

## TESTE DE *SIPPING* EM UM ELEMENTO COMBUSTÍVEL TIPO PLACA FALHADO

Luís Antônio Albiac Terremoto, Carlos Alberto Zeituni, Antonio Teixeira e Silva,  
José Augusto Perrotta e José Eduardo Rosa da Silva

Centro de Engenharia Nuclear (CEN)  
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN-SP)  
Av. Lineu Prestes 2.242 – Cidade Universitária  
05508-000 São Paulo, SP, Brasil

### RESUMO

Este trabalho descreve a realização de testes de *sipping* nos elementos combustíveis tipo placa que estavam sendo utilizados no núcleo do reator de pesquisa IEA-R1, com o objetivo de identificar em qual deles havia ocorrido falha no revestimento durante uma operação de rotina do reator. Foram empregados como indicadores de falha  $^{131}\text{I}$  e  $^{133}\text{I}$ , isótopos radioativos do iodo detectados nas amostras correspondentes ao elemento combustível IEA-156. A atividade específica em cada amostra, assim como a taxa média de vazamento para a água do recipiente em que se efetuou o teste, foram medidas para o  $^{137}\text{Cs}$ . Uma comparação entre taxas de vazamento medidas é estabelecida para os combustíveis nucleares tipo dispersão  $\text{U}_3\text{O}_8$  – Al e liga U – Al.

**Keywords:** nuclear fuel elements; research reactors; fission products.

### I. INTRODUÇÃO

O teste de *sipping* é uma técnica não destrutiva usada para avaliar a integridade estrutural do revestimento de combustíveis nucleares irradiados, cujo fundamento consiste na detecção do vazamento de produtos de fissão radioativos gama-emissores. Em período recente, no âmbito do IPEN/CNEN-SP, o uso desta técnica restringia-se a medidas para monitorar elementos combustíveis irradiados que já haviam sido retirados em definitivo do núcleo do reator de pesquisa IEA-R1 e se encontravam armazenados na piscina de estocagem [1], pois não havia ocorrência de falha em elementos combustíveis no núcleo.

No dia 30 de julho de 2001, durante operação de rotina à potência de 2 MW, foi constatada a liberação de produtos de fissão gasosos para a área do saguão da piscina do reator. Análises detalhadas feitas logo após o incidente mostraram que esta liberação foi causada por falha em um dos elementos combustíveis tipo placa em uso no núcleo do reator. A principal análise efetuada consistiu em testes de *sipping*, empregados tanto em caráter qualitativo, visando identificar qual dentre os 24 elementos combustíveis havia falhado, quanto quantitativo, com a finalidade de determinar a taxa média de vazamento dos produtos de fissão para a água.

Identificou-se o elemento combustível IEA-156 como falhado. Este elemento combustível, fabricado no IPEN/CNEN-SP, contém, no cerne de cada uma de suas 18 placas combustíveis planas paralelas,  $\text{U}_3\text{O}_8$  disperso em alumínio, com uma densidade de  $2,3 \text{ gU/cm}^3$  e grau de enriquecimento do urânio em  $^{235}\text{U}$  igual a 19,88 %. O material de revestimento das placas combustíveis do elemento é alumínio ASTM 1060 [2]. Este elemento estava

em uso no núcleo do reator desde o dia 08 de setembro de 1997 e havia atingido um grau de queima igual a 21,95 %. É importante destacar que outros 5 elementos combustíveis com características de fabricação idênticas foram introduzidos no núcleo do reator naquela mesma data e continuam operando sem apresentar qualquer problema até hoje [3].

Estas circunstâncias tornam particularmente interessante conhecer o(s) ponto(s) exato(s) do elemento combustível IEA-156 em que houve falha do revestimento, com a finalidade de determinar o que a causou. Inspeções visuais detalhadas, feitas com uma câmera subaquática resistente à radiação, foram incapazes de indicar a localização da falha, pois muito provavelmente a mesma está situada em áreas internas do elemento combustível. Exames em células quentes, onde este elemento combustível falhado pudesse ser desmontado e seus componentes manipulados, seriam de grande ajuda nesta investigação.

