 ± 0,31034	0,5536 ± 0,0073	828438 ± 10941
0,34675	27,274 ± 0,35794	0,6425 ± 0,0084	961606 ± 12619
0,378	32,47995 ± 0,39111	0,7652 ± 0,0092	1145154 ± 13789
0,40375	38,47714 ± 0,49943	0,9065 ± 0,0117	1356598 ± 17608
0,40958	39,1186 ± 0,56581	0,9216 ± 0,0133	1379215 ± 19949
0,41475	41,58257 ± 0,6299	0,9796 ± 0,0148	1466087 ± 22209
0,41958	40,35749 ± 0,50068	0,9508 ± 0,0118	1422894 ± 17653
0,42483	40,07233 ± 0,63671	0,9440 ± 0,015	1412840 ± 22449
0,4275	42,44735 ± 0,83319	1 ± 0,0196	1496577 ± 29375

\* Valores relativos de taxas de reação referentes às taxas de contagem média ( $\bar{C}_0$ ) ao término da irradiação, dos fotopicos gama do <sup>239</sup>Np, centrado a energia de 277,6 KeV.

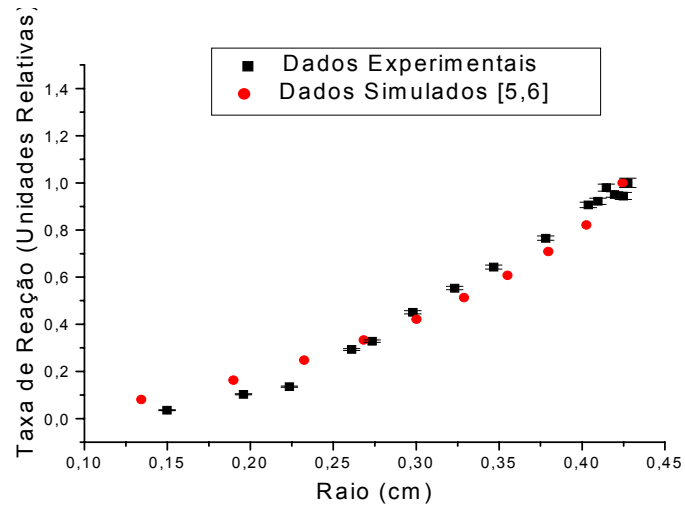
O experimento foi reproduzido pelo código MCNP-4C [5,6] utilizando-se a biblioteca de dados nucleares ENDF-BVI.8 e os resultados podem ser visualizados na Tabela 2 dada a seguir.

**Tabela 2 – Valores obtidos da simulação utilizando o código MCNP-4C**

Raio da pastilha combustível (cm)	Taxa de reação (valores relativos) *	Valores normalizados
0,134239	4,69622 x 10 <sup>-3</sup>	0,0808
0,189842	4,78294 x 10 <sup>-3</sup>	0,1631
0,232508	4,90005 x 10 <sup>-3</sup>	0,2474
0,268477	4,99034 x 10 <sup>-3</sup>	0,3332
0,300167	5,10993 x 10 <sup>-3</sup>	0,4211
0,328816	5,31006 x 10 <sup>-3</sup>	0,5124
0,355162	5,52099 x 10 <sup>-3</sup>	0,6074
0,379684	5,85956 x 10 <sup>-3</sup>	0,7082
0,402716	6,53097 x 10 <sup>-3</sup>	0,8205
0,4245	1,04300 x 10 <sup>-2</sup>	1

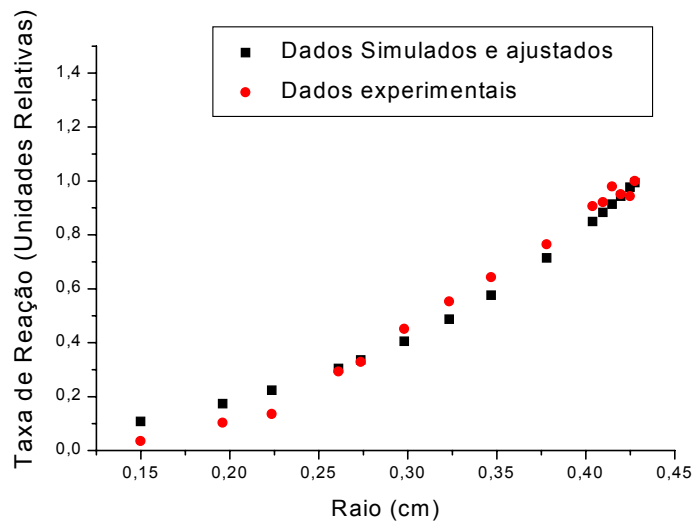
## 4.2 Comparações entre valores experimentais e obtidos por cálculo

Abaixo podemos visualizar na Figura 3 o gráfico comparativo entre os valores relativos das taxas de reação de captura obtidos experimentalmente com aqueles simulados pelo código MCNP-4C, a partir de dados nucleares gerados pela biblioteca de dados nucleares ENDF-B.VI.8 .



**Figura 3- Comparação dos Valores de Taxas de Reação ao longo do raio (cm) da pastilha combustível do Reator IPEN/MB-01 (relativas).**

A partir do gráfico da figura 3 foi feito um ajuste de uma curva com os dados simulados no MCNP-4C para poder haver uma comparação direta entre os raios. Desse ajuste construiu-se o gráfico (figura 4) a seguir:



**Figura 4 – Comparação dos Valores de Taxas de Reação com raios simulados iguais aos experimentais.**

## 5. CONCLUSÕES

Os resultados preliminares obtidos são satisfatórios e se referem às taxas de reação de captura radioativa ao longo do raio da pastilha (disco) combustível obtido em todo o espectro de energia dos nêutrons. Pretende-se fazer esta comparação para a parte epitérmica do espectro de energia dos nêutrons na continuação deste trabalho, a partir da irradiação do disco combustível de  $UO_2$  com cobertura de cádmio. O cádmio discrimina a taxa de captura para nêutrons lentos já que possui uma altíssima seção de choque de absorção do cádmio para os nêutrons térmicos.

Comparando-se os dados medidos relativos aos simulados pelo MCNP-4C constata-se que os mesmos apresentam uma distribuição espacial semelhante quanto a forma ao longo do raio da pastilha combustível, no entanto até 0,30 cm de raio o cálculo parece superestimar os valores das taxas de reação, quando a partir deste valor de raio da pastilha passa a subestimar em menor magnitude os valores experimentais.

## REFERÊNCIAS

1. L.W. Nordheim; G.F. Kuniur, "A Program of Research and Calculation of Resonance absorption." San Diego, CA, Gulf General Atomic Co., 1961.
2. I.I. Bondarenko, "Group Constants for Nuclear Reactor Calculation." Consultants Bureau, New York, NY, 1964.3. I.I. Bondarenko, "Group Constants for Nuclear Reactor Calculation." Consultants Bureau, New York, NY, 1964.
3. U. d'U Bitelli, "Medida de Parâmetros Integrais no Reator IPEN/MB-01". São Paulo: 2001. Tese (doutorado) - IPEN.
4. U. D'U. Bitelli, "Experimental Utilization of The IPEN/MB-01 Reactor." 9th IGOOR, Sydney, Australia, 2003.
5. J.F. Briemeister; "MCNP: A General Monte Carlo N-Particle Transport Code (Version-4C)," Los Alamos National Laboratory, LA-13709-M, 2000
6. L.C.C.B. Fanaro, Comunicação Pessoal, 2007.