

ANÁLISE DA DEGRADAÇÃO DE BARRAS ABSORVEDORAS DE NÊUTRONS DE Ag-In-Cd. PARTE 2: COMPORTAMENTO QUANTO À CORROSÃO E CONTAMINAÇÃO DA ÁGUA DO REATOR

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

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

Através da análise do comportamento sob irradiação de barras absorvedoras de Ag-In-Cd revestidas com Ni, este trabalho apresenta uma avaliação semiquantitativa da condição atual de degradação das barras absorvedoras do reator IEA-R1 do ponto de vista dos aspectos relacionados ao comportamento quanto à corrosão da liga e do seu revestimento em níquel e sobre a contaminação da água do reator, 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: neutrons absorber bar, Ag-In-Cd, nickel-plating, corrosion, contamination.

I. INTRODUÇÃO

As barras absorvedoras de nêutrons (BAs) foram adquiridas da empresa francesa CERCA e montadas no reator IEA-R1 no ano de 1972. Desde essa data estão sendo utilizadas para controle da reatividade e desligamento rápido do reator. A liga original das BAs, 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. As lâminas são niqueladas, de modo a fornecer proteção contra ataque químico do refrigerante e prevenir o escape de íons de Ag quimicamente ativos para a água do reator.

O objetivo deste trabalho é apresentar uma análise qualitativa sobre aspectos relacionados a atual condição de degradação das BAs do reator IEA-R1 do ponto de vista de oxidação e corrosão da liga e do revestimento de Ni e também sobre a contaminação da água do reator, complementando assim os resultados das inspeções visuais realizadas em 1998, 2000 e 2001 (vide trabalho [2] apresentado neste evento). Um outro trabalho, também incluído neste evento [3], complementa a avaliação sobre degradação, abordando aspectos relacionados à depleção da liga, efetividade de absorção de nêutrons e propriedades mecânicas das BAs do reator IEA-R1.

Devido ao fato das BAs ainda estarem em operação no reator IEA-R1 e por não se dispor de células quentes que possibilitem a realização de exames adicionais às inspeções visuais, a avaliação ora

apresentada leva em conta informações geradas em reator de testes afins, por analogia, tendo por base parâmetros similares (condição de operação e química da água refrigerante do reator) a que são submetidos os materiais componentes das barras absorvedoras de nêutrons do IEA-R1.

II. EMBASAMENTO TEÓRICO E EXPERIMENTAL

Comportamento do revestimento de níquel. Desde a década de 60, os reatores de pesquisa que operam na faixa de temperatura de 37 a 95 °C já utilizavam ligas de Cd ou Ag-Cd baseados principalmente nas suas propriedades nucleares, sem extensivas considerações sobre resistência e corrosão a altas temperaturas, como acontece com os reatores de potência, cujos requerimentos quanto à corrosão são mais rigorosos em função da temperatura e da química da água do primário. Para garantir um desempenho satisfatório a baixas temperaturas, tais ligas eram geralmente revestidas com Al ou Ni [1,4]; neste último caso, através do revestimento eletrolítico das barras com uma camada de 0,5 – 2,0 mil (12,7 - 50 microns) de Ni [7].

O níquel, sendo empregado como revestimento anticorrosão, tem sua ação protetora explicada pela formação de película protetora de óxidos, hidróxidos ou outros compostos. O níquel se comporta como um revestimento “nobre” ou catódico (apresenta resistência à corrosão superior ao metal do substrato, no caso, a liga Ag-In-Cd) no qual a presença de descontinuidades,

capazes de expor o metal base, constitui um fator determinante de desempenho, uma vez que nestes locais o substrato seria preferencialmente corroído.