### II. TÉCNICAS EXPERIMENTAIS

Para realizar o teste de *sipping*, cada um dos 24 elementos combustíveis foi retirado da posição que ocupava no núcleo do reator IEA-R1, teve seu bocal inferior conectado a um tubo de plástico rígido e foi colocado dentro de um tubulão de alumínio (com 12 cm de diâmetro, 3 m de comprimento e aproximadamente 33 litros de volume), conforme mostra a Fig. 1. Durante estas movimentações, monitoradas continuamente por uma equipe de proteção radiológica, a profundidade na qual se encontrava o elemento combustível irradiado nunca foi

menor que 1 m, medido a partir da extremidade superior do mesmo, de maneira que a dose equivalente na superfície da água em momento algum ultrapassou 20 mrem/hora. Antes de serem iniciados os testes, o tubulão foi lavado com água desmineralizada para reduzir, tanto quanto possível, qualquer tipo de contaminação residual de radionuclídeos.

O tubulão, com o elemento combustível dentro, foi suspenso de maneira que sua extremidade aberta ficasse acima da superfície da água, sendo então fixado à ponte da piscina por meio de uma corda de nylon. Em seguida, um total de 150 litros de água desmineralizada foi injetado através do tubo de plástico rígido e fluiu pelo elemento combustível, lavando-o conforme mostra a Fig. 2. Após encerrada a lavagem do elemento combustível, uma amostra de água do tubulão foi coletada para medir a radiação de fundo. A amostra foi acondicionada em um pequeno frasco plástico (110 ml) e submetida posteriormente a medidas de espectrometria gama.

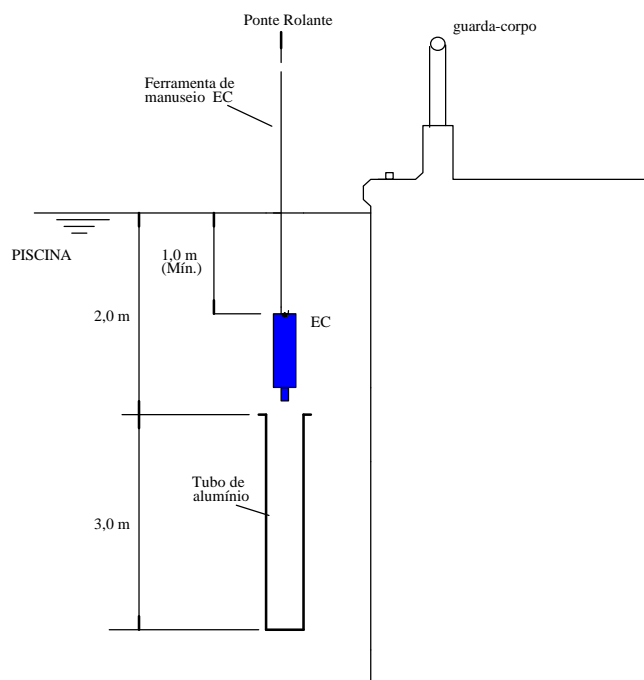


Figura 1. Representação Esquemática do Carregamento de um Elemento Combustível Irradiado.

O elemento combustível foi então deixado em repouso dentro do tubulão durante um intervalo de tempo maior ou igual a 4 horas. Ao término deste tempo de repouso, devidamente anotado, ar comprimido foi injetado através do tubo de plástico rígido durante 2 minutos, com a finalidade de homogeneizar a solução que conterá produtos de fissão no caso de haver falha no revestimento do elemento combustível. Uma amostra desta solução foi coletada em um pequeno frasco plástico (110 ml) e submetida a medidas de espectrometria gama.

Após decorrido um novo tempo de repouso, desta vez maior ou igual a 8 horas, a operação descrita no parágrafo anterior foi repetida e uma segunda amostra foi coletada. Todos os frascos usados para coletar amostras eram idênticos.

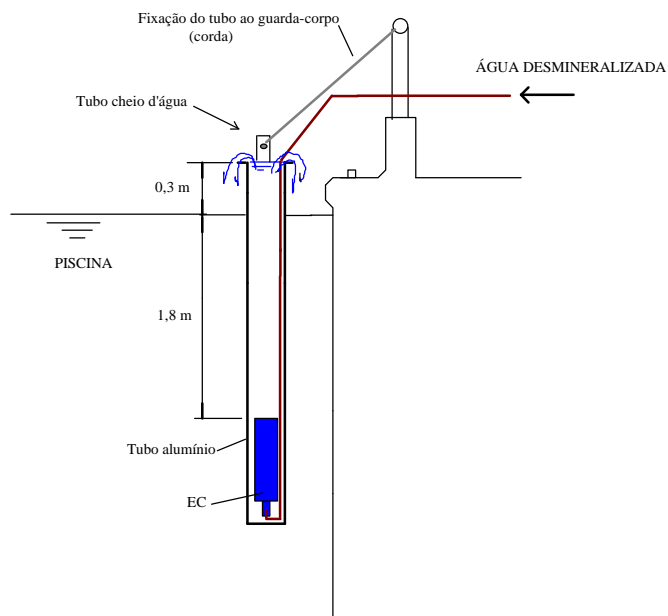


Figura 2. Representação Esquemática da Lavagem de um Elemento Combustível Irradiado.

