

ANÁLISE DA DEGRADAÇÃO DE BARRAS ABSORVEDORAS DE NÊUTRONS DE Ag-In-Cd. PARTE 1: DEPLEÇÃO DA LIGA, EFETIVIDADE DE ABSORÇÃO DE NÊUTRONS E PROPRIEDADES MECÂNICAS

Myrthes Castanheira, Luis Antônio A. Terremoto, José Eduardo Rosa da Silva, Carlos Alberto Zeituni

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

RESUMO

A liga original das barras absorvedoras do reator IEA-R1, admitindo-se similar à liga tipo 2533 (composição 81,5% Ag – 13,6% In – 4,9% Cd), foi projetada para operar durante um tempo de vida equivalente a uma exposição de $\sim 10^{21}$ n/cm² (térmicos), de modo a preservar a sua característica primordial de liga unifásica. Através da análise do comportamento sob irradiação de barras absorvedoras de Ag-In-Cd, este trabalho apresenta uma avaliação semiquantitativa da condição atual de degradação das barras absorvedoras do reator IEA-R1, do ponto de vista da depleção da liga, efetividade de absorção de nêutrons e propriedades mecânicas, complementando assim os resultados das inspeções visuais realizadas em 1998, 2000 e 2001, que indicaram visível grau de degradação acumulado ao longo de 29 anos de operação no reator.

Keywords: neutron absorber bar, Ag-In-Cd, depletion, reactor control.

I. INTRODUÇÃO

A liga Ag-In-Cd combina alta seção de choque para nêutrons térmicos ($E < 0,6$ eV) do Cd com razoável seção de choque para nêutrons epitérmicos ($0,6$ eV $< E < 0,8$ eV) da Ag e do In. A combinação de Ag e Cd tem uma boa efetividade inicial, mas a rápida depleção do Cd deve ser levada em conta no que concerne a aplicações em núcleos de longa vida. A prata, um forte absorvedor na faixa de ressonância, não é um bom absorvedor de nêutrons térmicos. As adições de Cd melhoram a absorção por nêutrons térmicos da liga, mas o incremento de sua concentração é limitado devido à instabilidade metalúrgica em combinações binárias. Melhorar complementar nas propriedades de absorção são conseguidas através da participação do In na liga.

A capacidade de absorção de nêutrons da barra de controle (BC) é comandada por quantidades relativamente pequenas de material de grande seção de choque microscópica. O processo de absorção resultará em transmutações para materiais de mais baixa seção de choque e assim, num rápido decréscimo da capacidade de absorção da BC durante a operação do reator.

A capacidade de resistir a tal depleção é uma importante consideração na seleção dos materiais de controle e está relacionada à densidade de absorção (n^0 de átomos absorvedores por unidade de volume) e à seção de choque dos isótopos produzidos, seja diretamente por

captura de nêutrons, seja indiretamente por decaimento ou isótopos radioativos produzidos pela captura de nêutrons.

Duas conseqüências desta depleção nas BCs devem ser consideradas: a perda da efetividade causada pela transmutação de um isótopo tendo uma grande seção de choque para (em geral) um isótopo tendo uma pequena seção de choque e o efeito da composição alterada da BC sobre suas propriedades mecânicas e corrosão.

Alterações dimensionais podem ser causadas por diversos modos durante o serviço, seja por instabilidade química ou metalúrgica, ou diretamente por crescimento ou *voidage* induzido por nêutrons rápidos. Exemplo de tais ocorrências são observados em ligas de Ag-In-Cd, com respeito a mudanças de fase induzidas por transmutação [1]. Na aplicação de materiais absorvedores para controle do reator é de grande importância a questão da estabilidade dimensional durante a operação, já que distorções ou inchamento dos absorvedores pode levar a barra absorvedora de nêutrons (BA) empregada à falha, com resultante perda de material absorvedor para o refrigerante do reator. Isto pode gerar conseqüências deletérias sobre o controle e sobre a condição de outros componentes do reator. E ainda, considerando que as BAs são elementos em movimento, a instabilidade dimensional pode inibir o seu movimento normal. Desta forma, é importante acompanhar a estabilidade dimensional sob condições típicas de serviço.

Através da análise do comportamento sob irradiação de barras absorvedoras de Ag-In-Cd, este trabalho

apresenta uma avaliação semiquantitativa da condição atual de degradação das barras absorvedoras em uso no reator IEA-R1, do ponto de vista da depleção da liga, efetividade de absorção de nêutrons e propriedades mecânicas, complementando assim os resultados das inspeções visuais realizadas em 1998, 2000 e 2001 (vide trabalho [2] apresentado neste evento), que indicaram visível grau de degradação acumulado ao longo de 29 anos de operação no reator. Um outro trabalho, também incluído neste evento [3] complementa a avaliação do ponto de vista do comportamento quanto à corrosão e contaminação da água do reator IEA-R1.