A boa aderência e a impermeabilidade da película protetora dependem da qualidade dos métodos empregados no revestimento e na limpeza das superfícies metálicas que são, evidentemente, condições essenciais para que haja a proteção adequada. A porosidade do revestimento de Ni constitui um dos tipos de descontinuidade, a qual é afetada pela qualidade do acabamento superficial do substrato e do processo de eletrodeposição. Mesmo que os devidos cuidados sejam tomados, é inevitável a presença de poros em camadas finas do níquel. À medida que se aumenta a espessura do depósito, a porosidade diminui, sendo esta uma das razões em se exigir espessuras maiores. Além dos poros, as camadas de níquel eletrodepositadas podem apresentar fissuras, que são formadas como consequência da presença, nos banhos de eletrodeposição, de aditivos abrillantadores e / ou niveladores que se codepositam causando tensões internas na camada eletrodepositada, em níveis capazes de causar seu fissuramento.

Normalmente, quanto mais brilhante a camada obtida, maior a quantidade de aditivos codepositados e, portanto, maior a tendência à formação de fissura. O níquel brilhante e o semibrilhante são obtidos a partir de banhos com adição de aditivos contendo enxofre. Os depósitos conseguidos apresentam estrutura laminar [5, 6].

A formação de pites de corrosão na camada de níquel constitui uma outra forma de descontinuidade. Isto ocorre devido à reação de evolução de hidrogênio no cátodo, concomitantemente à deposição do Ni. As moléculas de hidrogênio, formadas na superfície do cátodo, antes de se desprenderem e escaparem para a atmosfera, juntam-se formando bolhas de gás. Se a tensão superficial do banho for suficientemente elevada, as bolhas ficam aderidas ao metal, apresentando dificuldades para o desprendimento e a deposição de Ni ocorre nas vizinhanças da bolha, ficando um orifício na região de contato cátodo / gás com formato de pites.

Para qualquer tipo de revestimento, a resistência à corrosão tem o significado de ausência de corrosão do substrato; assim, aumentar o desempenho dos revestimentos, significa tentar retardar o início de corrosão no metal do substrato. No caso de revestimentos nobres, este propósito é alcançado através [5]:

1. da minimização das descontinuidades capazes de expor o substrato (porosidades) via aumento da espessura da camada de revestimento (variando, normalmente, de 10 – 40 microns ou mais, dependendo da agressividade do meio), e/ou pelo polimento das camadas, proporcionando fechamento de poros por arraste do metal;
2. da aplicação de revestimentos múltiplos (ou seja, camadas constituídas de revestimentos de diferentes naturezas), pela utilização de diferentes metais de base e pela utilização de depósitos de camadas dúplex ou triplex de Ni, alternando banhos formulados para obtenção de Ni fosco ou Ni semibrilhante ou Ni brilhante), o que resulta em

modificação do comportamento frente à corrosão, devido ao fato das camadas múltiplas desviarem o sentido de desenvolvimento da corrosão e, conseqüentemente, na formação de pites de fundo chato (em contrapartida aos pites profundos) e retardamento da exposição do substrato.

Qualidade da água. Os materiais metálicos em contato com água tendem a sofrer corrosão que depende das várias substâncias que podem estar contaminando a mesma. Devem também ser considerados o pH, a temperatura e a velocidade de escoamento da água. Os seguintes aspectos devem ser observados [5, 8]:

1. Dentre os gases dissolvidos na água, o oxigênio é o mais freqüentemente encontrado e pode funcionar como um fator de controle nos processos corrosivos, exercendo ação despolarizante que acelera o processo corrosivo e ação passivante do oxigênio em superfícies metálicas pela formação de óxidos protetores, como o Ni_2O_3 .
2. Quanto a influência do pH da água no processo corrosivo, dados experimentais mostraram que o pH básico é altamente agressivo para metais como Al, Ni, Sn, Pb até pH 9, notando-se, a partir deste valor um aumento do potencial de pite com o aumento do pH (o que representa uma maior resistência à corrosão por pite).
3. Em relação à velocidade de escoamento (velocidade relativa na interface metal / meio), pode-se afirmar que quando o condutor eletrolítico (no caso, a água) está em movimento, uniforme ou turbulento, a taxa de corrosão varia, da seguinte forma:
 - a corrosão por pite é associada a condições estagnadas (pior condição);
 - o movimento relativo da água refrigerante da piscina do reator inicialmente aumenta a taxa de corrosão, pois mais oxigênio entra em contato com a superfície das lâminas das BAs.
 - em velocidades mais elevadas, a quantidade de oxigênio que entra em contato com a superfície pode causar passivação, havendo decréscimo na taxa inicial de corrosão;
 - em temperaturas elevadas, a passivação não é atingida, qualquer que seja o valor da velocidade, pois oxigênio dissolvido elimina a possibilidade de passivação.

