

ATIVIDADE DE PRODUTOS DE CORROSÃO 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, CNEN
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
05422-970, São Paulo, Brasil

**Coordenadoria Para Projetos Especiais, COPESP
Caixa Postal 11253 (Pinheiros)
05508-900, São Paulo, Brasil

RESUMO

Um modelo matemático para se estimar a atividade dos produtos de corrosão liberados na água de um reator tipo piscina, com circulação ascendente no núcleo, é apresentado. O problema é descrito por um conjunto de equações diferenciais acopladas relacionando os radionuclídeos nos circuitos do núcleo e da piscina e leva em consideração dois tipos de fonte: i) isótopos radioativos formados no revestimento dos elementos combustíveis, elementos de controle, refletor, etc., e que se desprenderam para o refrigerante do circuito primário (denominados fontes do reator), e ii) isótopos radioativos formados de isótopos não radioativos que, após se desprenderem para o refrigerante, são ativados ao passarem pelo núcleo (denominados fontes do circuito).

INTRODUÇÃO

A atividade específica da água do circuito primário de um reator em qualquer instante provém, basicamente: i) da atividade induzida no refrigerante e nos gases nele dissolvidos, ii) de produtos de corrosão e impurezas ativadas, iii) dos produtos de fissão liberados para a água, oriundos da impregnação superficial do combustível ou que escapam em caso de falhas do revestimento e iv) de reações nucleares de recuo nos materiais expostos ao fluxo rápido.

O modelo matemático para calcular a atividade dos produtos de fissão liberados na água de um reator tipo piscina com circulação ascendente no núcleo já foi elaborado e encontra-se na referência [1].

No presente trabalho, apresenta-se um modelo matemático para o cálculo da atividade específica dos produtos de corrosão na água do circuito primário e na da piscina de um reator com circulação ascendente no núcleo.

Esta circulação está esquematicamente representada na Figura 1, onde:

q_{cp} = vazão do circuito primário (cm^3/s),

q_p = vazão do circuito da piscina (cm^3/s),

q_{sp} = vazão do sistema de purificação (cm^3/s),
 $q_e = q_p + q_{sp}$ = vazão do circuito de equilíbrio (cm^3/s).

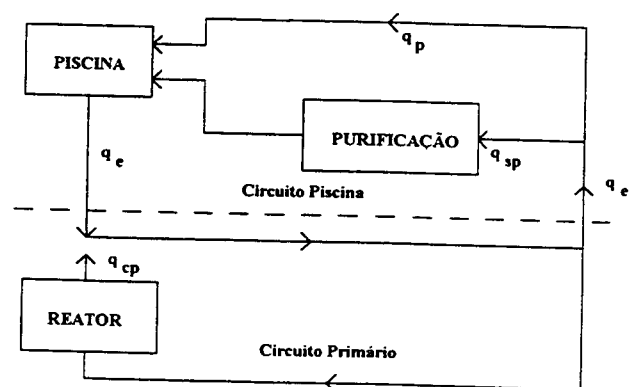


Fig. 1. Modelo de Escoamento do Reator.

FORMULAÇÃO DO PROBLEMA

Hipóteses. Para o estudo das concentrações dos produtos de corrosão na água do circuito primário e na da piscina de um reator com circulação ascendente, as seguintes hipóteses foram admitidas:

- 1) A liberação de produtos de corrosão dá-se de duas formas [2]:
 - i) isótopos radioativos formados no revestimento do elementos combustíveis, elementos de controle, refletor, etc., e que se desprenderam para o refrigerante do circuito primário (denominados fontes do reator);
 - ii) isótopos radioativos formados a partir de isótopos não radioativos que, após se desprenderem para o refrigerante, são ativados ao passarem pelo núcleo (denominados fontes do circuito).
- 2) Consideram-se apenas corrosão e desprendimento de material ocorridos no circuito primário. A corrosão nas superfícies da piscina é desprezada.
- 3) Taxas de corrosão são admitidas constantes e iguais para fontes do reator e do circuito.