II. EMBASAMENTO TEÓRICO E EXPERIMENTAL

Efeito da composição na estrutura da liga Ag – 15% In – 5% Cd. A liga ternária 80% Ag – 15% In – 5% Cd é uma solução sólida cúbica de face centrada (CFC). Durante a irradiação, Ag e In transmutam para Cd e Sn, respectivamente, com o Cd transmutando para uma série de isótopos. Como a composição da liga muda, se a exposição for suficientemente longa, pode-se atingir um ponto onde uma segunda fase é formada, com resultante alteração em propriedades e dimensões. Para a composição considerada, a formação de uma pequena quantidade (até 20% vol.) desta 2ª fase, do tipo hexagonal compacta (HC), pode ser permitida durante irradiação por longo tempo e será até mesmo benéfica para as propriedades de resistência dos materiais. Entretanto, grandes quantidades da segunda fase comprometem seriamente sua ductilidade. A presença da fase HC é distinguida pela perda da microestrutura equiaxial e entrelaçada, típica da fase CFC [4]. A liga 2533, após exposição ao fluxo integrado de $\sim 10^{21}$ n/cm² (térmico), resultará numa composição aproximadamente representada pela liga 2567, a qual contém uma pequena quantidade (vol. <10%) de fase HC, como visto na tabela a seguir.

TABELA 1. Efeito da Irradiação na Estrutura da Liga 2533 [5]

Composição antes da irradiação (% massa)					Estrutura cristalina	
Liga	Ag	In	Cd	Sn	Micro	X-ray
2533	81,5	13,6	4,9	-	CFC	CFC
2567	76,3	11,4	9,4	2,2	CFC e HC	-
Composição esperada após irradiação (% massa)					Estrutura cristalina	
Liga irradiada	Ag	In	Cd	Sn	Micro	X-ray
2533 irradiada	76,5	10,9	9,9	2,7	CFC e HC	

Efetividade de absorção da liga Ag-In-Cd. Os picos de absorção de Ag e In não ocorrem nas mesmas energias. Assim, estes elementos complementam um ao outro com respeito à absorção na região de ressonância. A adição de Cd à liga resulta num material com características de relativamente alta absorção em ambas as regiões, térmica e

epitérmica. A alta seção de choque de absorção para nêutrons térmicos do Cd é o resultado direto da grande ressonância de absorção em Cd-113, próxima à região térmica. Desde que o Cd natural possui apenas 12,26% Cd-113 e desde que a seção de choque de absorção térmica do Cd-113 é ~ 20.000 barns, uma pequena quantidade de Cd-113 é rapidamente transformada em Cd-114 com seção de choque de apenas 1,3 barns. O decréscimo resultante na absorção térmica resulta em perda de reatividade da BC com o tempo. Como observado na tabela 2, ligas de Ag-In-Cd foram produzidas para possuir uma efetividade maior que o Hf, mas a depleção do Cd-113 resulta num material alguns percentuais menos efetivo.

TABELA 2. Propriedades de Absorção de Materiais de Barras de Controle [6]

Material ^a (sem revestimento)	Liga Ag-20%In-5%Cd	Háfnio
Absorvidade ^b para nêutrons térmicos	5,81 (2,52) ^d	2,89
Efetividade relativa ^c em LWRs	1,03 (0,93) ^e	1,00
Moles de isótopo absorvedor por dm ² de área da BC	5,15 (0,03) ^f	5,52

- Espessura considerada para fins de comparação entre os materiais = $\frac{1}{4}$ pol.
- Absorvidade é a seção de choque macroscópica multiplicada pela espessura do material.
- Os valores da efetividade relativa são valores medidos exceto onde indicado (onde são estimados a partir de dados sobre o mesmo material, mas a uma diferente concentração).
- Após a depleção do Cd, a absorvidade decrescerá aos valores mostrados em parênteses.
- A efetividade estimada após a depleção do Cd é mostrada em parênteses.
- Valor entre parênteses, moles de 113-Cd por dm² de área.

Depleção das barras absorvedoras de nêutrons de Ag-In-Cd. A perda de reatividade sob exposição neutrônica está mostrada na Fig. 1. Os dados de reatividade são plotados versus exposição a nêutrons térmicos, embora as amostras tivessem sido expostas a considerável fluxos epitérmico e rápido. Como esperado, a liga Ag-15%In-4.8%-Cd perde rapidamente considerável reatividade, pois o Cd-113 é consumido logo no início da irradiação. Depois disto, a taxa de perda torna-se mais gradual.