Todas as etapas da operação de coleta das amostras foram monitoradas constantemente por uma equipe de proteção radiológica.

É importante estabelecer a diferença entre tempo de repouso e tempo de *sipping*. Enquanto o tempo de repouso é o intervalo de tempo decorrido entre a coleta de duas amostras sucessivas, o tempo de *sipping* é sempre medido a partir do instante de encerramento da lavagem do elemento combustível.

Todos os 24 elementos combustíveis do núcleo foram submetidos a testes de *sipping* de acordo com o procedimento descrito acima. Para tanto, foram utilizados simultaneamente 5 tubulões de alumínio idênticos.

As medidas de espectrometria gama foram efetuadas utilizando um detector HPGe de volume igual a 130 cm<sup>3</sup>, com resolução de 1,71 keV e eficiência relativa de 26,1 % para o raio gama de 1332,5 keV do <sup>60</sup>Co [4]. A faixa de energia abrangida pelas medidas se estendia desde 50 keV até 2800 keV. A aquisição de dados era efetuada com um analisador multicanal acoplado a um microcomputador através de uma interface de controle.

Durante as medidas, o detector HPGe foi encaixado na parte superior de uma blindagem cilíndrica de chumbo, dotada de abertura lateral móvel que possibilitava a colocação de amostras em seu interior. Em cada medida, o frasco plástico contendo a amostra de água coletada era posicionado dentro da blindagem de chumbo e próximo da janela do detector por meio de encaixe em um suporte de madeira, fixado previamente na base da blindagem, de modo a manter constante a geometria de contagem. Cada espectro de raios gama foi obtido como resultado de medida com duração de 4000 segundos em tempo vivo.

A calibração em energia do detector HPGe foi efetuada usando um total de 92 fotopicos de 15 fontes de calibração [5]. As energias dos fotopicos foram ajustadas como uma função polinomial de segundo grau dos canais correspondentes nos espectros de calibração. Através desta



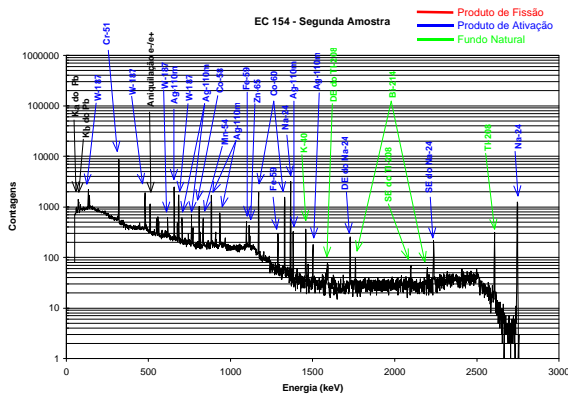


Figura 4. Espectro de Raios Gama Resultante de Medida com Duração de 4000 Segundos em Tempo Vivo, em Amostra Coletada após um Tempo de *Sipping* igual a 1106 Minutos do Elemento Combustível IEA-154 dentro do Tubulão, indicando a Procedência dos Principais Fotopicos Observados.

Entretanto, em caso de falha no revestimento do elemento combustível, ocorrem alterações drásticas nas características dos espectros de raios gama obtidos através de medidas em amostras coletadas após os tempos de *sipping* dentro do tubulão. A presença de diversos produtos de fissão passa a ser amplamente predominante e a atividade total da amostra aumenta consideravelmente, conforme é mostrado na Fig. 5. Todos os produtos de fissão observados apresentam grande facilidade de solubilização em água. Os isótopos radioativos do iodo aparecem com destaque. Este padrão de espectro foi observado apenas em medidas efetuadas nas duas amostras correspondentes ao elemento combustível IEA-156, fato que o identificou como falhado.

