

ESPECTROMETRIA GAMA EM ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS TIPO PLACA IRRADIADOS

Luis A. A. Terremoto, Carlos A. Zeituni e José A. Perrotta

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN-SP)
Divisão de Engenharia do Núcleo (REN)
Caixa Postal 11.049; CEP 05422-970; Pinheiros; São Paulo - SP; Brasil
E-mail: laaterre@net.ipen.br

RESUMO

O objetivo deste trabalho consiste em apresentar o método não destrutivo utilizado na determinação experimental da queima ocorrida em elementos combustíveis tipo placa irradiados no reator de pesquisa IEA-R1. As medidas em elementos combustíveis irradiados são efetuadas utilizando um sistema que, por meio de colimação e detecção de raios-gama emitidos pelos produtos de fissão radioativos, possibilita a obtenção, armazenamento e análise de espectros gama. São apresentados alguns resultados de medidas preliminares.

I INTRODUÇÃO

A espectrometria gama em combustíveis nucleares irradiados é um ensaio não destrutivo fundamentado no fato de que a distribuição e intensidade da radiação gama emitida nos processos de decaimento dos produtos de fissão radioativos presentes no combustível irradiado (espectro gama) estão relacionadas à queima, distribuição de potência e condições internas (integridade) ao longo do combustível. Consiste num meio de avaliação da validade e confiabilidade da análise teórica, uma vez que os dados experimentais que fornece podem ser diretamente comparados com aqueles previstos por meio de cálculos.

A determinação da queima é importante, pois pode indicar alterações a serem feitas nas especificações de combustíveis nucleares com a finalidade de obter uma melhor utilização dos mesmos e otimizar o ciclo do combustível nuclear.

Esta determinação é efetuada a partir da medida da atividade gama absoluta de um dado produto de fissão, denominado monitor de queima. Nestas circunstâncias, um monitor de queima adequado apresenta meia-vida longa em relação ao tempo total de irradiação, seção de choque de absorção de nêutrons baixa, pequena migração ao longo do combustível, espectro gama de alta energia e formação em quantidades aproximadamente iguais por fissão do ^{235}U , ^{238}U e ^{239}Pu tanto por nêutrons térmicos quanto por nêutrons rápidos.

O ^{137}Cs é considerado o monitor de queima mais adequado, uma vez que este nuclide apresenta todas estas

características, desde que a temperatura do combustível nuclear a ser examinado não tenha ultrapassado $700^{\circ}\text{C}^{[1]}$.

Através da espectrometria gama, a queima é determinada diretamente a partir de equações que a relacionam com a atividade gama absoluta medida, o que exige o conhecimento da eficiência absoluta do aparato experimental e controle rigoroso da geometria do sistema de detecção utilizado.

Apesar da espectrometria gama apresentar erro significativo associado às dificuldades na medida da eficiência absoluta, assim como requerer em geral registros detalhados e precisos do tempo e potência de irradiação a que foi submetido o combustível nuclear a ser examinado^[2], as seguintes vantagens justificam o seu emprego:

a) Comparado com os métodos químicos de determinação de queima, é considerado mais preciso e rápido, além de não exigir a destruição do combustível nuclear irradiado.

b) Possibilita a determinação do número de núcleos físeis remanescentes no combustível nuclear irradiado e o cálculo da diminuição das quantidades de ^{235}U , ^{238}U e ^{239}Pu ocorrida no mesmo.

c) Apresenta baixo custo de utilização desde que já se possua os equipamentos necessários.

d) Durante a realização do ensaio o operador está sujeito a uma taxa de exposição mínima.

Pelos motivos expostos acima, decidiu-se utilizar a espectrometria gama na determinação experimental da queima ocorrida em elementos combustíveis tipo placa irradiados no reator de pesquisa IEA-R1.

Os componentes do sistema experimental projetado com esta finalidade serão instalados na área da piscina de estocagem do reator.

II. TÉCNICA EXPERIMENTAL BÁSICA

Uma vez irradiado, o elemento combustível apresenta produtos de fissão que ao sofrerem decaimento radioativo emitem raios-gama com energias características.

A montagem de um sistema para efetuar medidas de espectrometria gama em elementos combustíveis irradiados tem como finalidade a obtenção de um espectro gama por meio de colimação e detecção destes raios, armazenando-os para análise posterior.

O sistema para espectrometria gama é constituído pelos seguintes componentes: conjunto colimador, fonte de alta voltagem, detector de germânio hiperpuro (HPGe), amplificador, multicanal e microcomputador.