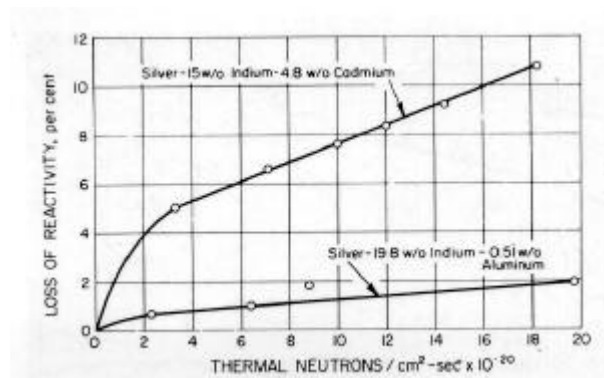


Figura 1. Mudança na Reatividade de Ligas à Base de Ag Irrradiadas [7].

Os dados de perda de reatividade na parte em linha reta da curva para a liga $A-15\%In-4,8\%Cd$ indicam uma perda uniforme de 2,5% por 5×10^{20} nvt, sendo que a 10^{21} nvt, a perda já acumula 7,5%.

Danos da radiação. Em todos os absorvedores que atuam por reação de captura n, g , os produtos produzidos por estes materiais (sejam eles por captura de nêutron ou por decaimento radioativo) são do mesmo elemento ou então elementos proximamente relacionados. Assim, não existe problema de grande dissimilaridade de átomos nestes materiais e não há nenhum gás formado durante a irradiação. Por esta razão, o problema de danos por radiação é essencialmente o mesmo apresentado em materiais estruturais, nos quais nêutrons rápidos são a maior causa de dano, podendo resultar em instabilidade dimensional e metalúrgica. [1, 8].

Efeito da irradiação sobre as propriedades mecânicas nas barras absorvedoras. Amostras de teste de tração - ruptura de liga Ag-15% In - 4,8% Cd foram irradiadas em cápsulas de Zry-2 num loop MTR do *Bettis Atomic Power Laboratory* com refrigerante a baixa temperatura (40 °C). Mudanças nas propriedades de tração - ruptura, dureza, densidade, estrutura metalográfica resistência à corrosão e propriedades de reatividade foram determinadas. A tabela a seguir indica que a resistência e dureza aumentam. A elongação (ductilidade) decresce de 50 para 45%, confirmando os testes out-of-pile. Nenhuma alteração dimensional ou na densidade foi detectada. Também, nenhuma alteração foi detectada na estrutura metalográfica como resultado da irradiação a baixa temperatura.

TABELA 3. Propriedades de Tração e Dureza da Liga Ag-15%In-4.8%-Cd [7, 9]

Amostra ^a	Exposição integrada ($10^{20} \times n/cm^2$)		S_y MPa	S_t MPa	Dureza HB	ϵ_f %
	térmico	epitérmico				
A ^b	amostra de controle		56,81	256,46	56 +/- 2	-
B ^b	amostra de controle		56,81	271,62	56 +/- 2	52
C ^b	amostra de controle		60,12	266,80	56 +/- 2	50
D ^c	14,4	0,7	94,10	285,41	72 +/- 2	44
E ^c	9,9	0,37	147,53	286,79	-	44
F ^c	3,3	0,27	194,34	285,41	94 +/- 2	44

- Todas as amostras foram laminadas a frio 20% e recozidas a 500 °C.
- As amostras de controle apresentam valores antes da irradiação
- Após exposição da cápsula de irradiação ao fluxo integrado em água à temperatura de 40 °C

O efeito da irradiação típico sobre as propriedades de tensão do material Ag-In-Cd de barras absorvedoras de nêutrons do núcleo I do reator PWR Yankee é apresentado na tabela a seguir. Os resultados indicaram apenas pequena alteração na resistência e ductilidade e, surpreendentemente, pouco efeito da temperatura de teste comparada aos dados na condição não irradiado. As propriedades pós-irradiação para $E_n > 1$ MeV foram

similares tanto para baixa exposição (4×10^{19} n/cm²) quanto para alta exposição (4×10^{20} n/cm²) do material.

