



BR0039987



CNEN/SP

**ipen** Instituto de Pesquisas  
Energéticas e Nucleares

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE  
DE SÃO PAULO

INIS- BR - - 3759

**MODELAGEM E SIMULAÇÃO DO TERMO-FONTE  
RADIOATIVO DE PRODUTOS DE FISSÃO EM  
REATORES NUCLEARES DO TIPO PWR**

**ROGILSON NAZARÉ DA SILVA POFFÍRIO**

Dissertação apresentada como parte  
dos requisitos para obtenção do Grau  
de Mestre em Ciências na Área de  
Reatores Nucleares de Potência e  
Tecnologia do Combustível Nuclear.

Orientador:  
Dr. Adimir dos Santos

**São Paulo**

**1996**

**Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares**  
**Autarquia associada à Universidade de São Paulo**

**MODELAGEM E SIMULAÇÃO DO TERMO-FONTE  
RADIOATIVO DE PRODUTOS DE FISSÃO EM  
REATORES NUCLEARES DO TIPO PWR**

**Rogilson Nazaré da Silva Porfírio**

Dissertação apresentada como parte dos requisitos  
para obtenção do grau de Mestre em Ciências na  
Área de Reatores Nucleares de Potência e Tecnologia  
do Combustível Nuclear.

Orientador:  
Dr. Adimir dos Santos

**São Paulo**

**1996**

**Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares**  
**Autarquia associada à Universidade de São Paulo**

**MODELAGEM E SIMULAÇÃO DO TERMO-FONTE**  
**RADIOATIVO DE PRODUTOS DE FISSÃO EM**  
**REATORES NUCLEARES DO TIPO PWR**

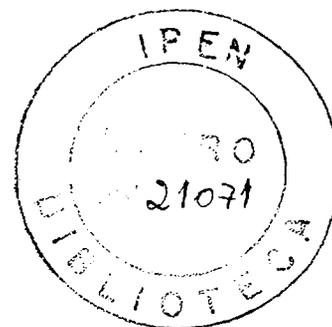
Rogilson Nazaré da Silva Porfírio

Dissertação apresentada como parte dos requisitos para obtenção do grau de Mestre em Ciências na Área de Reatores Nucleares de Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear.

Orientador:  
Dr. Adimir dos Santos

São Paulo

1996





*A única preparação para o amanhã  
é o emprego correto do hoje*

A Deus.  
Aos meus Pais.  
A minha Esposa Dari.  
Aos meus Irmãos em especial ao "Mário".  
Aos meus Sogros e Cunhadas.  
Aos meus amigos em especial a Edison e Terezinha Cristini.

## AGRADECIMENTOS

Ao Centro Tecnológico da Marinha em São Paulo (CTMSP) pelo apoio, sem o qual não teria sido possível a realização desse trabalho.

Ao Dr. Adimir dos Santos pela valiosa orientação, amizade e auxílio.

Aos colegas de trabalho: André Dória, Marilene, Sandra Mara , André Wagner, Liu, José Carlos, Marcelo, João Treco, Carlos Bastos, Valmir, Wladmir, Paulo Belisario, Takeshi, pelo agradável convívio e em especial a Miriam Cegala e Walter Ferreira.

A prof. Elisabeth de Oliveira (IQ - USP) pela amizade e confiança em mim depositadas.

***“MODELAGEM E SIMULAÇÃO DO TERMO-FONTE RADIOATIVO DE PRODUTOS DE FISSÃO EM REATORES NUCLEARES DO TIPO PWR.”***

**ROGILSON NAZARÉ DA SILVA PORFÍRIO**

**RESUMO**

O Termo-Fonte surgiu com o intuito de quantificar os nuclídeos radioativos liberados por ocasião de um acidente em um reator nuclear. Atualmente, o termo-fonte é restrito ao fluido refrigerante do primário dos reatores, e pode ser medido ou simulado por códigos de computador, como o TFP desenvolvido neste trabalho. O processo de cálculo desse código é baseado na técnica de linearização de cadeias utilizada pelo código CINDER-2.