Neste sistema, dois colimadores de chumbo são utilizados entre o elemento combustível e o detector para permitir a determinação da taxa de emissão gama de um volume específico do combustível e para impedir a saturação do sistema no que se refere ao armazenamento de dados. O diâmetro da fenda cilíndrica destes colimadores perfaz 4,55 mm, sendo adequada para medir as variações na distribuição de atividade gama ao longo do combustível nuclear irradiado.

A detecção de raios-gama é efetuada com um detector de germânio hiperpuro (HPGe). A influência da radiação de fundo é diminuída por uma blindagem de chumbo colocada em torno do detector.

Durante as medidas de atividade gama do elemento combustível irradiado, o conjunto detector (colimadores + detector HPGe) deve se mover ao longo de várias direções. Os componentes eletrônicos do sistema, incluindo o detector HPGe, permanecem fora da água.

O sistema para espectrometria gama a ser utilizado na determinação não destrutiva da queima ocorrida em elementos combustíveis irradiados no reator de pesquisa IEA-R1 é mostrado esquematicamente na Fig. 1.

Neste sistema, um elemento combustível do tipo usado em reatores de pesquisa é posicionado horizontalmente a 2,2 metros abaixo da superfície da piscina de estocagem. O detector se encontra instalado dentro de uma blindagem, podendo se mover tanto na direção paralela quanto na direção normal ao eixo do elemento combustível. Um tubo de alumínio preenchido com ar se estende entre a janela do detector e uma posição fixa situada pouco acima (0,5 cm) da superfície do elemento. Os colimadores de chumbo estão fixados nas extremidades do tubo de alumínio. Devido ao fato da eficiência absoluta do sistema ser muito sensível à geometria do conjunto detector (colimadores + detector HPGe), a reprodutibilidade no posicionamento do tubo de alumínio deve apresentar uma acurácia melhor que ± 0.16 cm^[3].

Cada elemento combustível a ser inspecionado é constituído por 18 placas combustíveis idênticas revestidas de alumínio, cujo material combustível apresenta grau de enriquecimento em ²³⁵U igual a 19,75% (LEU) ou 93,15% (HEU).

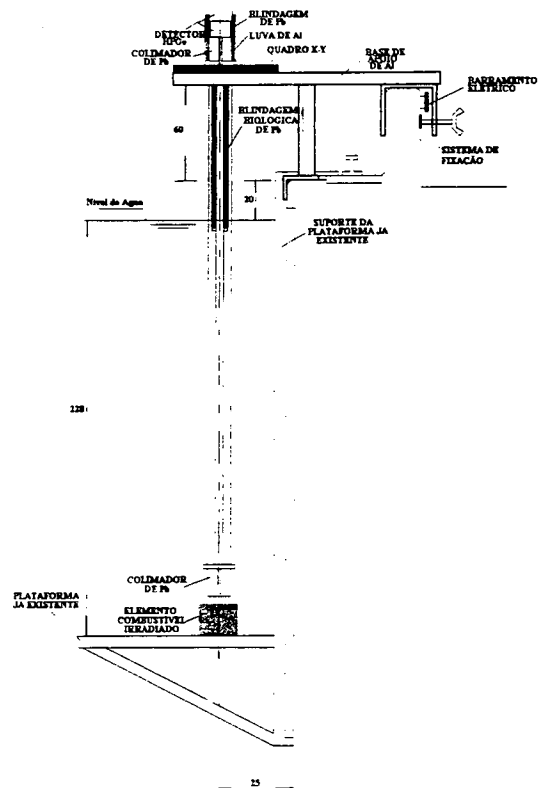


Figura 1. Sistema para Espectrometria Gama em Elementos Combustíveis na Piscina do Reator IEA-R1.

III. CORREÇÃO DAS MEDIDAS POR ATENUAÇÃO

Ao se efetuar medidas da atividade gama absoluta em elementos combustíveis irradiados, correções decorrentes da atenuação dos raios-gama devem ser consideradas.

A primeira correção a ser considerada resulta da atenuação experimentada pelos raios-gama ao atravessarem o cerne da placa no qual são emitidos, efeito denominado auto-atenuação.

A segunda correção a ser considerada resulta da atenuação experimentada pelos raios-gama ao atravessarem as placas integrantes do elemento combustível e a água que preenche o espaço existente entre elas, pois se trata de ensaio em piscina de estocagem no qual o elemento combustível permanece submerso.