De modo geral, o aumento da temperatura acelera a corrosão por pite de metais e ligas, pois ocorre diminuição da polarização e da sobretensão, aumento da condutividade da água e da velocidade de difusão dos íons. Em contrapartida, em altas temperaturas a solubilidade do oxigênio na água diminui, o que pode retardar a ocorrência dos fenômenos citados. Pode-se ter um aumento na taxa de corrosão relacionado a ação mecânica de erosão devida a produtos de corrosão, isto é, em altas velocidades a água refrigerante alia a sua ação corrosiva a ação erosiva.

Comportamento da liga Ag- In - Cd. Os principais inconvenientes das ligas com base em Ag são a relativamente baixa resistência mecânica, pobre resistência a corrosão no refrigerante mesmo que contendo pequenas quantidades de oxigênio (4-5 ppm) e a resultante alta atividade dos núclídeos da Ag dentro do

sistema do reator [1]. As considerações apresentadas a seguir estão fundamentadas em uma série de testes realizados no loop de alta pressão do reator de testes de materiais do *Bettis Laboratory* (EUA):

1. Variações de ligas tipo Ag-In-Cd (dentre elas a liga 2533) em condição estática durante 252 dias em água deionizada em alta temperatura. Os resultados indicaram que baixas taxas de corrosão, mas que aumentam com o incremento de Cd e o decréscimo de In na composição da liga. Concluiu-se que o aumento da concentração de Cd, muito além de 5% na liga ternária Ag-In-Cd não é desejável do ponto de vista da resistência a corrosão. Introduções de Sn (devido à transmutação do In) em ligas tipo Ag-In-Cd (dentre elas a liga 2367), testadas em condição estática em água deionizada e alta temperatura melhoraram consideravelmente a resistência a corrosão, mesmo com o acréscimo de Cd e redução do In que ocorre durante a irradiação, permanecendo essencialmente, zero após 280 dias de exposição [9]. Corroborando tais afirmativas, evidências foram encontradas em ligas simulando composições de pós-irradiação (no qual parte do In foi trocada pelo Sn), indicando que pouco ou nenhuma oxidação interna ocorreu após exposição em água, ou seja, pequenas adições de Sn melhoram a resistência a corrosão da liga [7, 10].
2. Em ligas do tipo Ag-In-Cd (dentre elas, a liga 2533) e do tipo Ag-In-Cd-Sn (dentre elas, a liga 2367), testadas em condição dinâmica durante 168 dias em água hidrogenada (25-30 ml/kg), alto pH (9,5-10,5 em LiOH) e alta temperatura observou-se o seguinte comportamento [11]:
 - perda de peso em ligas do tipo Ag-In-Cd cuja concentração de Cd e de In atingem ~15% e ~10% (em peso), respectivamente;
 - a análise micro-estrutural do material de teste da liga 2533 indicou que o ganho de peso registrado resultou do *pick-up* de oxigênio e subsequente oxidação interna do In;
 - nas ligas Ag-In-Cd-Sn, a perda de peso é extremamente baixa e indicaram excelentes taxas de corrosão;
 - a análise micro-estrutural das amostras da liga 2567 indicaram uma completa ausência de oxidação interna, o que explicaria as mudanças desprezíveis de peso encontradas nesta liga;
 - a análise por raios-X de traços da superfície de corrosão das amostras da liga 2567 indicou a presença de um óxido complexo não identificado contendo Sn. Aparentemente, este óxido exerce função protetora nos testes com água estática, onde o ganho de peso foi muito pequeno e nos testes dinâmicos, onde a perda de peso foi muito pequena.
3. O comportamento da liga 2567 (que simula a liga 2533 após exposição a nêutrons térmicos de $\sim 10^{21}$ n/cm²), foi também testado sob uma variedade de condições de água refrigerante, conforme observado na Fig. 1. Os resultados com a liga 2567 indicam que a taxa de corrosão será extremamente baixa após irradiação, mesmo a altas temperaturas pois a presença de Sn, resultante da transmutação do In tem um forte efeito benéfico sobre a resistência a corrosão. Em água oxigenada, a liga perde peso rapidamente.