O código TFP considera três formas de liberação de produtos de fissão da pastilha combustível para o gap, que são: Recuo, Knockout e Migração. A liberação do gap para o fluido refrigerante é determinada pela relação de atividades medida no refrigerante e calculada no gap.

Considerando os dados operacionais do reator SURRY-1, executou-se a simulação/modelagem do termo-fonte dos produtos de fissão desse reator. Com os valores das atividades medidas verificou-se o nível de confiabilidade do modelo utilizado e da lógica computacional empregada. O nível de precisão dos dados calculados quando comparados com os medidos foi satisfatório.

**"MODELLING AND SIMULATION THE RADIOACTIVE SOURCE-TERM OF THE FISSION PRODUCTS IN TYPE PWR NUCLEAR REACTORS."**

**ROGILSON NAZARÉ DA SILVA PORFÍRIO**

**ABSTRACT**

The source-term was defined with the purpose the quantify all radioactive nuclides released the nuclear reactor in the case of accidents. Nowadays the source-term is limited to the coolant of the primary circuit of reactors and may be measured or modelled with computer codes such as the TFP developed in this work. The calculational process is based on the linear chain techniques used in the CINDER-2 code.

The TFP code considers three forms of fission products release from the fuel pellet: Recoil, Knockout and Migration. The release from the gap to the coolant fluid is determined from the ratio between activity measured in the coolant and calculated activity in the gap.

Considered the operational data of SURRY-1 reactor, the TFP code was run to obtain the source-term of this reactor. From the measured activities it was verified the reliability level of the model and the employed computational logic. The accuracy level of the calculated quantities were compared to the measured data was considered satisfactory.

*nuclear power plant  
fission product release C5720  
fission products  
source terms data  
computer codes, accident codes  
primary coolant circuits  
surry-1 reactor  
computerized simulation*

## SUMÁRIO

### CAPÍTULO 1

1.1	INTRODUÇÃO.....	02
1.2	HISTÓRICO.....	04
1.2.1	TERMO-FONTE.....	04
1.2.2	CÓDIGOS DE QUEIMA DO COMBUSTÍVEL.....	06
1.2.3	CÓDIGOS DE LIBERAÇÃO DE PRODUTOS DE FISSÃO.....	08
1.3	TERMO-FONTE.....	11
1.4	OBJETIVO E DIVISÃO DO TRABALHO.....	15
1.5	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 1.....	18

### CAPÍTULO 2

2.1	INTRODUÇÃO.....	23
2.2	GERAÇÃO DOS PRODUTOS DE FISSÃO.....	24
2.3	LIBERAÇÃO DOS PRODUTOS DE FISSÃO DO COMBUSTÍVEL.....	28
2.4	ATIVIDADES DOS PRODUTOS DE FISSÃO NO REFRIGERANTE.....	34
2.5	MODO DE FALHA DA VARETA COMBUSTÍVEL.....	37
2.6	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 2.....	39

## CAPÍTULO 3

3.1	INTRODUÇÃO.....	42
3.2	OS CÓDIGOS CINDER-2 E TFP.....	43
3.2.1	O CÓDIGO CINDER-2.....	43
3.2.2	O CÓDIGO TFP.....	55
3.2.3	SELEÇÃO DOS NUCLÍDEOS UTILIZADOS NO CÓDIGO TFP.....	61
3.3	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 3.....	65

## CAPÍTULO 4

4.1	INTRODUÇÃO.....	68
4.2	CERTIFICAÇÃO DA METODOLOGIA MATEMÁTICA DO CÓDIGO TFP.....	69
4.3	APLICAÇÃO DO MODELO PARA UM REATOR EM OPERAÇÃO.....	74
4.3.1	DADOS OPERACIONAIS DO REATOR ANALISADO.....	75
4.3.2	PERFIL OPERACIONAL DO REATOR ANALISADO.....	77
4.4	ANÁLISE NUMÉRICA DO RECUO, KNOCKOUT, MIGRAÇÃO E LIBERAÇÃO PARA O FLUIDO REFRIGERANTE DO PRIMÁRIO.....	79
4.5	TERMO-FONTE DO REATOR ANALISADO E ANÁLISE DOS RESULTADOS.....	84
4.5.1	TERMO-FONTE DO REATOR ANALISADO.....	84
4.5.2	ANÁLISE DOS RESULTADOS.....	87
4.6	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 4.....	94