Por fim, é necessário considerar a correção resultante da atenuação experimentada pelos raios-gama ao

atravessarem o revestimento superior de alumínio da última placa, a camada de água existente entre a última placa e o início do tubo de alumínio e por último a espessura da janela do tubo de alumínio.

Cada uma destas correções é descrita por um índice calculado em função das características geométricas do elemento combustível, dos materiais que o constituem e do posicionamento deste elemento, dentro da piscina de estocagem, em relação ao conjunto colimador^[4].

O índice de correção total devido à atenuação experimentada pelos raios-gama emitidos é dado pelo produto destes três índices de correção^[4].

IV. MEDIDA DA EFICIÊNCIA ABSOLUTA

Os espectros gama resultantes das medidas em elementos combustíveis irradiados (duração aproximada de cada medida : 500 s de tempo vivo) contém 4096 canais e fornecem o número de contagens nos fotopicos em função dos canais que os mesmos ocupam, não proporcionando qualquer informação direta sobre qual é a energia do raio-gama que originou um determinado fotopico no espectro obtido. Assim pois, com a finalidade de identificar no espectro gama proveniente do elemento combustível irradiado o fotopico correspondente ao raio-gama de 661,6 keV, é necessário efetuar a calibração da energia em função do número do canal (denominada calibração em energia).

Após ter sido efetuada, por meio da calibração em energia, a localização e identificação do fotopico correspondente ao raio-gama emitido no decaimento do monitor de queima escolhido (¹³⁷Cs), torna-se necessário medir a eficiência absoluta do conjunto detector (colimadores + detector HPGe) na geometria fixada e na energia do raio-gama de interesse (661,6 keV).

O valor da eficiência absoluta, para uma dada geometria fixa do conjunto detector em relação ao posicionamento de cada placa do elemento combustível e que apresenta exatamente a mesma configuração utilizada durante a espectrometria gama, é medido usando uma fonte de calibração de ¹³⁷Cs com atividade conhecida. Esta fonte é adaptada ao conjunto detector na mesma geometria em que se realiza a inspeção no elemento combustível irradiado, sendo obtido o espectro em energia para os raios-gama emitidos pela fonte. Nestas circunstâncias, cada valor de eficiência absoluta deve ser medido separadamente. O espectro obtido para a fonte de calibração de ¹³⁷Cs deve ser resultado de medidas efetuadas em tempo vivo.

A área e a posição do fotopico correspondente ao raio-gama de 661,6 keV são determinadas mediante o uso de um programa que ajusta a este fotopico um função gaussiana, descontando o fundo contínuo descrito por uma curva parabólica^[5].

Determinada a área do fotopico, calcula-se a eficiência absoluta do conjunto detector para a energia do raio-gama igual a 661,6 keV e na geometria fixada. Nestas

condições, a eficiência absoluta é dada pela razão entre o número de raios-gama detectados e o número de raios-gama emitidos pela fonte de calibração no ângulo sólido definido pelo conjunto colimador^[6].

V. DETERMINAÇÃO DA MASSA DE ²³⁵U FISSIONADA

Uma vez conhecidos os valores da eficiência absoluta de detecção, é necessário medir o valor do parâmetro \bar{Q} para determinar experimentalmente a atividade total do elemento combustível irradiado devida ao ¹³⁷Cs e, em seguida, a massa de ²³⁵U fissionada neste elemento.

O valor médio \bar{Q} para o número total de contagens registrado no detector por unidade de tempo é obtido através das medidas efetuadas em diversos pontos situados ao longo do comprimento (eixo x) e da largura (eixo y) do elemento combustível irradiado, definindo-se portanto uma função de duas variáveis com os perfis típicos mostrados na Fig. 2.

Na medida do valor médio \bar{Q} , utiliza-se uma propriedade das funções de duas variáveis, descrita a seguir^[7]:

Seja uma função $z = F(x,y)$ definida no intervalo $a \leq x \leq b$; $p \leq y \leq q$, de tal maneira que:

$$\text{para o plano } y = \eta : F(x,y) = f(x)$$

$$\text{para o plano } x = \xi : F(x,y) = g(y)$$

onde a função $g(y)$ é a mesma (salvo uma constante) para qualquer ponto ξ escolhido em (a,b) . Se além disso for conhecido o valor de $F(x,y)$ no ponto (ξ,η) , é possível mostrar que o volume limitado pela superfície $F(x,y)$ no intervalo (a,b) , (p,q) resulta:

$$V = \int_a^b \int_p^q F(x,y) dx dy = \left[\overline{f(x)} + \overline{g(y)} - F(\xi,\eta) \right] (b-a)(q-p) \quad (1)$$