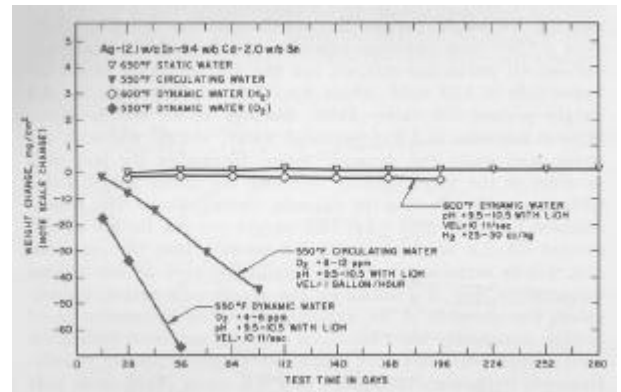


Figura 1. Corrosão da Liga 2567 em Água a Alta Temperatura [11].

Na mesma seqüência de testes acima citada, foi observado que a taxa de corrosão das ligas base em Ag é geralmente mais baixa em água hidrogenada e consideravelmente mais alta em água oxigenada, sendo a Ag inerte em água desgaseificada e hidrogenada, enquanto que em água oxigenada as pressões de dissociação são suficientemente próximas, tal que o ataque sobre a Ag sob tal condição é compreensível. As ligas Ag-Cd e Ag-In se mostraram praticamente inertes. Os óxidos CdO e In₂O₃ se formaram em água desgaseificada e em água oxigenada, o CdO se formando externamente e In₂O₃ se formando, principalmente, internamente na liga.

Liberação de atividade em água oxigenada a baixas temperaturas. Como já comentado, a probabilidade de altas concentrações de oxigênio no refrigerante é maior a baixas temperaturas. Em temperaturas da ordem de 93 °C ou menos, é quase uma certeza que ocorrerá, em algum momento, uma alta na concentração de oxigênio na água refrigerante do núcleo do reator por períodos prolongados. Tais picos de concentração não se restringem necessariamente ao *start-up* inicial do reator (antes que qualquer ativação da Ag tenha ocorrido).

A Fig. 2 mostra a correlação entre a atividade da água e a concentração de oxigênio durante um teste realizado no loop de testes de alta pressão do reator de testes de materiais do *Bettis Laboratory*, com concentração de oxigênio mantida acima de 5 ppm por ~70 horas e excursões na concentração até 23 ppm.

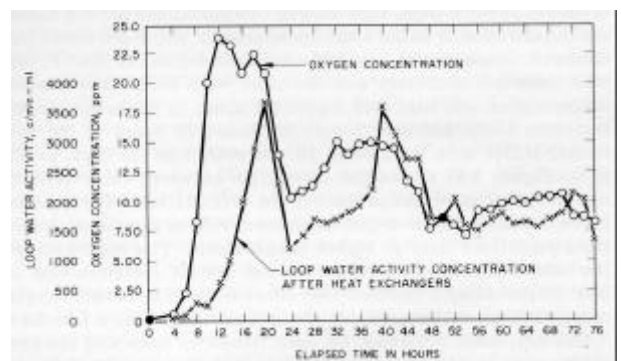


Figura 2. Correlação entre a Concentração de Oxigênio e a Atividade da Água durante Exposição Prolongada de Liga Ag-In-Cd Irradiada em Água à ~93 °C e pH Mantido em 9,2-10,6 [13].