Modelo Matemático. Com as hipóteses acima, as equações que governam o comportamento dos produtos de corrosão na água do primário e da piscina são dadas por [2]:

A) Fontes do reator:

$$\frac{dN_B^*}{dt} = N_B f_r + P_B^* \frac{q_c}{V_p} - \left(\lambda + \frac{q_c}{V_N} \right) N_B^* \quad (1)$$

$$\frac{dP_B^*}{dt} = N_B^* \frac{q_p}{V_N} + N_B^* (1-\beta) \frac{q_{sp}}{V_N} - \left(\lambda + \frac{q_c}{V_p} \right) P_B^* \quad (2)$$

B) Fontes do circuito:

$$\frac{dN_A}{dt} = \frac{CS_c f_i f_n N_o}{A} + P_A \frac{q_c}{V_p} - \frac{q_c}{V_N} N_A - N_A \sigma \bar{\phi} \quad (3)$$

$$\frac{dP_A}{dt} = N_A \frac{q_p}{V_N} + N_A (1-\beta) \frac{q_{sp}}{V_N} - \frac{q_c}{V_p} P_A \quad (4)$$

$$\frac{dN_A^*}{dt} = \sigma \bar{\phi} N_A + P_A^* \frac{q_c}{V_p} - \left(\lambda + \frac{q_c}{V_N} \right) N_A^* \quad (5)$$

$$\frac{dP_A^*}{dt} = N_A^* \frac{q_p}{V_N} + N_A^* (1-\beta) \frac{q_{sp}}{V_N} - \left(\lambda + \frac{q_c}{V_p} \right) P_A^* \quad (6)$$

sujeitas às seguintes condições iniciais:

$$a) N_B^*(0) = P_B^*(0) = 0,$$

$$b) N_A(0) = P_A(0) = 0,$$

$$c) N_A^*(0) = P_A^*(0) = 0;$$

onde:

N_B^* = número de átomos radioativos na água do circuito primário provenientes das fontes do reator,

P_B^* = número de átomos radioativos na água da piscina provenientes das fontes do reator,

N_B = número de átomos que se desprendem das superfícies do reator e fluem para o circuito primário, por segundo,

$$= \frac{CS f_n f_i N_o}{A} \quad (7)$$

onde: C = taxa de corrosão (g/cm²-s),

S = área das superfícies do reator (cm²),

f_n = fração química do elemento,

f_i = abundância isotópica do nuclídeo,

N_o = número de Avogadro = 6,022x10²³ átomos/mol,

A = peso atômico do nuclídeo (g);

$$f_r = \text{fração de átomos ativados} = \frac{\sigma \phi}{\lambda} (1 - e^{-\lambda}) \quad (8)$$

onde: σ = seção de choque de absorção (cm²),

ϕ = fluxo médio de nêutrons nas superfícies do reator (nêutrons/cm²-s).

N_A = número de átomos alvo no circuito primário,

P_A = número de átomos alvo no circuito da piscina,

N_A^* = número de átomos radioativos na água do circuito primário provenientes das fontes do circuito,

P_A^* = número de átomos radioativos na água do circuito da piscina provenientes das fontes do circuito,

λ = constante de decaimento radioativo (s⁻¹),

β = percentual de purificação do isótopo durante a operação,

V_N = volume do circuito primário (cm³),

V_p = volume da piscina + circuito de equilíbrio + sistema de purificação \approx volume da piscina (cm³),

S_c = área das superfícies do circuito (cm²),

$$\bar{\phi} = \sum_{i=1}^n \frac{\phi_i t_i}{t_T} \quad (9)$$

onde: ϕ_i = fluxo médio de nêutrons na i-ésima região paralela (nêutrons/cm²-s),

- t_i = tempo médio de permanência do refrigerante na i -ésima região paralela (s),
 t_T = tempo total de permanência do refrigerante no circuito primário (s).
 n = número de regiões paralelas,

Por simplicidade neste modelo, desprezamos a contribuição $N_B(1-f_r)$ na equação (3) das fontes do circuito, mas esta pode ser incluída, sem dificuldades, em estudo posterior.

Equações (3) a (6), com pequenas alterações, podem ser também usadas para descrever a atividade de impurezas como o sódio no refrigerante. Para isso bastaria reescrever a equação (3) sem o primeiro termo do lado direito da igualdade e com condições iniciais para N_A e P_A fornecidas por análise química da água em $t=0$.

