

CÁLCULO DA ATIVIDADE INDUZIDA NA ÁGUA EM REATORES TIPO PISCINA COM CIRCULAÇÃO ASCENDENTE NO NÚCLEO

Graciete S. de Andrade e Silva* e Sérgio de Q. Bogado Leite**

* Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN
Caixa Postal 68 550
21945-970, São Paulo, Brasil

** Comissão Nacional de Energia Nuclear, CNEN(Sede)
Caixa Postal 97 282
28630-050, Rio de Janeiro, Brasil

RESUMO

A atividade induzida em qualquer refrigerante está associada com a composição do próprio refrigerante. Para reatores refrigerados a água a atividade induzida no refrigerante deve-se, principalmente, às reações $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$ e $^{17}\text{O}(n,p)^{17}\text{N}$. Neste trabalho, apresenta-se um modelo matemático, com soluções analíticas, para se estimar a atividade específica induzida média na água do circuito primário e da piscina para um reator tipo piscina com circulação ascendente no núcleo.

I. INTRODUÇÃO

Para o cálculo da atividade específica da água do circuito primário de um reator deve-se levar em conta as seguintes contribuições: i) atividade induzida no refrigerante e nos gases nele dissolvidos, ii) produtos de corrosão e impurezas ativados, iii) produtos de fissão liberados para a água, oriundos da impregnação superficial do combustível ou que escapam em caso de falha de revestimento e iv) reações de recuo nos materiais expostos ao fluxo rápido.

Modelos matemáticos para calcular as atividades específicas dos produtos de fissão e dos produtos de corrosão liberados na água do circuito primário e no circuito da piscina de um reator tipo piscina com circulação ascendente no núcleo já foram elaborados e encontram-se nas referências [1] e [2], respectivamente.

Dando continuidade ao cálculo do termo fonte na água de reatores do tipo descrito acima, apresenta-se neste trabalho um modelo matemático para se obter a atividade específica induzida na água do circuito primário e da piscina. O reator em questão tem características semelhantes às do reator OSIRIS [3], cuja potência térmica é de 70 MW e o combustível tipo placa contém pastilhas de UO_2 compartimentadas e revestidas com Zircaloy (combustível caramelo), e seu modo de escoamento está representado, esquematicamente, na Fig. 1, onde:

q_{cp} = vazão do circuito primário (cm^3/s) e
 q_c = vazão do circuito de equilíbrio (cm^3/s).

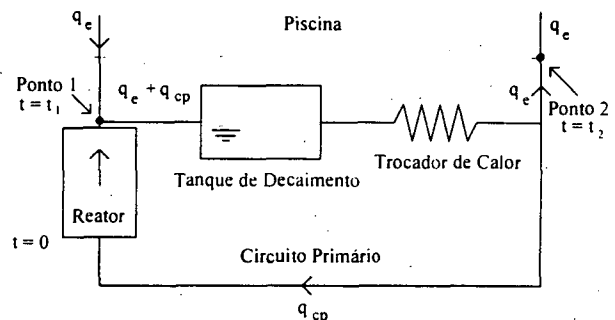


Figura 1. Modelo de Escoamento do Reator

O núcleo está localizado dentro de um tanque, aberto na parte superior para facilitar introdução de materiais a serem irradiados, e a refrigeração é feita por fluxo ascendente de água leve, proporcionando assim uma maior pressurização do núcleo.

O fluxo principal de água do primário, constituído pela vazão que passa através do núcleo (q_{cp}) e por uma vazão de circulação da água da piscina (q_c), é encaminhado da chaminé ao tanque de decaimento de ^{16}N . Do tanque de decaimento a água dirige-se ao compartimento das bombas e deste ao compartimento dos trocadores de calor. Após os trocadores de calor, a parte da vazão de água que entrou

pela chaminé é desviada para o sistema de purificação (filtragem e desionização) e para a piscina, enquanto o resto é encaminhado de volta ao tanque do núcleo, completando-se o ciclo.

A vazão de equilíbrio, que desce pela chaminé do reator e soma-se à vazão q_{cp} na tubulação de saída do núcleo, é estabelecida para evitar a ascensão de produtos ativados à superfície da piscina.

Para reatores moderados e refrigerados a água, as únicas contribuições importantes para a atividade induzida no refrigerante são as relativas às atividades γ do ^{16}N (meia-vida de 7,13s) e de nêutron do ^{17}N (meia-vida de 4,17s).