## CAPÍTULO 5

5.1 CONCLUSÕES.....	96
5.2 RECOMENDAÇÕES.....	100

## APÊNDICE A

A.1 FRAÇÃO DE FUGA DA PASTILHA DE $UO_2$ POR RECUO.....	101
A.2 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO APÊNDICE A.....	103

## APÊNDICE B

B.1 DETERMINAÇÃO DO COEFICIENTE DE TRANSFERÊNCIA CALOR POR CONVECÇÃO ( $h_f$ ).....	104
B.2 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO APÊNDICE B.....	106

## ÍNDICE DE TABELAS

<b>Tabela 1:</b> Principais Nuclídeos Presentes no Termo-fonte.....	12
<b>Tabela 2:</b> Liberação de Produtos de Fissão em Elevadas Temperaturas.....	32
<b>Tabela 3:</b> Produtos de Fissão Agrupados pelas suas Volatilidades.....	35
<b>Tabela 4:</b> Dados de Saída do Código TFP.....	63
<b>Tabela 5:</b> Taxas Aleatórias de Liberação do UO <sub>2</sub> , do Gap e do Refrigerante.....	71
<b>Tabela 6:</b> Atividades do Kr85m Mediante Liberações Aleatórias.....	72
<b>Tabela 7:</b> Atividades do Kr85m Determinadas pelo Cinder-2.....	72
<b>Tabela 8:</b> Dados Operacionais do Surry-1.....	75
<b>Tabela 9:</b> Termo-fonte da Surry-1 no Primeiro Ano.....	76
<b>Tabela 10:</b> Perfil Operacional da Surry-1.....	77
<b>Tabela 11:</b> Constantes de Liberação da Pastilha Combustível.....	81
<b>Tabela 12:</b> Constantes Utilizadas na Determinação de h <sub>f</sub> .....	83
<b>Tabela 13:</b> Atividades com Taxas de Liberação de 10 <sup>-4</sup> a 10 <sup>-8</sup> s <sup>-1</sup> .....	84
<b>Tabela 14:</b> Taxas de Liberação do Gap por Nuclídeo e por Classe.....	86
<b>Tabela 15:</b> Taxas de Liberação do Gap Dada pela Relação entre a Atividade Medida no Refrigerante e a Calculada no Gap.....	87
<b>Tabela 16:</b> Atividade no Refrigerante Devido ao Recuo, Knockout e Migração.....	88
<b>Tabela 17:</b> Quantidades de Varetas que Falharam na Surry-1.....	92