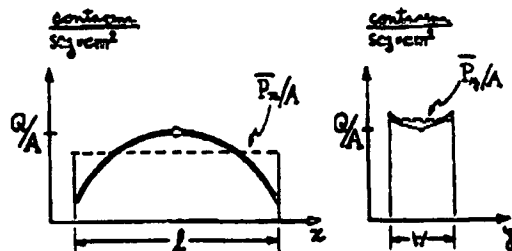


Figura 2. Representação Esquemática dos Perfis Típicos Encontrados em Medidas Efetuadas em um Elemento Combustível Irradiado, mostrando os Parâmetros Empregados na Obtenção do Valor Médio \bar{Q} .

Aplicando esta propriedade aos perfis obtidos experimentalmente, encontra-se:

$$\frac{\bar{Q}}{A} = \frac{\bar{P}_x}{A} + \frac{\bar{P}_y}{A} - \frac{Q}{A} \Rightarrow \bar{Q} = \bar{P}_x + \bar{P}_y - Q \quad (2)$$

Após o valor médio ter sido medido, determina-se experimentalmente o valor D da atividade total do elemento combustível irradiado devido ao ^{137}Cs , utilizando para tanto a expressão (2) de maneira que:

$$D = \frac{18 \cdot l \cdot w \cdot (\bar{P}_x + \bar{P}_y - Q)}{I_\gamma \cdot k_1 \cdot k_2 \cdot \sum_{j=1}^{18} A_j \cdot \varepsilon_j \cdot K^{18-j}} \quad (3)$$

onde l é o comprimento ativo de cada placa do elemento combustível, w é a largura ativa de cada placa do elemento combustível, I_γ é a intensidade absoluta do raio-gama, A_j é a área definida pelo ângulo sólido de detecção sobre o cerne da j -ésima placa e ε_j é a eficiência absoluta de detecção para uma dada geometria fixa do sistema detector em relação ao posicionamento da j -ésima placa e para raios-gama de 661,6 keV. Os parâmetros denotados por k_1 , k_2 e K são os índices de correção devidos à atenuação dos raios-gama.

Resta ainda considerar que parte dos átomos de ^{137}Cs decaíram no intervalo de tempo t_c , decorrido entre o fim do último período de irradiação a que foi submetido o elemento combustível e o início das medidas de espectrometria gama efetuadas no mesmo. Para tanto, utiliza-se a lei de decaimento radioativo:

$$D = \lambda \cdot N_0 \cdot e^{-\lambda \cdot t_c} \quad (4)$$

onde λ é a constante de decaimento do ^{137}Cs e N_0 é o número total de átomos de ^{137}Cs existente no elemento combustível imediatamente após o fim do último período de irradiação. Substituindo a expressão (3) na expressão (4), o valor de N_0 resulta:

$$N_0 = \frac{18 \cdot l \cdot w \cdot (\bar{P}_x + \bar{P}_y - Q)}{\lambda \cdot I_\gamma \cdot k_1 \cdot k_2 \cdot \sum_{j=1}^{18} A_j \cdot \varepsilon_j \cdot K^{18-j}} e^{\lambda \cdot t_c} \quad (5)$$

Por sua vez, a massa de ^{235}U fissionada no elemento combustível inspecionado é dada pela expressão:

$$\Delta U = \frac{N_0 \cdot m_0}{y \cdot N_U^0} f \quad (6)$$

onde N_U^0 é o número de átomos de ^{235}U existente inicialmente no elemento combustível, m_0 é a massa

original de ^{235}U no elemento combustível, y é o rendimento do monitor de queima na fissão do ^{235}U e f é um fator de correção que leva em conta o decaimento de átomos ^{137}Cs ocorrido durante diferentes períodos de irradiação a diferentes potências, dado pela expressão aproximada^[8]:

$$f = \frac{\lambda \cdot \sum_{k=1}^n P_k \cdot t_k}{\sum_{k=1}^n P_k \cdot e^{-\lambda \cdot t_k} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_k})} \quad (7)$$

na qual λ é a constante de decaimento do monitor de queima, P_k é a potência média relativa a que foi submetido o elemento combustível durante o k -ésimo período de irradiação (sendo a somatória de todas as potências médias relativas igual a 1), n é o número de períodos de irradiação durante toda a história de irradiação do elemento combustível, t_k é a duração do k -ésimo período de irradiação e τ_k é o intervalo de tempo transcorrido entre o final do k -ésimo período de irradiação e o final da irradiação do elemento combustível.