Como as meias-vidas são curtas em relação ao tempo de um ciclo (definido como o tempo T , necessário para a água percorrer o circuito primário), a atividade da água na piscina deve ser calculada levando-se em conta a posição, no circuito primário, onde a água deixa este e entra no circuito da piscina (ponto 2 na Fig. 1). Dependendo desta posição a diferença entre as atividades na saída do núcleo e na entrada da piscina pode ser muito grande.

II. FORMULAÇÃO DO PROBLEMA

Hipóteses. Para o cálculo da atividade específica induzida na água do circuito primário e da piscina assumiu-se que:

- 1) A atividade induzida é devida às reações $^{16}\text{O}(n,p)^{16}\text{N}$ e $^{17}\text{O}(n,p)^{17}\text{N}$ que ocorrem com os átomos de oxigênio das moléculas de água.
- 2) A água que retorna pela chaminé tem atividade induzida nula, uma vez que o tempo de residência médio da água na piscina (da ordem de 3 horas) é muito maior que as meias-vidas desses isótopos.
- 3) O sistema de purificação não tem ação sobre a atividade induzida [4].
- 4) O tempo é medido a partir do instante em que o elemento de volume em consideração "entra" no reator e que este recomeça de zero a cada ciclo.
- 5) A distribuição de isótopos radioativos na piscina é homogênea.

Modelo Matemático. Utilizando-se as hipóteses acima, as equações que governam as concentrações de ^{16}N e ^{17}N na água do primário e da piscina, provenientes da irradiação do ^{16}O e ^{17}O no núcleo em função do ciclo k , são dadas por:

$$\frac{dN_k^*}{dt} = (N - N_k^*)\sigma\phi - \lambda N_k^*, \quad 0 \leq t \leq t_1 \quad (1)$$

$$\frac{dP_k^*}{dt} = \frac{q_e}{V_p} N_k^*(t_2) - \lambda P_k^*, \quad t_2 \leq t \leq t_2 + T, \quad (2)$$

sujeitas às seguintes condições:

$$a) N_0^*(0) = 0 \text{ e } P_0^*(t_2) = 0,$$

$$b) N_1^*(0) = \frac{q_{cp}}{(q_{cp} + q_e)} N_0^*(t_1) e^{-\lambda(T-t_1)},$$

$$c) P_1^*(t_2) = \frac{q_e N_0^*(t_2)}{\lambda V_p} (1 - e^{-\lambda T}),$$

$$d) P_2^*(t_2) = \frac{q_e}{\lambda V_p} (1 - e^{-\lambda T}) [N_1^*(t_2) + N_0^*(t_2) e^{-\lambda T}]$$

e onde:

N_k^* = número de átomos radioativos por cm^3 no circuito primário, no ciclo k ;

N_0^* = número de átomos radioativos por cm^3 no circuito primário para a primeira irradiação no núcleo;

N = número de átomos alvo por cm^3 na água.

$$= \frac{\rho I A}{M}$$

onde: ρ = densidade da água $\cong 1.0 \text{ g/cm}^3$,

I = fração isotópica de átomos alvo por molécula.

A = número de Avogadro.

M = massa molar da água = $18,02 \text{ g/mol}$;

σ = seção de choque de ativação (cm^2);

ϕ = fluxo médio de nêutrons no reator com energia acima da energia limiar da reação (nêutrons/ cm^2s);

λ = constante de decaimento (s^{-1});

P_k^* = número de átomos radioativos por cm^3 no circuito da piscina, no ciclo k ;

P_0^* = número de átomos radioativos por cm^3 no circuito da piscina para a primeira irradiação no núcleo;

t = tempo medido a partir do momento em que o elemento de volume de refrigerante considerado "entra" no fluxo de nêutrons (s); t é reiniciado a cada novo ciclo percorrido pelo elemento de volume no circuito primário;

V_p = volume da piscina + circuito de equilíbrio - sistema de purificação \cong volume da piscina (cm^3).

III. SOLUÇÃO DAS EQUAÇÕES

As equações (1) e (2) são lineares de primeira ordem e podem ser solucionadas utilizando-se o método do fator integrante.

Para $k=0$ (primeira passagem da água no reator).

$$N_0^*(t) = \frac{N\sigma\phi}{(\sigma\phi + \lambda)} [1 - e^{-(\sigma\phi + \lambda)t}], \quad 0 \leq t \leq t_1, \quad (3)$$

$$= \frac{q_{cp}}{(q_{cp} + q_e)} N_0^*(t_1) e^{-\lambda(t-t_1)}, \quad t_1 < t \leq T, \quad (4)$$

$$P_0^*(t) = \frac{q_e N_0^*(t_2)}{\lambda V_p} \left[1 - e^{-\lambda(t-t_2)} \right], \quad t_2 \leq t \leq t_2 + T. \quad (5)$$