SOLUÇÃO DAS EQUAÇÕES

A solução das equações descritas anteriormente pode ser encontrada isolando-se e derivando-se $N(t)$ das expressões (2), (4) e (6), e substituindo-se nas equações (1), (3) e (5), respectivamente. Sendo assim, chega-se a um conjunto de equações diferenciais lineares não homogêneas de segunda ordem com coeficientes constantes, para os produtos de corrosão na água da piscina do tipo:

$$\frac{d^2P}{dt^2} + r \frac{dP}{dt} + sP = R(t) \quad (10)$$

Após a obtenção do valor de $P(t)$ o mesmo deve ser substituído nas equações (2), (4) e (6) correspondentes, com as condições iniciais adequadas, para a obtenção dos $N(t)$. As soluções finais podem ser escritas na seguinte forma:

$$P_B^*(t) = \sigma \phi \gamma N_B \left\{ \frac{1}{m_1 - m_2} \left[\frac{e^{m_1 t}}{m_1(\lambda + m_1)} - \frac{e^{m_2 t}}{m_2(\lambda + m_2)} \right] - \frac{e^{-\lambda t}}{\lambda(\lambda + m_1)(\lambda + m_2)} + \frac{1}{\lambda s} \right\} \quad (11)$$

$$N_B^*(t) = \sigma \phi N_B \left\{ \frac{1}{m_1 - m_2} \left[\frac{(m_1 + h_p)e^{m_1 t}}{m_1(\lambda + m_1)} - \frac{(m_2 + h_p)e^{m_2 t}}{m_2(\lambda + m_2)} \right] + \frac{(\lambda - h_p)e^{-\lambda t}}{\lambda(\lambda + m_1)(\lambda + m_2)} + \frac{h_p}{\lambda s} \right\} \quad (12)$$

$$P_A(t) = \gamma \frac{CS_c f_i f_n N_o}{As_A} \left\{ \frac{1}{m_{1A} - m_{2A}} [m_{2A} e^{m_{1A} t} - m_{1A} e^{m_{2A} t}] + 1 \right\} \quad (13)$$

$$N_A(t) = \frac{CS_c f_i f_n N_o}{As_A} \left\{ \frac{1}{m_{1A} - m_{2A}} \left[m_{2A} \left(m_{1A} + \frac{q_c}{V_p} \right) e^{m_{1A} t} - m_{1A} \left(m_{2A} + \frac{q_c}{V_p} \right) e^{m_{2A} t} \right] + \frac{q_c}{V_p} \right\} \quad (14)$$

$$P_A^*(t) = \sigma \phi \gamma \frac{CS_c f_i f_n N_o}{A} \left\{ \frac{1}{(m_1 - m_2)(m_{1A} - m_{2A})} \right.$$

$$\left[\left(\frac{m_{1A} - m_{2A}}{m_1 m_{1A} m_{2A}} \frac{q_c}{V_p} - \frac{1}{m_{1A}(m_{1A} - m_1)} \left(m_{1A} + \frac{q_c}{V_p} \right) \right) \right.$$

$$\left. + \frac{1}{m_{2A}(m_{2A} - m_1)} \left(m_{2A} + \frac{q_c}{V_p} \right) \right] e^{m_1 t}$$

$$+ \left(- \frac{(m_{1A} - m_{2A}) q_c}{m_2 m_{1A} m_{2A} V_p} + \frac{1}{m_{1A}(m_{1A} - m_2)} \left(m_{1A} + \frac{q_c}{V_p} \right) \right.$$

$$\left. - \frac{1}{m_{2A}(m_{2A} - m_2)} \left(m_{2A} + \frac{q_c}{V_p} \right) \right] e^{m_2 t}$$

$$+ \frac{(m_1 - m_2)}{m_{1A}(m_{1A} - m_1)(m_{1A} - m_2)} \left(m_{1A} + \frac{q_c}{V_p} \right) e^{m_{1A} t}$$

$$- \frac{(m_1 - m_2)}{m_{2A}(m_{2A} - m_1)(m_{2A} - m_2)} \left(m_{2A} + \frac{q_c}{V_p} \right) e^{m_{2A} t} \left. \right\}$$

$$+ \frac{1}{s_A s} \frac{q_c}{V_p} \left. \right\} \quad (15)$$

$$N_A^*(t) = \sigma \phi \frac{CS_c f_i f_n N_o}{A} \left\{ \frac{1}{(m_1 - m_2)(m_{1A} - m_{2A})} \right.$$