As amostras do material foram previamente irradiadas a um fluxo total de $1,44 \times 10^{21}$ nvt para nêutrons térmicos (e um fluxo integrado estimado de $0,71 \times 10^{20}$ nvt para nêutrons rápidos). A análise radioquímica da liga, 9 meses após a remoção do reator, mostraram que 97 % do total observado de atividade gama era proveniente da Ag-110m (a taxa de atividade era de $\sim 4 \times 10^3$ Bq/l para água contendo até 6 ppm de oxigênio dissolvido), 0,54% do In-114m e menos que 0,03% do Cd-115. A atividade total de atividade gama naquele tempo era aproximadamente $1,7 \times 10^9$ cpm/mg.

Os resultados destes testes ofereceram suficiente confirmação de que o valor de perda de material das amostras, durante o processo de corrosão em refrigerante com baixa concentração de oxigênio (0,01-0,1 ppm), é muito próximo à mudança de peso que ocorre na liga. Presumiu-se que a atividade foi inicialmente depositada no trocador de calor e então, gradualmente, migrou para regiões mais frias, e por último, para as resinas do sistema de purificação do refrigerante.

III. AVALIAÇÃO DA DEGRADAÇÃO DAS BARRAS ABSORVEDORAS DE NÊUTRONS DO REATOR IEA-R1

Sobre as condições de corrosão. Considerando os aspectos observados durante as inspeções visuais [1], confirma-se que atualmente o revestimento nas BAs do reator IEA-R1 já se apresenta deteriorado.

Os possíveis motivos geradores da degradação das BAs utilizadas no reator IEA-R1 estão listados a seguir.

Perda da camada de revestimento de níquel. Não foram disponibilizadas pela CERCA informações sobre o processo de niquelação (não foi especificado o teor de enxofre na formulação do banho eletrolítico e se foram aplicadas de camadas múltiplas de Ni). Presume-se uma espessura de 50 microns para a camada de Ni. Não se dispõe de informações sobre a limpeza das superfícies metálicas e sobre a qualidade dos métodos empregados no processo de revestimento, do que depende a boa aderência e a impermeabilidade da película protetora (porosidade do revestimento, pites de corrosão superficiais e fissuras), que são, evidentemente, condições essenciais para que houvesse a proteção adequada. Portanto, a influência de tais aspectos sobre a degradação do revestimento das BAs não são conclusivos.

Influência dos gases e sólidos ionizáveis dissolvidos na água. A água destilada / deionizada é inócua, mas no momento em que dissolve um gás (O_2 , etc.) ou um sólido ionizável (NaCl, etc.), ela passa a ser catalisadora da corrosão. O reator IEA-R1 é um reator tipo piscina aberta (em contato com o ar atmosférico), portanto não deaerada. Além disto, admite-se na água da piscina a presença de até 6 ppm de oxigênio e até 0,3 ppm de cloretos dissolvidos [15, 16], níveis estes suficientes para que, tanto oxigênio como cloretos presentes na água, mas

principalmente o primeiro, exerçam forte fator acelerador no processo corrosivo.

Influência da velocidade de escoamento. O regime de escoamento da água da piscina é estagnado (quando da paralisação do sistema de purificação) a uniforme (não turbulento), portanto, incrementando o processo corrosivo, já que a corrosão por pite é associada a condições estagnadas (pior condição) e o movimento relativo da água refrigerante da piscina do reator inicialmente aumenta a taxa de corrosão, pois mais oxigênio entra em contato com a superfície das laminas das BAs.

Sobre a oxidação / corrosão da liga Ag-In-Cd. A oxidação / corrosão notada sob a película de Ni pode ter sido gerada devido:

1. à penetração e ataque do oxigênio à liga, já foi observado que as taxas de corrosão das ligas base em Ag, independentemente da concentração de Sn (que provoca efeito benéfico sobre a resistência à corrosão), são consideravelmente mais altas em água com concentração de oxigênio $> 4-5$ ppm;
2. ao aumento da concentração de Cd, estimado em 22,07% atualmente, muito além do limite de 5%, o que não é desejável do ponto de vista da resistência a corrosão (por analogia com o comportamento observado em ligas do tipo Ag-In-Cd cuja concentração de Cd e de In atingem $\sim 15\%$ e $\sim 10\%$, respectivamente).