Para $k \geq 1$.

$$N_k^*(t) = \frac{N \sigma \phi}{(\sigma \phi + \lambda)} \left\{ 1 + [\Gamma - 1] e^{-(\sigma \phi + \lambda)t} \right\}, \quad 0 \leq t \leq t_1, \quad (6)$$

$$= \frac{q_{cp}}{(q_{cp} + q_e)} N_k^*(t_1) e^{-\lambda(t-t_1)}, \quad t_1 < t \leq T \quad (7)$$

$$\text{onde: } \Gamma = \frac{q_{cp}}{(q_{cp} + q_e)} \left(1 - e^{-(\sigma \phi + \lambda)t_1} \right) e^{-\lambda(T-t_1)} \sum_{n=0}^{k-1} \alpha^n, \quad (8)$$

$$\alpha = \frac{q_{cp}}{(q_{cp} + q_e)} e^{-(\sigma \phi + \lambda)T}, \quad (9)$$

$$P_k^*(t) = \frac{q_e}{\lambda V_p} N_k^*(t_2) \left\{ 1 + [\Psi - 1] e^{-\lambda(t-t_2)} \right\}, \quad t_2 \leq t \leq t_2 + T, \quad (10)$$

$$\text{onde: } \Psi = \frac{(1 - e^{-\lambda T})}{N_k^*(t_2)} \sum_{j=0}^{k-1} N_j^*(t_2) e^{-(k-j-1)\lambda T}$$

e $N_j^*(t_2)$ é dado pela equação (12).

No ponto t_1 ,

$$N_k^*(t_1) = \frac{N \sigma \phi}{(\sigma \phi + \lambda)} \left[1 - e^{-(\sigma \phi + \lambda)t_1} \right] \sum_{n=0}^k \alpha^n, \quad \forall k. \quad (11)$$

No ponto t_2 ,

$$N_k^*(t_2) = \frac{q_{cp}}{(q_{cp} + q_e)} N_k^*(t_1) e^{-\lambda(t_2-t_1)}, \quad \forall k. \quad (12)$$

No circuito primário, a concentração de átomos radioativos N_k^* depende da posição no circuito. Para se ter um valor médio da atividade específica no circuito primário ao final de cada ciclo (C_k^N), basta integrar N_k^* sobre o volume do primário (V_N), dividir por este mesmo volume e multiplicar pela constante de decaimento do isótopo em questão; ou seja:

$$C_k^N = \lambda \overline{N_k^*} = \frac{\lambda \int N_k^*(t) dV}{V_N} = \frac{\lambda \int N_k^*(t) q dt}{V_N} \\ = \frac{\lambda}{V_N} \left[\int_0^{t_1} q_{cp} N_k^*(t) dt + \int_{t_1}^{t_2} (q_{cp} + q_e) N_k^*(t) dt \right. \\ \left. + \int_{t_2}^T q_{cp} N_k^*(t) dt \right]. \quad (13)$$

Para $k=0$ tem-se:

$$C_0^N = \frac{q_{cp}}{V_N} \left\{ \frac{\lambda N \sigma \phi}{(\sigma \phi + \lambda)} \left[t_1 - \frac{(1 - e^{-(\sigma \phi + \lambda)t_1})}{(\sigma \phi + \lambda)} \right] \right. \\ \left. + N_0^*(t_1) \left[\left(1 - e^{-\lambda(t_2-t_1)} \right) + \frac{q_{cp}}{(q_{cp} + q_e)} \left(e^{-\lambda(t_2-t_1)} - e^{-\lambda(T-t_1)} \right) \right] \right\}. \quad (14)$$

Para $k \geq 1$:

$$C_k^N = \frac{q_{cp}}{V_N} \left\{ \frac{\lambda N \sigma \phi}{(\sigma \phi + \lambda)} \left[t_1 + \frac{q_{cp}}{(q_{cp} + q_e)} \left(1 - e^{-(\sigma \phi + \lambda)t_1} \right) \right. \right. \\ \left. \left. e^{-\lambda(T-t_1)} \sum_{n=0}^{k-1} \alpha^n - 1 \right] \frac{(1 - e^{-(\sigma \phi + \lambda)t_1})}{(\sigma \phi + \lambda)} \right\} + N_k^*(t_1) \\ \left\{ \left[\left(1 - e^{-\lambda(t_2-t_1)} \right) + \frac{q_{cp}}{(q_{cp} + q_e)} \left(e^{-\lambda(t_2-t_1)} - e^{-\lambda(T-t_1)} \right) \right] \right\} \quad (15)$$