$$\begin{aligned}
& \left[(m_1 + h_p) \left(\frac{(m_{1A} - m_{2A}) q_c}{m_1 m_{1A} m_{2A} V_p} \right) \right. \\
& - \frac{1}{m_{1A} (m_{1A} - m_1)} \left(m_{1A} + \frac{q_c}{V_p} \right) \\
& + \frac{1}{m_{2A} (m_{2A} - m_1)} \left(m_{2A} + \frac{q_c}{V_p} \right) \left. \right] e^{m_1 t} \\
& + (m_2 + h_p) \left(- \frac{(m_{1A} - m_{2A}) q_c}{m_2 m_{1A} m_{2A} V_p} \right) \\
& + \frac{1}{m_{1A} (m_{1A} - m_2)} \left(m_{1A} + \frac{q_c}{V_p} \right) \\
& - \frac{1}{m_{2A} (m_{2A} - m_2)} \left(m_{2A} + \frac{q_c}{V_p} \right) \left. \right] e^{m_2 t} \\
& + \frac{(m_{1A} + h_p)(m_1 - m_2)}{m_{1A} (m_{1A} - m_1)(m_{1A} - m_2)} \left(m_{1A} + \frac{q_c}{V_p} \right) e^{m_{1A} t} \\
& - \frac{(m_{2A} + h_p)(m_1 - m_2)}{m_{2A} (m_{2A} - m_1)(m_{2A} - m_2)} \left(m_{2A} + \frac{q_c}{V_p} \right) e^{m_{2A} t} \\
& + \left. \frac{h_p q_c}{s_A s V_p} \right\} \quad (16)
\end{aligned}$$

onde:

$$h_N = \lambda + \frac{q_c}{V_N} \quad (17)$$

$$h_p = \lambda + \frac{q_c}{V_p} \quad (18)$$

$$\gamma = \frac{(q_c - \beta q_{sp})}{V_N} \quad (19)$$

$$r = h_p + h_N \quad (20)$$

$$r_A = \sigma \bar{\phi} + \frac{q_c}{V_p} + \frac{q_c}{V_N} \quad (21)$$

$$s = h_p h_N - \gamma \frac{q_c}{V_p} = m_1 m_2 \quad (22)$$

$$s_A = \sigma \bar{\phi} - \gamma + \frac{q_c}{V_N} = m_{1A} m_{2A} \quad (23)$$

$$m = \frac{-r \pm \sqrt{r^2 - 4s}}{2} \quad (24)$$

$$m_A = \frac{-r_A \pm \sqrt{r_A^2 - 4s_A}}{2} \quad (25)$$

CASO EXEMPLO

Os valores das constantes que definem o modo de escoamento do reator (vide Fig. 1) foram mantidos idênticos aos utilizados em [1], a saber: $q_p = 44,65$ kg/s, $q_{sp} = 10,65$ kg/s, $q_c = 55,30$ kg/s, $V_N \approx 1,718 \times 10^8$ cm³ e $V_p \approx 5,363 \times 10^8$ cm³.

As taxas de corrosão, admitidas neste caso exemplo, são: Alumínio (6061) = $3,47 \times 10^{-11}$ g/cm²-s [3], Aço Inox (304) = $1,38 \times 10^{-11}$ g/cm²-s [3], e no caso do Zircaloy é desprezível [4].

O percentual de purificação, considerando-se um sistema típico de resinas catiônicas e de leito misto [5], bem como a fração química para cada produto de corrosão, estão na Tabela 1.

Os dados nucleares para o cálculo da atividade do refrigerante proveniente dos produtos de corrosão estão na Tabela 2. Na Tabela 3 tem-se os vários materiais estruturais de um reator típico, bem como as correspondentes áreas expostas ao refrigerante.

No caso das fontes do reator, adotou-se um escoamento tipo paralelo com cinco regiões a saber: elementos combustíveis, de controle, de irradiação, elementos refletores e engradado alveolado. Tempos típicos em cada região paralela e fluxos térmicos adotados, estão na Tabela 4.

TABELA 1. Fração Química e Percentual de Purificação

Elemento	Fração Química (%)		Purificação (β) (%)
	Alumínio	Aço Inox	
Mn	0,15	2,00	98,0
Cr	0,35	20,00	98,0
Fe	0,70	68,80	98,0
Co	-	0,05	98,0

TABELA 2. Dados Nucleares

Isótopo Alvo	f_i (%)	σ a 50°C (barns)	λ^* (s ⁻¹)
Mn-55	100,0	7,596	$7,457 \times 10^{-5}$
Cr-50	4,35	7,653	$2,895 \times 10^{-7}$
Fe-58	0,31	0,5102	$1,799 \times 10^{-7}$
Co-59	100,0	11,34	$4,169 \times 10^{-9}$

(*) Constante de decaimento dos isótopos ativados.