Admite-se que, durante as paradas do reator IEA-R1, ocorra um o ganho de peso na liga das BAs, resultante do *pick-up* de oxigênio e subsequente oxidação interna à película de revestimento da Ag, do Cd e do In (o óxido CdO se formando na porção externa da liga e óxido In_2O_3 se formando, principalmente, internamente), seguido de rápida perda de peso (corrosão) quando o reator (e sistema de purificação) está operacional.

O pH da água da piscina é mantido em 5,5-6,5 quando o reator está desligado e 5,0-7,0 quando em operação [15, 16]. Portanto, sendo mantida como uma solução ácida - neutra, o que provoca pouca influência junto à camada de níquel.

Contribuição da degradação das barras absorvedoras para atividade no sistema refrigerante do reator.

Considerando-se a longa meia-vida e a alta energia gama emitida pelo isótopo Ag-110m, pode-se supor que a presença da grande concentração de Ag em ligas utilizadas como barras absorvedoras de nêutrons resulte em um problema de contaminação em potencial. A Tabela 1 apresenta parâmetros comparando ligas de Ag-In-Cd, Hf e revestimento de aço inoxidável (material atualmente utilizado para revestimento de BAs tanto em reatores de pesquisa com em reatores de potência).

TABELA 1. Comparação de Parâmetros de Materiais de Barras de Controle que afetam a Contaminação do Sistema Refrigerante de Reatores [12]

| | Ag-In-Cd | Hf puro | | Aço inox 314 |
|---|------------------|---------|--------|---------------------|
| | | Hf-175 | Hf-181 | Co-60 |
| Produto de ativação de maior meia-vida | Ag-110m | Hf-175 | Hf-181 | Co-60 |
| Concentração do isótopo na liga (% massa) | 80 | 100 | 100 | 0,08 ^(a) |
| Meia-vida (dias) | 270 | 70 | 46 | 1920 |
| Energia gama efetiva (Mev / dis) | 2,8 | 0,4 | 0,6 | 2,5 |
| Dose relativa a 1 metro (r/h-curie) | 1,58 | 0,23 | 0,34 | 1,24 |
| Seção de choque para produção por nêutrons térmicos de captura ($10^{-3} \times \text{cm}^2/\text{g}$ de liga) | 4 ^(b) | 6 | 12 | 0,3 ^(a) |
| Deslocamento do material liberado para as resinas de troca iônica do sistema de purificação ^(c) | razoável a pouco | pouco | pouco | razoável a pouco |
| Eficiência intrínseca do cristal do detector ^(d) (%) | 75 | 90 | 90 | 46 |

^{a)} Valor aproximado baseado na composição típica de um aço inox. Valores ainda mais reduzidos de Co são possíveis.

^{b)} Em alguns reatores, a seção de choque efetiva total (baseada em fluxo térmico) pode atingir o valor de $28 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{g}$ de liga devido a absorção por ressonância de nêutrons epitérmicos em Ag-109.

^{c)} Informação qualitativa baseada em observações do comportamento em *loops* de teste e em sistemas de reatores.

^{d)} Cristal (diâmetro $1^{3/4}$ pol. por 2 pol.) de NaI (TI) oblíquo à 30 keV em frascos de 4ml com 2 ml de solução.

No reator IEA-R1, as BAs já atingiram $3,29 \times 10^{21} \text{ nvt}$ para nêutrons térmicos (e $8,45 \times 10^{21} \text{ nvt}$ para nêutrons rápidos), apresentando picos de liberação de atividade para o isótopo Ag-110m na faixa de 70 - 200 Bq/l, segundo as análises de amostras da água da piscina por espectrometria gama realizadas no período 1999-2000 [14, 16].