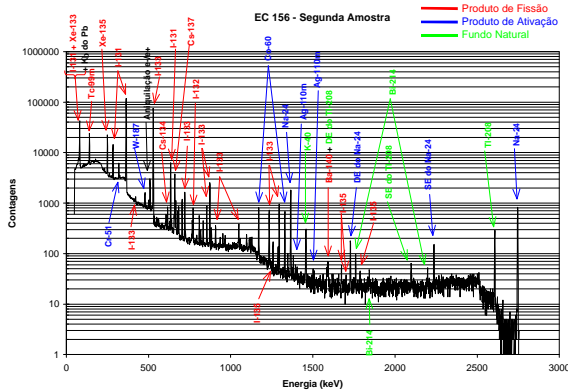


Figura 5. Espectro de Raios Gama Resultante de Medida com Duração de 4000 Segundos em Tempo Vivo, em Amostra Coletada após um Tempo de *Sipping* igual a 1144 Minutos do Elemento Combustível Falhado IEA-156 dentro do Tubulão, indicando a Procedência dos Principais Fotopicos Observados.

Para determinar a taxa média de vazamento de produtos de fissão para a água, as amostras correspondentes ao elemento combustível falhado IEA-156 foram medidas após 6 meses, fornecendo espectros de raios gama com o

aspecto mostrado na Fig. 6. Dentre todos os produtos de fissão observados anteriormente, restaram apenas os isótopos radioativos de cério que possuem meia-vida mais longa, com destaque para o  $^{137}\text{Cs}$ .

Sabendo-se que a constante de decaimento radioativo do  $^{137}\text{Cs}$  é  $\lambda = 7,2925 \cdot 10^{-10} \text{ s}^{-1}$  e a intensidade absoluta de emissão do raio gama de 661,6 keV é  $I_\gamma = 0,851$  [7], a atividade específica  $A$  de  $^{137}\text{Cs}$  em cada amostra medida foi determinada por meio da expressão (1), resultando conforme mostra a Tabela 1.

TABELA 1. Área sob o Fotopico de 661,6 keV, Atividade Específica  $A$  de  $^{137}\text{Cs}$  e Tempo de *Sipping*  $t$  para cada Amostra correspondente ao Elemento Combustível Falhado IEA-156.

Amostra	Área [contagens]	$A$ [Bq/l]	$t$ [min]
Primeira	$4353 \pm 89$	$1534 \pm 56$	251
Segunda	$8543 \pm 123$	$3011 \pm 101$	1144

Por fim, a taxa média de vazamento de  $^{137}\text{Cs}$  para a água, a partir do elemento combustível falhado IEA-156, foi obtida utilizando a expressão (2) e os dados contidos na Tabela 1, resultando  $R = (1,65 \pm 0,13) \text{ Bq/l.min}$ .

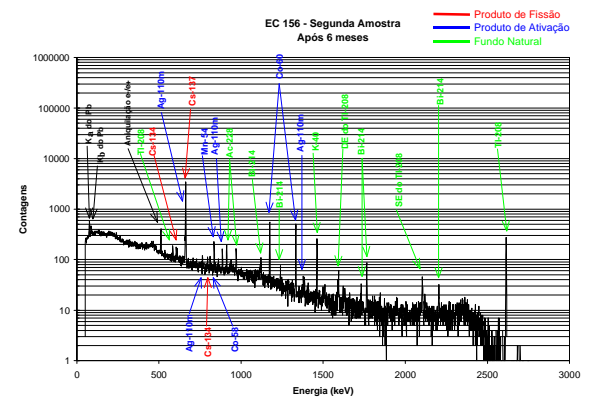


Figura 6. Espectro de Raios Gama Resultante de Medida com Duração de 4000 Segundos em Tempo Vivo, em Amostra Coletada após um Tempo de *Sipping* igual a 1144 Minutos do Elemento Combustível Falhado IEA-156 dentro do Tubulão, indicando a Procedência dos Principais Fotopicos Observados. A Medida foi efetuada após 6 Meses de Decaimento da Amostra.

#### IV. DISCUSSÃO

Ao realizar testes de *sipping* em elementos combustíveis irradiados que se encontram armazenados há longo tempo em piscinas de estocagem, o produto de fissão gama-emissor adequado para uso como indicador de falha é o  $^{137}\text{Cs}$ . Elevado rendimento na fissão, facilidade de solubilização em água e meia-vida longa (30,14 anos) são características que tornam este radionuclídeo praticamente a única opção neste aspecto [1].

Porém, na realização de testes de *sipping* em elementos combustíveis recém irradiados, como no caso apresentado neste trabalho, a escolha do indicador de falha não é tão óbvia. Sem dúvida, elevado rendimento na fissão e facilidade de solubilização em água permanecem características imprescindíveis do radionuclídeo gama-emissor a ser escolhido. No entanto, neste caso é desejável que a meia-vida seja bem mais curta, tipicamente da ordem de alguns dias, para que a atividade do radionuclídeo na amostra seja elevada e o mesmo possa ser facilmente identificado no espectro de raios gama.