## ÍNDICE DE FIGURAS

<b>Figura 1:</b> Perfis de Operação de Reatores.....	11
<b>Figura 2:</b> Fluxograma Ilustrativo do Cálculo do Termo-Fonte no Fluido Refrigerante do Primário.....	12
<b>Figura 3:</b> Curvas Características do Yield de Fissão para Vários Números de Massa .....	25
<b>Figura 4:</b> Ilustração do Processo de Produção e Destruição de um Nuclídeo Ni.....	26
<b>Figura 5:</b> Cadeias de Produtos de Fissão com Massa de 84 a 88 e Número Atômico de 30 a 39.....	44
<b>Figura 6:</b> Representação Simplificada das Cadeias dos Produtos de Fissão.....	45
<b>Figura 7:</b> Cadeia Hipotética de Transmutação Nuclear.....	46
<b>Figura 8:</b> Cadeias Hipotéticas Linearizadas.....	48
<b>Figura 9:</b> Ilustração da Cadeia Genérica de Transmutação Nuclear do Nuclídeo Ni.....	49
<b>Figura 10:</b> Cadeias dos Produtos de Fissão do ENDF/B-V Utilizadas pelo Cínder-2.....	53
<b>Figura 11:</b> Fluxograma de Execução do Código Cínder-2.....	54
<b>Figura 12:</b> Representação da Geração e Acoplamento dos Nuclídeos em 3 Dimensões.....	55
<b>Figura 13:</b> Representação da Geração dos Nuclídeos em 3 Dimensões.....	56
<b>Figura 14:</b> Arranjo de 4 Nuclídeos Representando a Região 1.....	57
<b>Figura 15:</b> Cadeias Lineares de 4 Nuclídeos Originais.....	57
<b>Figura 16:</b> Arranjo de 3 Nuclídeos Representando as 3 Regiões.....	57
<b>Figura 17:</b> Cadeias Lineares com 3 Nuclídeos Originais e 3 Regiões.....	58
<b>Figura 18:</b> Arranjo Representativo de Nuclídeos Acopladas nas Três Regiões de Cálculo.....	59
<b>Figura 19:</b> Cadeias Lineares dos Actínídeos Tratadas pelo Código TFP.....	61
<b>Figura 20:</b> Cadeias Lineares dos Produtos de Fissão Tratadas pelo Código TFP.....	62
<b>Figura 21:</b> Fluxograma de Execução do Código TFP.....	64

<b>Figura 22:</b> Concentração do Kr-85m no UO <sub>2</sub> e no Refrigerante para 5 Time-step.....	73
<b>Figura 23:</b> Perfil Operacional nos Intervalos de Tempo Modelados.....	78
<b>Figura 24:</b> Atividades no Refrigerante Devido ao Recuo, Knockout e Migração.....	89
<b>Figura 25:</b> Influência da Temperatura na Atividade do Primário.....	90
<b>Figura 26:</b> Perfil Operacional do Reator Analisado em Função da Atividade do <sup>131</sup> I e <sup>133</sup> I no Primário.....	91
<b>Figura 27:</b> Atividade no Fluido Refrigerante em Função do λ.....	91

## CAPÍTULO 1

### 1.1 INTRODUÇÃO

### 1.2 HISTÓRICO

#### 1.2.1 TERMO-FONTE

#### 1.2.2 CÓDIGOS DE QUEIMA DE COMBUSTÍVEL

#### 1.2.3 CÓDIGOS DE LIBERAÇÃO DE PRODUTOS DE FISSÃO

### 1.3 TERMO-FONTE

### 1.4 OBJETIVO E DIVISÃO DO TRABALHO

### 1.5 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 1

## 1.1 INTRODUÇÃO

Termo-fonte radioativo é a quantificação de todos os núclídeos radioativos presentes no fluido refrigerante do primário de um reator nuclear.

O termo-fonte foi objeto de estudo em vários institutos de pesquisa durante anos <sup>1,2,3,4,5,6</sup>. A finalidade desses estudos era determinar e quantificar os produtos de fissão e os produtos de corrosão gerados nos reatores nucleares durante suas operações, devido a fissuras (falhas) nos revestimentos das varetas combustíveis e a liberação de partículas das estruturas metálicas que compõem o circuito primário e a difusão do trítio pelo revestimento das varetas combustíveis (principalmente se aço-inox).

O termo-fonte ou inventário radioativo é portanto a quantificação de todos os núclídeos radioativos presentes no fluido refrigerante dos reatores nucleares, geralmente classificados como produtos de fissão e produtos de ativação.

Os produtos de fissão originados nas pastilhas combustíveis chegam até o refrigerante do primário através das falhas nas varetas combustíveis por intermédio de liberações sequenciais, partindo da pastilha combustível ( $UO_2$ ) até o "gap" e do gap até o refrigerante. Os produtos de corrosão tornam-se ativos quando são submetidos ao fluxo de neutrons gerado no núcleo do reator. Eles chegam até o núcleo devido à ação do fluido refrigerante que remove as camadas de óxidos formadas nas superfícies internas das tubulações do circuito primário e libera os materiais ativados nas estruturas internas ao vaso do reator.