Supõe-se que a maior parte do isótopo Ag-110m esteja depositado nas paredes e estruturas (treliças, plataforma de apoio, etc.) de aço inoxidável e alumínio da piscina. Tal suposição se deve ao fato de que devido ao seu potencial químico, a prata tende a se depositar eletroquimicamente em quase todas as superfícies metálicas. Confirmando esta hipótese, têm-se diversas medidas de espectrometria gama realizadas no período 1995 - 2000, tendo sido detectada Ag-110m sobre as superfícies metálicas acima citadas [14].

A corrosão observada nas lâminas das barras de Ag-In-Cd do reator IEA-R1, com resultante desprendimento de material devido a erosão, explica a existência de prata na água da piscina. Explica também a presença de cobalto na água (medidas realizadas no período de junho a setembro de 1999 indicaram picos de concentração de Co-60 na água da piscina do reator IEA-R1 na faixa de 800-900 Bq/l [16]), que foi gerado a partir do níquel do prolongador da lâmina de controle ou da parte niquelada, através da reação $\text{Ni}_{60}(\text{n}, \text{p})\text{Co}_{60}$, bem como através do desprendimento de Co_{59} , na forma de produto de corrosão do aço inox do liner da piscina.

Cabe lembrar que os elementos metálicos Ni, Cd, In e Sn são insolúveis na água, não sendo, portanto possível sua detecção no refrigerante devido a ação do sistema de purificação da água do reator IEA-R1 (tais elementos são detectáveis nos leitos de resina de troca iônica). Já o óxido AgO formado apresenta solubilidade de 17 g/l à 25 °C, 1 atm.

IV. CONCLUSÕES

Após a análise de aspectos relacionados ao comportamento quanto à corrosão da liga e do seu revestimento em níquel e à contaminação da água da piscina do reator IEA-R1, oriunda da degradação das BAs, chegou-se às seguintes projeções, as quais vem a embasar a recomendação de substituição imediata das atuais barras absorvedoras do reator IEA-R1:

- A oxidação e corrosão localizadas sob a película de níquel, observadas durante a inspeção visual das barras absorvedoras, são causadas por penetração e ataque da liga por oxigênio dissolvido na água da piscina, desde que o controle químico da água admite concentrações de até 6 ppm de oxigênio, e por ser possível a existência de períodos de tempo com excursões na concentração deste gás a níveis mais elevados, apesar de não haverem registros formais destas ocorrências; e aumento, ao longo do prolongado tempo de irradiação, da concentração de Cd na liga (estimada atualmente em 22,07%) para teores acima de 5%, o que vem causando a gradual diminuição da sua resistência a corrosão.
- Admite-se que, durante as paradas do reator IEA-R1, ocorra na liga das barras absorvedoras um ganho de peso resultante do pick-up de oxigênio e subsequente oxidação da Ag, do Cd e do In, interna à película de revestimento (o óxido CdO se formando na porção externa da liga e óxido In_2O_3 se formando, principalmente, internamente), seguido de rápida perda de peso quando o reator (e o sistema de purificação) está operacional.
- Corrobora-se a justificativa apresentada para a existência de prata (na forma do isótopo Ag-110m) na água e os atuais níveis de dose observados no saguão da piscina, como sendo devidas à corrosão observada nas lâminas das barras de Ag-In-Cd do reator IEA-R1, com resultante desprendimento de material devido a um processo de erosão.
- Idem quanto a existência de cobalto na água da piscina, como tendo sido gerado a partir do níquel do prolongador da lâmina de controle ou da parte niquelada, através da reação $\text{Ni}_{60}(\text{n}, \text{p})\text{Co}_{60}$, bem como através do desprendimento de Co_{59} , na forma de produto de corrosão do aço inox do "liner" da piscina.
- Considerando-se a presença das atuais falhas na integridade das barras absorvedoras de nêutrons (pites de corrosão, perda localizada da camada de níquel, perda de material absorvedor para a água da piscina, etc.) e ainda, o fato de que o reator IEA-R1 opera atualmente a uma potência de 2MW, mas que ao longo do ano 2002 passará a operar à 5MW, o

que implicará em elevação dos níveis de fluxo instantâneo n_v e alteração nas condições termo-hidráulicas vigentes, pode-se supor que ocorrerá a aceleração da degradação das barras absorvedoras do reator IEA-R1, o que implicará na elevação dos atuais níveis de contaminação, não apenas na água da piscina, como também nas estruturas metálicas relacionadas, podendo-se atingir níveis de atividade de ~400 Bq/l para a água com até 6 ppm de oxigênio dissolvido.