A utilização do método de espectrometria gama requer em geral registros detalhados e precisos do tempo e potência de irradiação a que foi submetido o combustível nuclear a ser examinado, sendo o fator f mostrado na expressão (7) calculado a partir destes registros. No entanto, por apresentar meia-vida longa em relação à duração de cada período de irradiação, o ^{137}Cs permite a determinação satisfatória da queima do combustível nuclear através de espectrometria gama mesmo no caso em que o conhecimento do histórico de potência e dos dados de irradiação for limitado^[9].

Finalmente, por meio da utilização conjunta das expressões (5), (6) e (7), determina-se a massa de ^{235}U fissionada no elemento combustível analisado.

VI. MEDIDAS PRELIMINARES

O método experimental apresentado em linhas gerais anteriormente se insere no contexto de um projeto em andamento.

Na fase atual deste projeto, estão sendo realizadas a instalação dos equipamentos na área da piscina de estocagem do reator IEA-R1 e a medida da eficiência absoluta do conjunto detector (falta determinar exatamente a atividade da fonte de calibração de ^{137}Cs).

Para se testar o conjunto detector e o método experimental apresentados anteriormente, foram realizadas medidas no elemento combustível IEA-34 (LEU), que apresenta baixo grau de queima (próximo de zero) e foi irradiado há praticamente 40 anos. Estas medidas foram executadas fora da piscina de estocagem (a seco), fornecendo espectros gama.

Calibrou-se o sistema detector em energia, utilizando-se para tanto doze fontes de calibração e dois picos do fundo natural^[10]. Este procedimento permitiu

identificar os fotopicos presentes nos espectros gama do elemento combustível analisado. Tal identificação é apresentada na Fig. 3.

Tanto a observação de fotopicos do ^{235}U e do ^{238}U quanto o fato do ^{137}Cs ser o único produto de fissão gama emissor detectado (ver Fig. 3) podem ser atribuídos ao baixo grau de queima e ao longo tempo decorrido desde a irradiação do elemento combustível, conforme seria esperado tendo em vista os valores elevados do *yield* de fissão e da meia-vida para o ^{137}Cs .

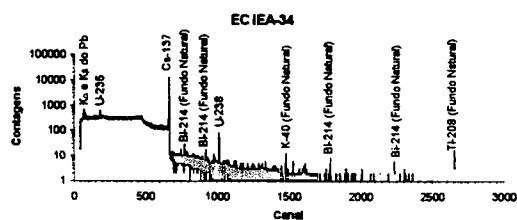


Figura 3. Espectro Gama Obtido no Ponto Central do Elemento Combustível IEA-34.

Se o grau de queima do elemento combustível IEA-34 fosse significativo e o tempo decorrido após a irradiação do mesmo fosse mais curto, a atividade de ^{137}Cs seria muito maior, a ponto do fotopico de ^{235}U ser encoberto pela região contínua de espalhamento Compton devido ao fotopico de 661.6 keV. Analogamente, a atividade de outros produtos de fissão radioativos gama emissores acabaria por encobrir o fotopico de ^{238}U .

Foram efetuadas cinco medidas ao longo do comprimento ativo (designadas por *I1*, *I2*, *I3*, *I4* e *I5*) e três medidas ao longo da largura ativa do elemento combustível (designadas por *w1*, *I3* e *w2*). Para cada espectro obtido, foi determinada a área sob o fotopico de 661.6 keV (correspondente ao monitor de queima ^{137}Cs). Os resultados são mostrados na Tab. 1.

TABELA 1. Valores da Área Sob o Fotopico de 661.6 keV. Obtidos a partir dos Espectros Gama Medidos ao Longo do Comprimento e Largura Ativos do Elemento Combustível IEA-34.

IEA-34	Medida	Área
Comprimento	<i>I1</i>	17421 ± 136
	<i>I2</i>	26008 ± 203
	<i>I3</i>	26615 ± 205
	<i>I4</i>	22783 ± 272
	<i>I5</i>	16431 ± 159
Largura	<i>w1</i>	26005 ± 203
	<i>I3</i>	26615 ± 205
	<i>w2</i>	26671 ± 203

Os perfis de queima encontrados para o elemento combustível IEA-34 são mostrados na Fig. 4 (perfil de

queima ao longo do comprimento ativo) e na Fig. 5 (perfil de queima ao longo da largura ativa).