TABELA 3. Áreas dos Materiais Estruturais Expostas ao Refrigerante

Regiões do Reator	Áreas Expostas ao Refrigerante (cm ²)		
	Alumínio	Aço Inox	Zircaloy-4
Elementos Combustíveis	$3,23 \times 10^4$	-	$7,87 \times 10^5$
Elementos de Controle	$5,10 \times 10^3$	$1,53 \times 10^4$	$1,14 \times 10^5$
Elementos de Irradiação	-	-	$3,17 \times 10^4$
Elementos Refletores	-	$3,64 \times 10^4$	-
Engradado Alveolado	$2,58 \times 10^5$	-	-
Circuito Externo	-	$1,0 \times 10^7$	-

TABELA 4. Tempo Gasto em cada Região do Reator com Respeito Fluxo Térmico

Regiões do Reator	Tempo Gasto na Região (s)	Fluxo Térmico (n/cm ² -s)
Elementos Combustíveis	$7,45 \times 10^{-2}$	$7,365 \times 10^{13}$
Elementos de Controle	$6,99 \times 10^{-2}$	$1,282 \times 10^{14}$
Elementos de Irradiação	$6,60 \times 10^{-2}$	$9,600 \times 10^{13}$
Elementos Refletores	$7,52 \times 10^{-2}$	$9,919 \times 10^{13}$
Engradado Alveolado	$7,45 \times 10^{-2}$	$8,596 \times 10^{13}$
Circuito Externo	108,06	-
Circuito Primário	108,13	-

RESULTADOS E CONCLUSÕES

Com a solução analítica das equações diferenciais que regem o comportamento dos produtos de corrosão na água do circuito primário e da piscina para reatores com circulação ascendente no núcleo, foi gerado um programa computacional no RISC SUN SPARCstation 10, em linguagem FORTRAN e compilado com opção para dupla precisão. O programa fornece a atividade específica (Bq/cm³) para cada isótopo considerado e leva em conta todas as áreas expostas ao refrigerante (reator e circuito).

Os valores das atividades específicas apresentados nas figuras abaixo, foram obtidos multiplicando-se o número de átomos de cada isótopo pela respectiva constante de decaimento e depois dividindo-se pelos volumes correspondentes (água do primário ou da piscina).

Nas Figuras 2a e 2b tem-se uma comparação das contribuições das duas fontes de liberação de produtos de corrosão (reator e circuito) na água do circuito primário e da piscina, respectivamente, considerando-se um ciclo de operação de 28 dias. Sendo assim, pode-se observar que as concentrações dos produtos de corrosão provenientes das fontes do reator são maiores que as das fontes do circuito, tanto na água do primário como na da piscina.

Na Figura 3 observa-se que a contribuição dos produtos de fissão oriundos somente da impregnação superficial do combustível [1], ou seja, sem considerar o escape de produtos de fissão devido uma falha no revestimento, é predominante quando comparada com a contribuição dos produtos de corrosão.

Numa fase posterior, pretende-se acrescentar ao cálculo da atividade específica da água do primário e da piscina, a contribuição devido à ativação da própria água e dos gases nela dissolvidos, como o Ar-41, ativados por nêutrons térmicos. Serão também consideradas a contribuição das reações nucleares de recuo que ocorrem no alumínio, como Al-27 (n,p) Mg-27, e impurezas do refrigerante (como o sódio), mencionadas anteriormente.

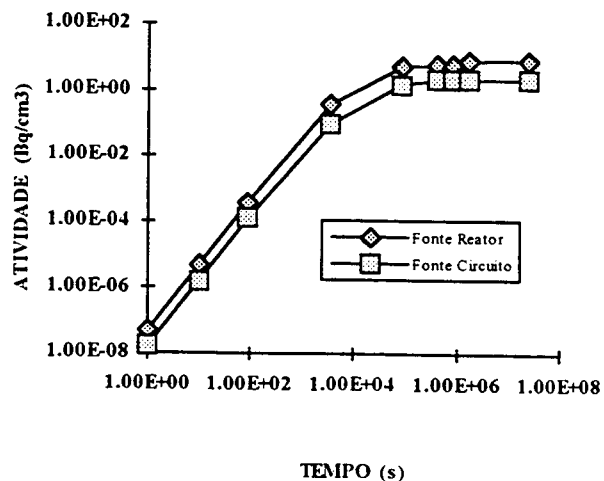


Figura 2a. Atividade Específica da Água do Primário Devido Produtos de Corrosão.