TABELA 4. Propriedades Mecânicas das Barras de Controle Irradiadas no PWR Yankee (96 FPD efetivos) [4]

Condição de Irradiação	T teste °C	S_y MPa	S_t MPa	R %
Não irradiado	25	52	266	55
Baixa exposição	25	48	276	42
Alta exposição*	25	50	294	50
Não irradiado	315	51	188	44
Baixa exposição	315	57	261	36
Alta exposição*	315	51	211	21

Este comportamento é atribuído à relativamente alta temperatura de irradiação (~315 °C para reatores de potência), a qual tende a curar (por recozimento) a alteração da dureza induzida pelos nêutrons rápidos. Parece que as temperaturas praticadas em PWRs são suficientemente altas para inibir as alterações nas propriedades, observadas em amostras irradiadas em temperaturas mais baixas. Concluiu-se que a irradiação sob condições de operação para PWRs nem melhora as propriedades nem provoca um efeito significativamente deletério [4,10]. Na Tabela 5, observa-se que a liga 2567 apresenta melhores propriedades de resistência à tração - ruptura e apenas uma pequena perda de ductilidade quando comparada com a liga 2533, após exposição ao fluxo integrado de $\sim 10^{21}$ n/cm² (térmico).

TABELA 5. Propriedades de Tração de Ligas 2533 (81,6% Ag-13,6%In-4,9% Cd) e 2567 (76,3%Ag-12,1%In-9,4% Cd-2,0%Sn) do Loop do MTR Bettis Laboratory [5]

Liga	Temperatura de teste °C	Resistência		Ductilidade	
		S_y MPa	S_t MPa	R %	ϵ_f %
2533	21	72,39	295,06	62	67
	315	66,18	121,33	50	34
2567	21	157,18	366,76	45	50
	315	108,24	121,33	65	35

III. METODOLOGIA DE ANÁLISE

Cabe ressaltar o grau de dificuldade para obtenção de informações completas sobre os problemas dos materiais componentes de BAs utilizadas em reatores de pesquisa, pois neste caso, se depara com uma área sensível relacionada à operação desta categoria de reator, e a disponibilização de informação operacional é extremamente limitada na literatura aberta. Muitos relatórios relacionados à fase de projeto para elementos de controle utilizados em reatores de potência estão disponíveis, mas material informativo similar para reatores

de pesquisa são quase que inexistentes. Conferências internacionais e simpósios sobre os aspectos da ciência dos materiais relacionados ao assunto são relativamente poucos e distantes entre si. Por este motivo, boa parte das assunções apresentadas durante este trabalho foram feitas por analogia com dados gerados em reatores de testes de materiais simulando as condições encontradas nos reatores de potência ou mesmo, à partir de observações coletadas em reatores de potência *per si* e ainda, em artigos relacionados a novos projetos publicados por fabricantes, que se utilizavam de dados gerados nas duas fontes já mencionadas. Para isto, foram necessários o estabelecimento de hipóteses e critérios de parametrização, que permitissem o correlacionamento destas informações com os dados disponíveis do reator IEA-R1.

Hipóteses para o cálculo da depleção. Desde que Ag, Cd, In e Sn são elementos dos grupos I, II, III e IV da tabela periódica com átomos apresentando valências de 1, 2, 3, 3 e 4 respectivamente, é evidente que o limite de solubilidade na Ag é controlado pela regra da concentração de elétrons delineada por Hume-Rothery [11]. Daí se deriva que as composições das ligas ternárias com base em Ag, para manter-se como liga em solução sólida, devem atender ao seguinte requerimento: $X + 2y + 3z + 3w + 4v = 1,4$, onde as frações atômicas de elementos tais como Ag, Cd, In e Sn são representados pelos símbolos x, y, z, v , respectivamente. Numa liga ternária, tipo Ag-In-Cd, as composições que resultarão numa solução sólida de única fase podem ser calculadas por meio da equação acima, quando a concentração de um dos constituintes é estabelecida. Adições de Sn à liga de Ag provocam diminuição da razão elétron / átomo para cerca de 1,3 implicando na necessidade de correção do fator. Entretanto, a menos que concentrações relativamente altas de Sn sejam previstas numa liga quaternária, a equação acima representa uma boa aproximação, desde que a razão elétron / átomo seja aproximadamente 1,4. Durante a irradiação das ligas Ag-In-Cd, todos os produtos de transmutação apresentam baixa seção de choque de absorção de nêutrons, portanto a reatividade da liga decrescerá com o tempo. Com a ocorrência de reações (n, γ) a liga se transformará para quaternária. Para garantir que a liga permaneça como fase única é necessário considerar não apenas a composição inicial, mas também a composição atingida após exposição a irradiação. Uma aproximação conservativa pode ser feita, assumindo-se as seguintes hipóteses:

1. Sejam em uma liga Ag-In-Cd inicialmente ternária:
 - $X = x_1 + x_2 =$ fração de átomos da Ag, onde $x_1 =$ fração da composição da Ag na liga que sofre transmutação em Cd devido a nêutrons lentos; $x_2 =$ fração da composição da Ag na liga que sofre transmutação em Cd devido a nêutrons rápidos;
 - $y = Y + (I-X) =$ fração de átomos do Cd;
 - $Z = z_1 + z_2 = (I - X - Y) =$ fração de átomos do In, onde $z_1 =$ fração da composição da In na liga que sofre transmutação em Sn devido a nêutrons lentos e $z_2 =$ fração da composição da In na liga que sofre transmutação em Sn devido a nêutrons rápidos.