Os espectros de raios gama resultantes de medidas nas amostras correspondentes ao elemento combustível falhado mostram claramente que  $^{131}\text{I}$  e  $^{133}\text{I}$ , isótopos radioativos do iodo com meias-vidas [7] respectivamente iguais a 8,02 dias e 20,8 horas, são os monitores de falha mais adequados nestas circunstâncias. O  $^{137}\text{Cs}$ , embora presente também nestes espectros, não aparece de maneira destacada.

Se por um lado a atividade elevada dos radioiodos mencionados torna quase imediata a identificação destes radionuclídeos nos espectros de raios gama de amostras correspondentes a elementos combustíveis falhados, por outro dificulta a realização de análises quantitativas precisas, pois seus fotopicos mais proeminentes (com energias [7] de 364,5 keV no caso do  $^{131}\text{I}$  e 529,9 keV no caso do  $^{133}\text{I}$ ) são encobertos, ainda que parcialmente, pela região contínua resultante de espalhamento Compton sofrido por diversos raios gama com energia mais elevada, os quais são emitidos tanto por eles próprios quanto por outros produtos de fissão.

Nestas circunstâncias, decidiu-se esperar as amostras decaírem durante 6 meses e então medir a taxa média R de vazamento de  $^{137}\text{Cs}$  para a água.

Ainda que seja impossível avaliar o desempenho, sob o aspecto da liberação de produtos de fissão na condição de falha no revestimento, do combustível nuclear tipo dispersão apenas levando em conta o valor de R medido, este pode servir como base para comparações com outros combustíveis nucleares.

Antes de serem transportados para os EUA, 60 elementos combustíveis irradiados que se encontravam armazenados na piscina de estocagem do reator IEA-R1 foram submetidos a testes de *sipping* e a inspeções visuais. A grande maioria destes elementos combustíveis estava em bom estado de conservação e não apresentou qualquer indício de vazamento apreciável de  $^{137}\text{Cs}$ . O elemento combustível IEA-53 constituiu uma exceção, pois havia vários pites de corrosão grandes localizados ao longo do revestimento de suas placas combustíveis externas e a taxa média de vazamento de  $^{137}\text{Cs}$  medida foi a mais alta dentre todos os elementos combustíveis testados [1].

O elemento combustível IEA-53, fabricado pela empresa norte-americana Babcock & Wilcox Co. nos anos 50, tinha 19 placas curvas revestidas com alumínio e como combustível nuclear uma liga U – Al cujo urânio era enriquecido a 20 % em  $^{235}\text{U}$ . Na data em que foi medida a taxa média de vazamento, a atividade total de  $^{137}\text{Cs}$  no elemento combustível perfazia  $1,406.10^{12}$  Bq. Neste elemento, a medida da taxa média de vazamento de  $^{137}\text{Cs}$  para a água resultou  $r = (0,208 \pm 0,017)$  Bq/l.min [1].

Sabendo-se que a atividade total de  $^{137}\text{Cs}$  no elemento combustível falhado IEA-156, na data de inserção no tubo, era igual a  $5,350.10^{12}$  Bq, a taxa média de vazamento de  $^{137}\text{Cs}$  medida para este elemento resultou, proporcionalmente à atividade total, cerca de 2,1 vezes maior do que a observada no elemento combustível IEA-53.

Antes de qualquer outro fator, é importante considerar que as condições de oxidação dos dois elementos combustíveis citados são totalmente diferentes, uma vez que o elemento combustível IEA-53 permaneceu estocado na piscina do reator durante quase 28 anos.

Condições de oxidação à parte, caberia esclarecer de que maneira outros dois fatores contribuíram para a diferença observada nos valores relativos das taxas médias de vazamento de  $^{137}\text{Cs}$ : a) tipo de combustível nuclear utilizado em cada elemento (dispersão  $\text{U}_3\text{O}_8$  – Al no IEA-156 x liga U – Al no IEA-53), b) características da falha presente em cada um dos elementos combustíveis (causa, tipo, localização, extensão).

Entretanto, com as técnicas não destrutivas disponíveis, não foi possível obter qualquer informação concreta sobre a causa, o tipo, a localização ou a extensão da falha ocorrida em 30/07/2001 no elemento combustível IEA-156.