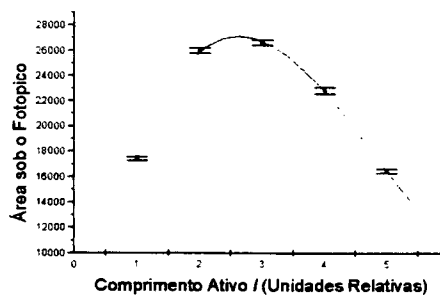


Figura 4. Perfil de Queima ao Longo do Comprimento Ativo do Elemento Combustível IEA-34.

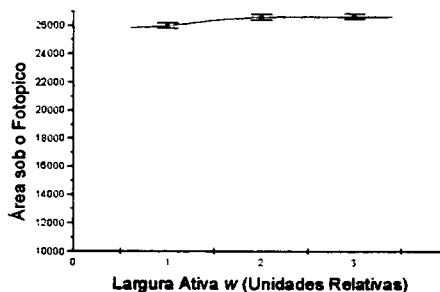


Figura 5. Perfil de Queima ao Longo da Largura Ativa do Elemento Combustível IEA-34.

Nota-se a semelhança entre os perfis de queima obtidos para o elemento combustível irradiado IEA-34 (Figs. 4 e 5) e aqueles mostrados na Fig. 2.

A pequena discrepância observada no perfil de queima ao longo da largura ativa pode ser explicada por imprecisões no posicionamento do conjunto detector quando da realização das medidas, decorrentes da necessidade de realizá-las rapidamente para diminuir a dose recebida pelos pesquisadores.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] Olander, D. R., *Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements*, Technical Information Center - U. S. Department of Energy, p. 184, Springfield, 1976.
- [2] Blanpain, P., Leenders, L., and Zwicky, H. U., *Non-Destructive Burnup Determination: Experimental Investigation on Low Burnup Gadolinia Fuel*, Burnup Determination of Water Reactor Fuel, IAEA, p. 39, Vienna, 1989.
- [3] Rasmussen, N. C., Sovka, J. A. and Mayman, S. A., *The Non-Destructive Measurement of Burn-up by*

Gamma-Ray Spectroscopy, Nuclear Materials Management. IAEA, p. 829 - 849, Vienna, 1966.

[4] Terremoto, L. A. A., **Espectrometria Gama em Combustíveis Nucleares Irradiados.** Relatório Técnico IPEN-CNEN/SP, PSE.REN.COPESP.003, p. 20-27. São Paulo, 1996.

[5] Gouffon, P., **Programa IDEFIX - Manual do Usuário.** Laboratório do Acelerador Linear, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, São Paulo, 1983.

[6] Terremoto, L. A. A., **Eletrodesintegração do ^{232}Th por Emissão de um Nêutron.** Dissertação de Mestrado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, p. 39, São Paulo, 1986.

[7] Kestelman, A. J. y Guevara, S. R., **Determinacion del Quemado en Combustibles Tipo MTR Mediante Espectrometria Gamma con Cristal de INa(Tl),** CNEA - CAB, p. 5 - 6, Bariloche, 1988.

[8] Bibichev, B. A., Maiorov, V. P., Protasenko, Y. M. and Fedotov, P. I., **Measurement of Fuel Burnup and Uranium and Plutonium Isotope Content of VVER-440 Fuel Assemblies Based on the Ratio of ^{134}Cs and ^{137}Cs Activity,** Nuclear Safeguards Technology 1978, Volume 1. IAEA, p. 387 - 394, Vienna, 1979.

[9] Dias, M. S., **Determinação da Queima do Combustível pela Técnica de Espectrometria Gama Não-Destrutiva.** Anais do VII Encontro Nacional de Física de Reatores e Termohidráulica. CNEN/ABEN/IAEA, p. 173 - 178, Atibaia, 1991.

[10] Knoll, G. F., **Radiation Detection and Measurement.** John Wiley & Sons Inc., p. 424 -427. New York, 1989.

ABSTRACT

This work describes the fundamental aspects of a method that uses gamma-ray spectroscopy in order to perform non-destructive burnup measurements in irradiated MTR fuel elements. Experiments based on such method will be conducted at the storage pool area of the IEA-R1 research reactor. Some preliminary results are presented.