2. A densidade da liga é $\sim 10,2 \text{ g/cm}^3$, sendo a Ag o maior constituinte, com cerca de $6 \times 10^{22} \text{ átomos/cm}^3$.
3. A liga foi exposta 62.592 horas ($\sim 2,25 \times 10^8$ segundos) a um fluxo integrado médio total de $1,174 \times 10^{22} \text{ n/cm}^2$, que corresponde a $8,45 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ (para nêutrons rápidos com $E > 0,625 \text{ eV}$) e $3,29 \times 10^{21} \text{ n/cm}^2$ (para nêutrons térmicos com $E < 0,625 \text{ eV}$), conforme calculado para a configuração 207 do reator.
4. Foi considerado o fluxo médio integrado no tempo como principal parâmetro direcionador da análise, independentemente da potência de operação do reator e das condições neutrônicas de cada barra absorvedora. A parametrização pelo fluxo integrado possibilitará a comparação entre o comportamento de elementos absorvedores do tipo, utilizados tanto em reatores de potência como em reatores de pesquisa, como o IEA-R1. Os fatores pertinentes às condições de operação dos reatores irão influenciar apenas no que tange aos parâmetros termo-hidráulicos (pressão, temperatura) e química da água do sistema, quando assim for destacado. A estimativa apresentada a seguir é conservativa (considera alta exposição das barras absorvedoras), mas provavelmente deverá diferir no máximo em uma ordem de grandeza para menos.
5. A composição da liga utilizada no reator IEA-R1 é similar à liga tipo 2533 (81,5% Ag – 13,6% In – 4,9% Cd) [12]. Sabendo-se que a liga 2533 é projetada para manter uma estrutura da solução sólida unifásica, o fluxo limite de exposição por nêutrons térmicos é $\sim 10^{21} \text{ nêutrons/cm}^2$. Neste limite de exposição, a liga 2533 apresenta uma composição equivalente àquela da liga 2567 [5].
6. A estimativa da composição atual da liga das BCs do IEA-R1 é calculada em três etapas:
 - a) Composição correspondente ao tempo limite de projeto, equivalente a um fluxo integrado de $10^{21} \text{ nêutrons/cm}^2$ (térmico), ou seja, tempo limite = $6,85 \times 10^7$ segundos, o que representa ~ 10 anos de irradiação no regime de operação do reator IEA-R1.
 - b) Composição atual, ou seja, aquela correspondente ao tempo total de irradiação das barras absorvedoras no reator IEA-R1 até o final do ano 2000.
 - c) Determinação do tempo de irradiação e composição correspondente à total transmutação do In em Sn.
7. As seções de choque médias de absorção por nêutrons térmicos para Ag, In e Cd são, respectivamente, 63, 196 e 2450 barns, ou seja, 63×10^{-24} , 196×10^{-24} e $2450 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$.
8. As seções de choque médias de absorção por nêutrons na faixa de ressonância para Ag, In e Cd são, respectivamente, 110, 194 e 10 barns, ou seja, 110×10^{-24} , 194×10^{-24} e $10 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$.
9. Todos os átomos na liga estão sujeitos ao fluxo total de $5,21 \times 10^{13} \text{ nêutrons/cm}^2 \cdot \text{s}$, ou seja, são desprezados depressão de fluxo, autoblindagem e os efeitos de depleção de isótopos.
10. Número de átomos transmutados numa amostra de 1 cm^3 é dado por $N_T = x \cdot N_i \cdot S_a \cdot f \cdot t$ onde, $x =$ fração de átomos; $N_i =$ número inicial de átomos; $S_a =$ seção de choque transversal de captura de nêutrons num cm^2 ; f

= fluxo de nêutrons em $\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}$; t = tempo de exposição em segundos.

IV. RESULTADOS E COMENTÁRIOS

Sobre a situação de depleção das barras absorvedoras do reator IEA-R1.