REFERÊNCIAS

- [1] Tipton Jr. CR (ed.), **Reactor Handbook Volume I: Materials**, chapter 35 by Dayton R.W., 2nd ed. USAEC, 1960.
- [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 1: Depleção da Liga, Efetividade de Absorção de Nêutrons e Propriedades Mecânicas** (trabalho apresentado neste evento). XIII ENFIR, 2002.
- [4] Smalley W.R., **Performance of Ag-In-Cd in Pressurized Water Reactors**, Nuclear Applications 4: (6), p.432, 1968.
- [5] Panossian Z. et al., **Manual sobre Corrosão e Proteção contra Corrosão em Equipamentos e Estruturas Metálicas**, 1^a ed., vol. 2, capítulo 5: Revestimentos Metálicos, ISBN 85-09-000101-4, IPT 2032, 1993.
- [6] Anderson W.K. (ed.), Theilaker J.S. (ed.), **Neutron Absorber Materials for Reactor Control**, chapter 7 by Theilaker J.S., USAEC, 1962.
- [7] Anderson W.K. (ed.), Theilaker J.S. (ed.), **Neutron Absorber Materials for Reactor Control**, chapter 1 by Anderson W.K. et al., USAEC, 1962.
- [8] Gentil V., **Corrosão**, 2^a ed., Vol. 2, Cap. 6: Meios Corrosivos, Ensaio de Corrosão, Avaliação e Taxa de Corrosão. ISBN 85-7030-024-7, Guanabara Dois, 1983.
- [9] Cohen I., Lusso E.F., Eickenberg J.D., **Metallurgical Design and Properties of Silver - Indium - Cadmium Alloys for PWR Control Rods**, Bettis Tech. Review, WAPD-BT-6 Report, 1958.
- [10] International Atomic Energy Agency, **Control Assembly Materials for Water Reactors: Experience, Performance and Perspectives**, IAEA-TECDOC-1132, 2000.
- [11] Cohen I., **Development and Properties of Alloys Base - Silver as Control Rods Materials for PWRs**, WAPD-214 Report, 1959.
- [12] Anderson WK (ed.), Theilaker JS (ed.), **Neutron Absorber Materials for Reactor Control**, chapter 5 by Cohen I. et al., USAEC, 1962.
- [13] Tipton Jr. C.R. (ed.), **Reactor Handbook Volume I: Materials**, chapter 40 by Fosco E.F., 2nd ed., USAEC, 1960.
- [14] Terremoto L.A.A., Zeituni, C.A., **Comunicação pessoal** - dados baseados em diversos trabalhos realizados pelo CENC no período 1995 - 2000, relacionados aos projetos CICON, Sipping e Determinação de Queima de Combustível por Espectrometria Gama, 2001.
- [15] Diretoria de Reatores do IPEN-CNEN/SP, **Relatório de Segurança do Reator IEA-R1 Rev. 5**, Novembro de 1997.
- [16] Terremoto L.A.A. et al., **Relatório de Acompanhamento da Irradiação dos ECs Nacionais no Reator IEA-R1**, PSE.CENC.IEAR1.017.00 - RELT.001.00, IPEN/CNEN-SP, 1999.

ABSTRACT

Analyzing the Ni plated Ag-In-Cd absorber bars degradation behavior under irradiation, this work reports a qualitative assessment of the IEA-R1 absorber bars degradation current condition by viewpoint of alloy and Ni clad corrosion, and about the reactor water contamination 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.