O estudo pormenorizado do termo-fonte é importante para a determinação da dose equivalente devido à exposição dos trabalhadores nos períodos de operação e manutenção do reator, para a avaliação do impacto ambiental quando da liberação de radionuclídeos para o meio ambiente, para a avaliação de análise de segurança no licenciamento de plantas nucleares e em outras áreas que utilizam esse inventário.

O cálculo do termo-fonte de reatores nucleares sempre foi baseado na operação de reatores de grande porte ou reatores de potência (como ANGRA-I), os quais operam em regime estacionário ou contínuo no tempo, ou seja, as variações que ocorrem na potência do início da operação até o final são consideradas muito pequenas em relação ao período total de operação da planta, cerca de 15 meses.

De acordo com o perfil de operação estabelecido para o reator de pequeno porte, o cálculo do termo-fonte, considerando apenas os produtos de fissão, partirá da simulação e modelagem do comportamento operacional do núcleo desse reator, admitindo os seguintes aspectos:

- (a) histórico de queima;
- (b) taxas de liberações dos produtos de fissão do  $UO_2$  para o gap;
- (d) taxas de liberações dos produtos de fissão para o fluido refrigerante do primário devido a falhas nos revestimentos das varetas combustíveis;
- (e) índice de falhas das varetas combustíveis.

Apesar dos produtos de corrosão ativados estarem incluídos no termo-fonte como produtos de ativação, eles não serão estudados nesse trabalho, pois uma análise minuciosa sobre esses radionuclídeos deve ser feita. A abordagem desse assunto implica em conhecer profundamente as características dos materiais que são utilizados no circuito primário do reator e que estão constantemente em contato com o fluido refrigerante, o que proporciona um comportamento peculiar desses materiais. O principal aspecto dessa abordagem é o ambiente físico-químico a que estão expostos esses materiais. Além disso, existem alguns parâmetros operacionais que influem diretamente na quantificação desses produtos de corrosão ativados, principalmente, nas situações de transientes operacionais.

A presença dos produtos de fissão, produtos de corrosão e trítio no refrigerante do primário, além de fornecer informações a cerca do comportamento da planta durante a operação, exercem forte influência no ciclo do combustível nuclear e em particular no gerenciamento, reprocessamento, transporte e estocagem do combustível utilizado no reator.

## 1.2 HISTÓRICO

### 1.2.1 TERMO-FONTE

A primeira referência da quantidade de material radioativo no núcleo de um reator e posteriormente no seu fluido refrigerante foi denominada de "quantidade de material radioativo no núcleo", e que depois passou a ser chamada de "termo-fonte", é encontrada no "Summary Report of Reactor Safeguards Committee-1950"<sup>1</sup>, que é o primeiro relatório desse comitê. Esse comitê teve como predecessor o "Advisory Committee on Reactor Safeguards", que não emitiu nenhum documento a esse respeito<sup>1</sup>.

O início dos estudos sobre a determinação do inventário radioativo no fluido refrigerante do primário, propriamente dito, deu-se na primeira metade da década de 50. Pesquisadores nos EUA descobriram que durante o tempo de funcionamento de um reator, os produtos de fissão que eram gerados nos combustíveis escapavam para a água de refrigeração. Preocupados com isso imaginaram o que poderia ocorrer no ambiente vizinho a esses reatores caso os produtos de fissão, por algum motivo, fossem liberados para o ambiente. A partir daí, começaram a fazer estudos e experimentos de liberações radioativas para analisar o tipo de problema causado e suas consequências à instalação e ao ambiente vizinho a essa instalação<sup>2</sup>.

Na segunda metade da década de 50, iniciou-se nos EUA a fabricação e instalação de reatores tipo PWR (Pressurized Water Reactors) para gerar energia elétrica em diversas cidades americanas. Durante a operação desses reatores havia sempre a preocupação com a quantificação dos radionúcleos no fluido refrigerante do primário. Por esse motivo, o termo-fonte passou a ser parte integrante do capítulo de análise de segurança no licenciamento de reatores nucleares<sup>3</sup>.