No caso do circuito da piscina, a atividade específica média no final de cada ciclo (C_k^P) é simplesmente:

$$C_k^P = \lambda \overline{P_k^*} = \lambda P_k^*(T). \quad (16)$$

Nas equações (14) e (15), a probabilidade de ativação média sobre o espectro acima do limiar da reação ($\overline{\sigma \phi}$) é dado por [4]:

$$\overline{\sigma \phi} \cong \overline{\sigma \phi}(E > 10 \text{ MeV}) \frac{A_{ef}}{A_{ef(>10)}}, \quad \text{reação } {}^{16}\text{O}(n,p){}^{16}\text{N} \quad (17)$$

$$\cong \overline{\sigma \phi}(E > 8,5 \text{ MeV}) \frac{A_{ef}}{A_{ef(>8,5)}}, \quad \text{reação } {}^{17}\text{O}(n,p){}^{17}\text{N} \quad (18)$$

com,

$\overline{\sigma}$ = seção de choque média sobre o espectro de fissão da reação,

A_{ef} = área do espectro de fissão, = 1 nêutron/nêutron de fissão [4];

$A_{ef(>10)}$ = área do espectro de fissão acima de 10 MeV, = $1,22 \times 10^{-3}$;

$A_{ef(>8,5)}$ = área do espectro de fissão acima de 8,5 MeV, = $3,93 \times 10^{-3}$.

O fluxo total efetivo de nêutrons acima do limiar da reação (nêutrons de fissão/cm³.s), no centro de reator, pode ser escrito da seguinte forma [4]:

$$\phi(E > 10\text{MeV}) = n_f \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2}{\pi e}} \int_{10}^{\infty} \frac{\exp(\sqrt{2E - E})}{\sum_T(E)} dE \quad (19)$$

$$\phi(E > 8.5\text{MeV}) = n_f \frac{1}{2} \sqrt{\frac{2}{\pi e}} \int_{8.5}^{\infty} \frac{\exp(\sqrt{2E - E})}{\sum_T(E)} dE \quad (20)$$

onde:

n_f = densidade de nêutrons de fissão e depende da potência do reator;

$\sum_T(E)$ = seção de choque macroscópica total (cm^{-1}).

IV. CASO EXEMPLO

Os valores das constantes que definem o modo de escoamento do reator (vide Fig. 1) foram mantidos idênticos aos utilizados em [1] e [2], os quais baseiam-se no reator OSIRIS [3], a saber; $q_{cp} = 1,53 \times 10^9 \text{ cm}^3/\text{s}$, $q_p = 5,57 \times 10^4 \text{ cm}^3/\text{s}$, $V_N \cong 1,718 \times 10^8 \text{ cm}^3$ e $V_p \cong 5,363 \times 10^8 \text{ cm}^3$.

As constantes de decaimento para o ^{16}N e ^{17}N são $9,722 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ e $1,662 \times 10^{-1} \text{ s}^{-1}$, respectivamente.

Para a potência de 70 MW, o valor da densidade de nêutrons de fissão é da ordem de $1,07813 \times 10^{13}$ nêutrons/ $\text{cm}^3 \cdot \text{s}$.

Os tempos gastos para a água percorrer o circuito primário (T) e o reator (t_r) são da ordem de 108,13 s e $7,02 \times 10^{-2} \text{ s}$, respectivamente [2].

As demais constantes nucleares para o cálculo das atividades específicas nos circuitos primário e da piscina estão na Tabela 1.

TABELA 1. Constantes Nucleares

Constantes Nucleares	Nuclídeo Alvo	
	^{16}O	^{17}O
I	0,9976	$3,7 \times 10^{-4}$
$\bar{\sigma}$ (mbarns) [4]	0,020	0,0070

Os valores do fluxo total efetivo de nêutrons no centro do reator foram obtidos numericamente utilizando-se quadraturas gaussianas para resolver as integrais das equações (19) e (20), onde assumiu-se para $\sum_T(E)$ um valor constante igual a $0,107 \text{ cm}^{-1}$, como em [4].

V. RESULTADOS E CONCLUSÕES

Com a solução analítica das equações diferenciais que descrevem o comportamento do ^{16}N e ^{17}N na água do circuito primário e da piscina para reatores com circulação ascendente no núcleo, gerou-se um programa computacional no PC PENTIUM 100, em linguagem

FORTRAN considerando-se dupla precisão. O programa fornece a atividade específica em Bq/cm^3 .

Nas Tabelas 2 a 4 tem-se uma estimativa das atividades específicas médias do ^{16}N e ^{17}N na água do circuito primário e da piscina para valores de t_2 iguais a 50, 75 e 100s, respectivamente.