- A. Estima-se que a composição final da liga após irradiação no tempo limite de projeto (exposição em reator de potência à $n_v = 10^{14}$ por nêutrons térmicos) é equivalente à composição da liga 2567: Ag = 76,5%; Cd = 9,9%; In = 10,9%; Sn = 2,7%.
- Comentário. A liga originalmente empregada nas BAs do reator IEA-R1 é similar à liga 2533. Esta liga unifásica, após exposição a um fluxo integrado por nêutrons térmicos de $\sim 10^{21}$ n/cm^2 , resultou numa composição aproximadamente representada pela liga bifásica 2567, contendo, teoricamente, cerca de 15,4% em vol. de fase HC. A composição ora apresentada é uma estimativa daquela que estaria presente após cerca de 10 anos de irradiação no reator IEA-R1 (ou seja, no ano de 1982).
- B. Estima-se a seguinte composição remanescente da liga nas condições atuais de irradiação: Ag = 64,33%; Cd = 22,07%; In = 4,83%; concentração formada do Sn = 8,77%.
- Comentário 1. Estima-se que, atualmente, a segunda fase da estrutura cristalina da liga (hexagonal compacta) teria alcançado a concentração 62,5% em vol., bem superior ao limite de 20% em vol. (postulado como suficiente para tornar a liga das BAs instável).
 - Comentário 2. O isótopos de Cd formados a partir da transmutação da Ag possuem todos baixa seção de choque de absorção, portanto sua produção apenas incrementa a porcentagem de Cd na liga e não contribui para o *blackness* do material de controle. Idem com relação aos isótopos de Sn formados a partir da transmutação do In (todos estáveis e com seções de choque desprezíveis).
 - Comentário 3. Pelas hipóteses previamente assumidas, os átomos formadores da liga são expostos a um fluxo máximo, o que leva a mudanças maiores do que realmente ocorrem. As alterações acima indicadas seriam percebidas apenas se não houvesse nenhuma depressão de fluxo e nenhuma autoblindagem e ainda, com um alto fluxo uniformemente distribuído sobre o comprimento total da BA. Na realidade, durante a utilização da BA, tem-se que o máximo fluxo de nêutrons se aplica sobre apenas uma fração do comprimento da BA, sendo o fluxo na vizinhança imediata da barra reduzida por um fator de 5 a 10 [4].
 - Comentário 4. Cabe ressaltar que a seção transversal da barra é suficientemente espessa, tal que os nêutrons são capturados primeiramente nas camadas superficiais, estando o metal subjacente blindado até que os isótopos de alta seção de choque de absorção de nêutrons praticamente se esgotem nestas camadas

superficiais. Desta forma, se os efeitos dos nêutrons epitérmicos fossem desprezíveis ou pequenos, as mudanças na composição seriam menores que as calculadas acima, diminuindo assim a probabilidade de incremento na formação da segunda fase.

- C. Estima-se a seguinte a composição remanescente para a condição de total transmutação do In em Sn (projeção sobre a depleção severa da estrutura da liga): In = zero % no tempo = $9,7924 \cdot 10^7$ segundos; Ag = 55,33%; Cd = 31,07%; concentração formada do Sn = 13,6%.
- Comentário 1. O tempo estimado corresponde a cerca de 39 anos de irradiação. Baseando-se nesta estimativa de tempo, pode-se afirmar que, teoricamente, no ano de 2011 (considerando-se o regime atualmente vigente de operação do reator IEA-R1) a ductilidade da liga das barras absorvedoras do reator IEA-R1 se apresentará completa e irremediavelmente comprometida.
 - Comentário 2. Estima-se que na época, a segunda fase da estrutura cristalina da liga (hexagonal compacta) terá alcançado a concentração 100% em vol., bem superior ao limite de 20% em vol. (suficiente para tornar a liga das BAs bastante instável).
 - Comentário 3. Lembrando que o limite de solubilidade das ligas em Ag (para que se mantenha como liga unifásica estável) é de 40, 20 e 10 % em átomos para Cd, In e Sn, respectivamente [4], pode-se observar na projeção da composição de liga resultante, que a concentração de estanho (13,6%) extrapolou seu limite e a concentração de cádmio (31,07%) já se mostraria próxima do seu limite. Cabe ressaltar que a proximidade do Cd em relação a seu limite de concentração é extremamente danosa para a liga, pois na faixa de concentração 40%-70%, o Cd passa a desenvolver múltiplas fases, conforme apresentado na tabela seguir. Tal fato deverá causar forte instabilidade metalúrgica, o que reduzirá sua ductilidade drasticamente, tornando a liga inaceitável para uso como barra de controle.