No final da década de 50 e início da década de 60, a ANS (American Nuclear Society) e outras entidades decidiram fazer medidas do inventário radioativo presente no fluido refrigerante do primário de diversos reatores nos EUA<sup>3,4</sup>.

Devido as medidas executadas, a ANS previu que o comportamento do termo-fonte durante a operação dos reatores analisados seriam semelhantes, assim sendo, surge no final da década de 60 e início da década de 70 uma norma, a ANS 18.1-1974<sup>5</sup>, que normatizava sobre a determinação do termo-fonte operacional para reatores de grande porte tipo PWR e BWR.

Prosseguindo os estudos iniciados na década de 70, em 1984, a ANS lança uma outra norma intitulada ANSI-ANS 18.1-1984<sup>6</sup>, que seria a ANS 18.1-1974 revisada.

Quando imaginava-se que o problema havia encerrado, descobriu-se que as plantas, depois de um período de funcionamento, não apresentavam o mesmo comportamento de quando foram feitas as medidas do termo-fonte, nos primeiros anos de operação. Isso era devido ao desgaste dos materiais, à quantidade de radionuclídeos que se acumulavam em diversos locais do circuito primário, a troca e rearranjo do núcleo e outros parâmetros operacionais inerentes a cada planta. Devido a esse fato, as análises, os experimentos e os estudos sobre o termo-fonte foram reformulados e até hoje não se desenvolveu um modelo definitivo e preciso que calcule o termo-fonte de um reator nuclear em operação.

O que se faz atualmente é verificar o estado de queima do combustível, quando a planta está em equilíbrio operacional, e multiplicar o inventário radioativo do núcleo do reator por um valor percentual, o que corresponde a uma quantidade de varetas que geram as maiores potências no núcleo e que estejam danificadas, comumente conhecido como índice de falha<sup>4</sup>. No entanto, uma nova postura sobre a determinação do termo-fonte e do índice de falha das varetas combustíveis está sendo tomada, onde no decorrer da operação do reator são feitas análises da água do circuito primário para quantificar a atividade específica dos nuclídeos radioativos presentes nesta, tais como: I-131, I-133, Xe-133, Kr-85 e Kr-85m.

Com a razão entre atividade calculada no gap e a atividade medida no refrigerante, é determinada a taxa de liberação para cada nuclídeo radioativo de interesse<sup>7,8</sup>. A atividade no gap é determinada através de um código de queima do combustível. Vários códigos de computador foram feitos com essa finalidade.

### 1.2.2 CÓDIGOS DE QUEIMA DE COMBUSTÍVEL

Um dos primeiros programas de computador que tratava a geração e perda isotópica foi um código escrito por Triplett (Hamford, 1955)<sup>9</sup>. Esse código usou equações desenvolvidas por Van Wye e Berckley e programou explicitamente a equação para cada isótopo dentro desse código. As equações programadas resultam das equações de “Bateman”<sup>10</sup>.

“Isotopic History Trace” (General Eletric, 1960)<sup>11</sup> é um código que trata a geração e perda de isótopos. Esse código utiliza o método da linearização de cadeias com dados contidos na biblioteca SLAG, sendo esta uma biblioteca de seção de choque.

O código de computador CANDLE<sup>12,13,14</sup> (Westinghouse, 1958) foi outro código que tratava da ativação e perda de isótopos e calculava, além da queima isotópica do combustível, a difusão de neutrons em uma dimensão para determinar o fluxo e a seção de choque macroscópica.

A rotina de solução do código CANDLE foi usada no TURBO<sup>15</sup> e PDQ<sup>16</sup>, para melhorar o cálculo da equação de difusão com queima em duas dimensões. Uma extensão a terceira dimensão foi obtida com os códigos ZIP<sup>17</sup>, INT<sup>18</sup> e PDQ dentro do TURBO e, finalmente definido como DRACO<sup>19</sup>, que melhora o código da difusão em três dimensões usando o algoritmo do código CANDLE.