Pode-se notar das Tabelas abaixo, que a atividade específica atinge o equilíbrio a partir da segunda passagem da água no reator. Isto deve-se ao fato das meias-vidas do ^{16}N e ^{17}N serem muito curtas com relação ao tempo que o refrigerante gasta para completar um ciclo (108,13 s).

TABELA 2. Atividade Específica para $t_2 = 50\text{s}$

Ciclo (k)	Isótopo	Atividade Específica (Bq/cm^3)	
		Circuito Primário	Circuito Piscina
0	^{16}N	$4,18385 \times 10^4$	3,65293
0	^{17}N	5,44845	$1,52014 \times 10^{-5}$
1	^{16}N	$4,18396 \times 10^4$	3,66590
1	^{17}N	5,44845	$1,52024 \times 10^{-5}$
2	^{16}N	$4,18396 \times 10^4$	3,66590
2	^{17}N	5,44845	$1,52024 \times 10^{-5}$

TABELA 3. Atividade Específica para $t_2 = 75\text{s}$

Ciclo (k)	Isótopo	Atividade Específica (Bq/cm^3)	
		Circuito Primário	Circuito Piscina
0	^{16}N	$4,18489 \times 10^4$	$3,09688 \times 10^{-1}$
0	^{17}N	5,44849	$2,37492 \times 10^{-7}$
1	^{16}N	$4,18500 \times 10^4$	$3,22572 \times 10^{-1}$
1	^{17}N	5,44849	$2,38461 \times 10^{-7}$
2	^{16}N	$4,18500 \times 10^4$	$3,22573 \times 10^{-1}$
2	^{17}N	5,44849	$2,38461 \times 10^{-7}$
3	^{16}N	$4,18500 \times 10^4$	$3,22573 \times 10^{-1}$
3	^{17}N	5,44849	$2,38461 \times 10^{-7}$

TABELA 4. Atividade Específica para $t_2 = 100s$

Ciclo (k)	Isótopo	Atividade Específica (Bq/cm ³)	
		Circuito Primário	Circuito Piscina
0	¹⁶ N	4,18499x10 ⁴	1.55069x10 ⁻²
0	¹⁷ N	5,44849	2.77194x10 ⁻⁹
1	¹⁶ N	4,18510x10 ⁴	2.83834x10 ⁻²
1	¹⁷ N	5,44849	3,74045x10 ⁻⁹
2	¹⁶ N	4,18510x10 ⁴	2,83841x10 ⁻²
2	¹⁷ N	5,44849	3,74045x10 ⁻⁹
3	¹⁶ N	4,18510x10 ⁴	2,83841x10 ⁻²
3	¹⁷ N	5,44849	3,74045x10 ⁻⁹

Numa fase posterior, pretende-se estimar a seção de choque macroscópica total ($\Sigma_T(E)$), para energias acima de 8.5 MeV, considerando-se as frações volumétricas do combustível, da água e dos materiais estruturais correspondentes ao reator OSIRIS, no qual se baseiam os dados utilizados neste trabalho. Sendo assim, será possível adicionar às atividades dos produtos de fissão e de corrosão, calculados em [1] e [2], respectivamente, a contribuição da atividade induzida na água.

Pretende-se ainda acrescentar as contribuições devido: i) à ativação de gases dissolvidos na água, como o ⁴¹Ar, ii) às reações nucleares de recuo que ocorrem no alumínio, como ²⁷Al(n,p)²⁷Mg e iii) às impurezas do refrigerante, como o Na.

REFERÊNCIAS

- [1] Silva, G.S.A., Leite, S. Q. B., **Modelo para Determinação da Atividade da Água em Reatores de Piscina com Circulação Ascendente no Núcleo**, IX ENFIR, Caxambu, MG, Brasil, Outubro de 1993.
- [2] Silva, G.S.A., Leite, S. Q. B., **Atividade de Produtos de Corrosão em Reatores Tipo Piscina, com Circulação Ascendente no Núcleo**, X ENFIR, Águas de Lindóia, SP, Brasil, Agosto de 1995.
- [3] **Reacteur OSIRIS Rapport Descriptif**, CEA-R-3984, Abril 1970.
- [4] Rockwell, T. L., **Reactor Shielding Design Manual**, TID-7004, Março 1956.

ABSTRACT

Reactor coolant induced activity is strongly dependent on the coolant material composition. In water cooled reactors, such activity is due, mainly, to the ¹⁶O(n,p)¹⁶N e ¹⁷O(n,p)¹⁷N reactions. In this work, a model is presented for estimating the water average specific induced activities in the primary and pool circuits of a pool reactor with ascending flow across the core.