TABELA 6. Estrutura de Fases em Função da Composição de Liga [4]

Composição (% atômica)	Fase	Estrutura	Tipo
42,2 - 48,5	a	cúbica de face centrada	A1
46,8 - 55,4	z	hexagonal compacta	
47,4 - 49,9	b	cúbica de corpo centrado	A2
55,4 - 67,1	g	isotópica com bronze g	D8 ₂
> 67,1%	e	hexagonal compacta	

Sobre o efeito da radiação nas barras absorvedoras do reator IEA-R1. Após os 10 primeiros anos de irradiação (isto é, no ano de 1982) no reator IEA-R1 (equivalente a um fluxo integrado por nêutrons térmicos de $\sim 10^{21}$ n/cm^2), a liga das BAs já estaria apresentando composição

próxima àquela da liga 2567, cujas propriedades mecânicas estão apresentadas na Tabela 5. O surgimento e posterior incremento da concentração de Sn (2,7%) implicou na formação e subsequente aumento da concentração da fase hexagonal compacta (15,4% em vol.), resultando em incremento da resistência (e da dureza) da liga, a qual será efetiva até se atingir cerca de 20% em volume de fase HC, tendência que pode ser observada nos resultados apresentados na Tabela 3. Para este nível de fluência, a perda de reatividade da liga seria cerca de 7,5% do seu valor inicial. Esta composição de liga é equivalente àquela que estaria presente após 3000 horas de operação a um fluxo por nêutrons térmicos de 10^{14} nv na condição de projeto para um núcleo PWR da década de 60 [4] ou ~1 ciclo de irradiação de uma RCCA de um PWR da década de 70, correspondendo um fluxo integrado de $1-4 \times 10^{21}$ nvt (térmico), $E < 1,85$ eV [13, 14, 15].

Atualmente, admitindo-se que as BAs do IEA-R1 tenham acumulado uma exposição de 62.592 horas de irradiação a um fluxo integrado médio total de $1,174 \times 10^{22}$ n/cm², estima-se que a segunda fase da estrutura cristalina da liga teria alcançado a concentração 62,5% em vol., bem superior ao limite de 20% vol. postulado como suficiente para tornar a liga das BAs instável. Portanto, os valores das propriedades mecânicas já se encontrariam em patamares inferiores aos apresentados nas tabelas acima citadas. Este comportamento é atribuído à relativamente baixa temperatura de irradiação aplicada no reator IEA-R1 (< 100 °C), não suficiente para destemperar a dureza induzida pelos nêutrons rápidos, conforme justificado na Tabela 4. Para este nível de fluência, a perda de reatividade da liga seria cerca de 18,95% do seu valor inicial. Cabe ressaltar um dos critérios utilizados para PWRs da Siemens - KWU para limitação do tempo de permanência da liga absorvedora em operação: do ponto de vista neutrônico: redução de efetividade nos RCCAs em 10% (o que corresponderia a ~30 anos de irradiação para esta categoria de reator) [16].

Deve-se ressaltar que o tempo atual de vida de projeto dos RCCAs é de 15 anos, mas neste caso, são levados em consideração aspectos adicionais, tais como: interação cladding - absorvedor (devido ao inchamento do absorvedor), creepdown do cladding ao redor do absorvedor e possível redução da espessura da parede do cladding devido a desgaste.

Estima-se que todo índio terá transmutado para estanho após cerca de 39 anos de irradiação, ou seja, acumulando uma exposição de ~96.670 horas de irradiação a um fluxo integrado médio total de $1,82 \times 10^{22}$ n/cm² (correspondente a $1,31 \times 10^{22}$ n/cm² para nêutrons rápidos e $5,08 \times 10^{21}$ n/cm² para nêutrons térmicos), considerando-se o regime e potência atualmente vigentes de operação do reator IEA-R1. Baseando-se nesta estimativa de tempo, pode-se afirmar, teoricamente, que no ano de 2011 tanto as propriedades de resistência quanto as de ductilidade da liga das barras absorvedoras do reator IEA-R1 se apresentarão completamente degradadas e, portanto, inaceitáveis. Para este nível de fluência, a perda de reatividade da liga seria cerca de 31,5% do seu valor inicial.

V. CONCLUSÃO

A análise dos aspectos relacionados à depleção com a irradiação da liga utilizada nas barras absorvedoras, ao efeito da irradiação sobre a sua efetividade de absorção de nêutrons e propriedades mecânicas, levou às seguintes conclusões:

1. No final do ano 2000, as barras absorvedoras tinham acumulado uma exposição de 62.592 horas de irradiação a um fluxo integrado médio total de $1,174 \times 10^{22}$ n/cm² ($8,45 \times 10^{21}$ n/cm² para nêutrons rápidos e $3,29 \times 10^{21}$ n/cm² para nêutrons térmicos).
2. As barras absorvedoras apresentam atualmente a seguinte composição: 64,33%Ag - 4,83%In - 22,07%Cd - 8,77%Sn. Isto implica na existência de uma segunda fase na estrutura cristalina da liga (tipo hexagonal compacta), gerada pela transmutação do índio para estanho, a qual já teria alcançado a concentração 62,5%, bem superior ao limite de 20%, postulado como suficiente para torná-la metalurgicamente instável.
3. Para o nível de fluência nv atual, a perda da efetividade de absorção da liga é de ~18,95% do seu valor inicial.
4. Estima-se em ~39 anos de irradiação o tempo para que ocorra degradação severa das barras absorvedoras do reator IEA-R1 (considerando-se as condições atuais de operação do reator a 2 MW), o que implicará em colapso da resistência mecânica e da ductilidade da estrutura da liga.