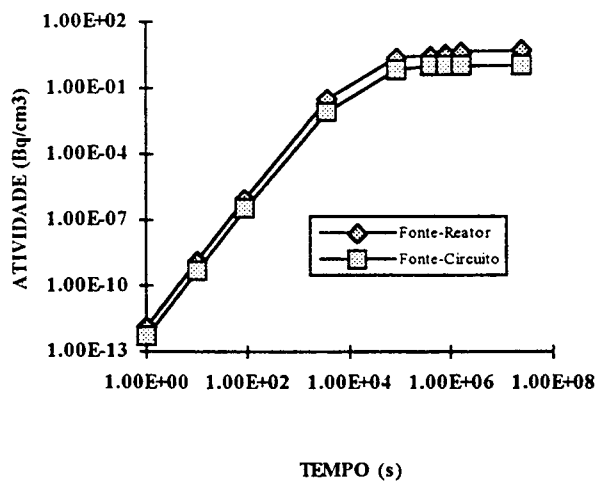


Figura 2b. Atividade Específica da Água da Piscina Devido Produtos de Corrosão.

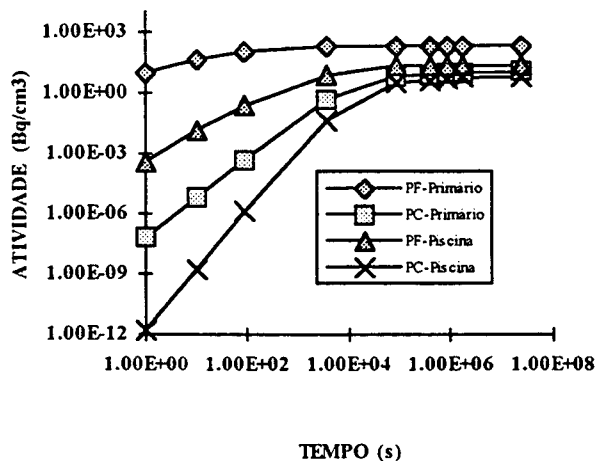


Figura 3. Comparação das Atividades Específicas Devido Produtos de Corrosão e Produtos de Fissão (sem Considerar Falhas no Combustível)

REFERÊNCIAS

- [1] Andrade e Silva, G. S. e Leite, S. Q. B., **Modelo para Determinação da Atividade da Água em Reatores de Piscina com Circulação Ascendente no Núcleo**, IX Encontro Nacional de Física de Reatores e Termo-Hidráulica, Caxambu, MG, 1993.
- [2] N M S R Project **Determination of the Purification for Normal Operation**, Babcock and Wilcox Co, BAW-1015 (Rev.), 1958.
- [3] Yoshimoto, A., **Comunicação Pessoal**.
- [4] Roesmer, J. e Roothan, M. W., **Estimation of Activity Inventories in Primary Circuits of Pressurized Water Reactors**, Water Chemistry of Nuclear Reactor Systems, BNES, London, 1978.
- [5] American Nacional Standard, **Radioactive Source Term for Normal Operation of Light Water Reactors**, ANSI/ANS - 18.1, 1984
- [6] Pasqualetto, H., **Níveis de Radiação na Superfície Livre da Piscina do Reator IEA-R1**, Dissertação de Tese IEA-064, 1978.

ABSTRACT

A model for the activity of corrosion products in the water of a pool type reactor with ascending flow is presented. The problem is described by a set of coupled differential equations relating the radioisotope concentrations in the core and pool circuits and taking into account two types of radioactive sources: i) those from radioactive species formed in the fuel cladding, control elements, reflector, etc. and afterwards released to the primary stream by corrosion (named reactor sources) and ii) those formed from non radioactive isotopes entering the primary stream by corrosion of the circuit components and being activated when passing through the core (named circuit sources).