O Código CRUNCH<sup>20</sup> (Oak Ridge, 1960) foi o primeiro código de computador que usou uma rotina genérica para solucionar qualquer problema de cadeias de decaimento e perda de núclídeos radioativos utilizando a equação de “Bateman”.

O programa CRUNCH foi projetado para ser usado como uma subrotina em grandes programas, e tratava apenas um grupo de energia e necessitava que os fluxos e as seções de choque fossem inseridas manualmente. Devido a essas e outras desvantagens foi criado o código ISOCRUNCH<sup>21</sup> (oak Ridge, 1963) que usava a mesma técnica para calcular as diferentes cadeias e acumular as densidades totais de cada núclídeo. Ele também determina o tempo em que a concentração máxima de um isótopo foi obtida.

O código RBU<sup>22</sup> (Hamford, 1959) trata a queima do combustível acoplado a um código de difusão por Monte-Carlo e perda de isótopos. Monte-Carlo é usado para determinar os fluxos em pequenos grupos. Os fluxos são utilizados para determinar as seções de choque. A equação de difusão é solucionada e produz os fluxos em poucos grupos, os quais são utilizados na geração e perda de isótopos. A equação de queima é solucionada e todo o processo é repetido.

Uma das primeiras publicações a cerca do cálculo de transmutação isotópica foi escrita por Vondy<sup>23</sup>. Ele escreveu o código NUCY (Oak Ridge, 1962). Depois TONG<sup>24</sup> escreveu (Oak Ridge, 1967) um código de dimensão zero que trata geração e perda de núclídeos radioativos, e EQUIPOISE BURNOUT, um código que acopla o transporte de neutrons com a produção de núclídeos radioativos.

O código CINDER<sup>25</sup> (Westinghouse, 1962) utiliza o método de Vondy para solucionar as equações de densidade de núclídeos radioativos. Ele resolve o problema de transmutação em cadeias lineares e soluciona com as equações de "Bateman". Versões mais recentes desse código são sempre idênticas a primeira.

O ORIGEN<sup>26</sup> é um código de perda e produção de isótopos (Oak Ridge, 1973) que utiliza uma rotina de matriz exponencial desenvolvida por Bell e Aams<sup>27</sup>. O código na sua versão original trata uma matriz de 800 por 800 e necessita de uma grande quantidade de memória de computador para estocar todos os dados.

DCHAIN2<sup>28</sup> (JAERI, 1980) é uma versão mais moderna do código DCHAIN<sup>29</sup> (JAERI, 1977) que é uma modificação do código FP-S<sup>30</sup> (JAERI, 1970). O DCHAIN2 calcula a produção de núclídeos radioativos através das reações com neutrons assim como através do decaimento, e também calcula qualquer tipo de cadeia de decaimento (o FP-S calcula somente 15 tipos).

O código RIBD<sup>31,32</sup> (Douglas United, 1968) é outro código de transmutação, que acompanhado do CINDER e do ORIGEN são os códigos mais comumente utilizados para essa finalidade.

### 1.2.3 CÓDIGOS DE LIBERAÇÃO DE PRODUTOS DE FISSÃO

Para que os produtos de fissão cheguem até o fluido refrigerante do primário e sejam quantificados ou determinado o termo-fonte é necessário que eles passem por dois processos de liberação: liberação da pastilha combustível para o gap e liberação no fluido refrigerante através do revestimento defeituoso. Essas etapas foram estudadas em modelos teóricos e em alguns casos experimentalmente. Esses modelos teóricos desenvolvidos consideram dois processos físicos de liberação; o modelo cinético e o modelo difusivo.