REFERÊNCIAS

- [1] Murgatroyd RA, Kelly BT, **Technology and Assessment of Neutron Absorbing Materials**, TRG Report 2953(S) (1976), Atomic Energy Review 15: (1), pp. 3-74, 1977.
- [2] Rosa e Silva J.E., Terremoto L.A., Castanheira M., Zeituni C.A., **Inspeção Visual das Barras Absorvedoras de Nêutrons do Reator IEA-R1** (trabalho apresentado neste evento). XIII ENFIR, 2002.
- [3] Castanheira M., Zeituni C.A., Rosa e Silva J.E., Terremoto L.A., **Análise da Degradação de Barras Absorvedoras de Nêutrons de Ag-In-Cd. Parte 2: Comportamento Quanto à Corrosão e Contaminação da Água do Reator** (trabalho apresentado neste evento). XIII ENFIR, 2002.
- [4] Anderson WK (ed.), Theilaker JS (ed.), **Neutron Absorber Materials for Reactor Control**, chapter 5 by Cohen I. et al., USAEC, 1962.
- [5] Tipton Jr. C.R. (ed.), **Reactor Handbook** Volume I: Materials, chapter 40 by Fosco E.F., 2nd ed., USAEC, 1960.
- [6] Anderson WK (ed.), Theilaker JS (ed.), **Neutron Absorber Materials for Reactor Control**, chapter 2 by Dayton WS et al., USAEC, 1962.

[7] Cohen I., **Development and Properties of Alloys Base - Silver as Control Rods Materials for PWRs**, WAPD-214 Report, 1959.

[8] Tipton Jr. CR (ed.), **Reactor Handbook Volume I: Materials**, chapter 35 by Dayton R.W., 2nd ed. USAEC, 1960.

[9] International Atomic Energy Agency, **Control Assembly Materials for Water Reactors: Experience, Performance and Perspectives**, IAEA-TECDOC-1132, 2000.

[10] Smalley W.R., **Performance of Ag-In-Cd in Pressurized Water Reactors**, Nuclear Applications 4: (6), pp.432, 1968.

[11] Hume-Rothery W., Raynor G.V., **The Structure of Metals and Alloys**, 3rd ed., pp. 126-132, Institute of Metals, London, 1954.

[12] Guerin M. **Avancement de L'étude Barre Fourchette – Element de Controle**, INT/PI (NT) 737.53/65, CEA, 1965.

[13] Davis H.H. et al., **Irradiation Behavior of PWR Control Materials**, Transactions of the American Society, 39, pp. 396-397, 1981.

[14] Hott H.W. et al., **Development of Hafnium and Comparison with other PWR Control Rod Materials**, Transactions of the American Society, 39: (3), pp. 97-399, 1981.

[15] Strasser A.A., Sheppard KD, **Light Water Reactor Reactivity Control**, Nuclear Energy, 23: (3), pp. 169-178, 1984.

[16] Heins L., Roppelt A., Dewes P. (Siemens AG, Power Generation Group KWU), **Design of Control Rods for Pressurized Water Reactors with Special Consideration of Absorber Swelling and Cladding Creepdown**, in IAEA-TECDOC-813 - Advances in Control Assembly Materials for Water Reactors, 1995.

ABSTRACT

The original alloy of IEA-R1 reactor absorber bars (supposing similar to alloy 2533 with composition 81,5% Ag – 13,6% In – 4,9% Cd) was designed to work for a life time equivalent to a neutron exposition of $\sim 10^{21}$ n/cm² (thermal) so that the alloy can preserve the characteristic one phase. Analyzing the behavior of absorber bars Ag-In-Cd under irradiation, this work reports a semi quantitative assessment of the IEA-R1 absorber bars degradation current condition by viewpoint of alloy depletion, neutrons absorption effectiveness and mechanical properties, as a complement of visual inspections results carried out at 1998, 2000 and 2001 whose had pointed to visible degree of degradation accumulated along 29 years of operation in the reactor.