Exames em células quentes, onde este elemento combustível falhado pudesse ser desmontado e seus componentes manipulados, seriam de grande ajuda nesta investigação.

## V. CONCLUSÃO

Testes de *sipping* foram empregados com sucesso no IPEN/CNEN-SP para identificar falha em elementos combustíveis que estavam sendo utilizados no núcleo do reator de pesquisa IEA-R1. Os testes tiveram tanto caráter qualitativo, visando identificar qual dentre os 24 elementos combustíveis havia falhado, quanto quantitativo, com a finalidade de determinar a taxa média de vazamento dos produtos de fissão para a água.

Diferentemente do que ocorreu nos testes de *sipping* realizados em elementos combustíveis armazenados durante um longo tempo na piscina de estocagem do reator – em que  $^{137}\text{Cs}$  foi o produto de fissão escolhido tanto como indicador de falha quanto para análises quantitativas – nos testes em elementos combustíveis recém irradiados a utilização dos isótopos radioativos do iodo  $^{131}\text{I}$  e  $^{133}\text{I}$  como indicadores de falha se mostrou mais adequada. A presença destacada destes produtos de fissão no espectros de raios gama das amostras correspondentes ao elemento combustível IEA-156 acabaram identificando-o como falhado.

A taxa média de vazamento de  $^{137}\text{Cs}$  para a água, a partir do elemento combustível falhado IEA-156, foi medida esperando-se as amostras decaírem por 6 meses. O valor obtido resultou, proporcionalmente à atividade total, pouco maior que o dobro encontrado para um elemento combustível estocado (IEA-53) que apresentava vários pites de corrosão ao longo do revestimento das placas combustíveis externas. Uma comparação mais conclusiva entre o desempenho, sob o aspecto da liberação de produtos

de fissão na condição de falha no revestimento, dos dois tipos de combustível nuclear usados (dispersão  $U_3O_8 - Al$  no IEA-156 e liga  $U - Al$  no IEA-53) requer um estudo das características da falha presente em cada um dos elementos combustíveis.

Exames em células quentes adequadas para manuseio de combustíveis nucleares irradiados, as quais o Brasil ainda não possui, seriam de grande valia para estudar estas características, o que não foi possível com as técnicas não destrutivas disponíveis na piscina de estocagem do reator.

## REFERÊNCIAS

- [1] Perrotta, J. A., Terremoto, L. A. A. and Zeituni, C. A., **Experience on Wet Storage Spent Fuel Sipping at IEA-R1 Brazilian Research Reactor**, Ann. Nucl. Energy 25, 237 – 258, 1998.
- [2] **Relatório Descritivo da Produção do Elemento Combustível IEA-156**, Divisão de Desenvolvimento de Elementos Combustíveis (MCP), IPEN/CNEN-SP, São Paulo, 1997.
- [3] Terremoto, L. A. A., Damy, M. de A., Umbehaum, P. E., Yamaguchi, M. e Cegalla, M. A., **Acompanhamento da Irradiação dos ECs Nacionais no Reator IEA-R1 – Período de Abril a Julho de 2001**, Relatório Técnico, Centro de Engenharia Nuclear (CEN), IPEN/CNEN-SP, São Paulo, 2001.
- [4] Quality Assurance Data Sheet – GEM Series HPGe (High Purity Germanium) Coaxial Detector System, EG&G ORTEC, Oak Ridge, 1993.
- [5] Knoll, G. F., **Radiation Detection and Measurement**, John Wiley & Sons Inc., New York, 1989.
- [6] Gouffon, P., **IDEFIX – Manual do Usuário**, Laboratório do Acelerador Linear / Instituto de Física da Universidade de São Paulo (LAL / IFUSP), São Paulo, 1983.
- [7] Reus, U. and Westmeier, W., **Catalog of Gamma Rays from Radioactive Decay – Part II**, At. Data and Nucl. Data Tables 29, 193 – 406, 1983.

## ABSTRACT

This work describes sipping tests performed on MTR fuel elements of the IEA-R1 research reactor, in order to determinate which one failed in the core during a routine operation of the reactor. Radioactive iodine isotopes  $^{131}I$  and  $^{133}I$ , employed as failure indicators, were detected in samples corresponding to the fuel element IEA-156. The specific activity of each sample, as well as the average leaking rate, were measured for  $^{137}Cs$ . The nuclear fuels  $U_3O_8 - Al$  dispersion and  $U - Al$  alloy were compared concerning their measured average leaking rates of  $^{137}Cs$ .