Entre os diversos códigos que tratam da liberação dos produtos de fissão para o gap e do gap para o fluido refrigerante, podem ser citados como destaque os seguintes:

- (1) Código de computador FEMAXI-IV<sup>34</sup> é utilizado para analisar o comportamento térmico e mecânico da vareta combustível de reatores refrigerados a água leve, durante as condições de operação normal (estado estacionário) e transiente, sendo ambas as condições função do histórico de queima do combustível desses reatores;
- (2) O código MITRA<sup>35</sup> (Multicomponent Isotope TRANsport) foi feito para melhorar os cálculos de liberação dos produtos de fissão voláteis de meia vida curta por um modelo difusivo em condições de operação transiente ou em estado estacionário. Esse código possui uma interface direta com a biblioteca de dados do código ORIGEN-2<sup>26</sup>.
- (3) O código FUTURE<sup>36</sup> (FUel Transient Ultimate REsponse) faz o exame detalhado da liberação de gases de fissão em dois estágios. O primeiro trata do processo de transporte (difusão volumétrica) e o segundo trata do caminho no qual haverá o escape dos produtos de fissão gasosos através dos contornos de grãos na pastilha combustível. Também possui uma grande interação mecânica entre a pastilha combustível e o revestimento. Em alguns casos, ele é utilizado conjuntamente com o código MITRA.
- (4) O código PROFIP<sup>37</sup> foi desenvolvido pela CEA (Comisariat à l'Energie Atomic) e Framatomi para analisar a geração e o transporte dos produtos de fissão no sistema combustível, gap, e refrigerante, através da relação entre a atividade medida no fluido refrigerante com a atividade gerada no combustível. Essa relação é utilizada para identificar a localização do combustível defeituoso, o número desse combustível, o tamanho da falha, a temperatura desse combustível que falhou e a potência na qual ele estava operando. Essas determinações são executadas em condições de estado estacionário ou transiente.

- (5) O código DFE <sup>38, 39</sup> foi desenvolvido com o intuito de determinar a liberação dos produtos de fissão do combustível para o gap e para o fluido refrigerante considerando a adsorção de núclídeos não gasosos na superfície interna do revestimento. É empregado também para checar o nível de falha das varetas combustíveis durante a operação do reator analisado. Nesse código é utilizado o processo difusivo para migração e liberação em condição de operação no estado estacionário.
- (6) O código COFF <sup>40</sup> (Calculation Of Failed Fuel) desenvolvido pela Babcock & Wilcox determina a concentração dos produtos de fissão em três regiões: combustível, gap e refrigerante, através de solução de equações de balanço radioativo, considerando que o reator esteja operando em estado estacionário. Ele estabelece um nível de defeito nas varetas combustíveis de 0,05%, uma vez que, na análise do termo-fonte de projeto era considerado um valor teórico  $\geq$  a 1%.

Entre os diversos modelos que tratam da liberação dos produtos de fissão para o gap e do gap para o fluido refrigerante, podem ser citados como destaque os seguintes:

- (1) O modelo de Bourgeois <sup>41</sup> descreve o comportamento dos produtos de fissão através de medidas efetuadas de suas concentrações no fluido refrigerante do primário. Utiliza essas concentrações relacionando-as com concentrações disponíveis na literatura para verificar de forma inversa as concentrações no combustível, e assim, avaliar o número de rupturas que surgiram durante a operação. A originalidade desse modelo consiste na determinação de uma probabilidade de variadas falhas que refletem no balanço de inventário radioativo de iodo, e por consequência uma concentração maior que a dos gases nobres no fluido refrigerante. Esse modelo é usado em condições de operação em estado estacionário e transiente.
- (2) Modelo de Kalfsbeek <sup>42</sup> descreve a liberação dos produtos de fissão gasosos da vareta combustível defeituosa como um processo de transporte unidimensional. Ele relaciona a concentração de produtos de fissão medida no fluido refrigerante com os valores calculados pelo modelo, para estimar o número de varetas combustíveis defeituosas. O processo de transporte nesse modelo admite dois fenômenos físicos: a difusão e a convecção.
- (3) O modelo desenvolvido por Lewis <sup>43,44</sup> trata a liberação dos Gases Nobres e do Iodo dos elementos combustíveis no estado estacionário, considerando o processo cinético e o

difusivo. Para ambos os casos o modelo assume uma liberação difusiva na pastilha combustível. O transporte dos produtos de fissão para o gap é representado por uma constante cinética de primeira ordem ou por uma constante de difusão. Na liberação para o fluido refrigerante, o modelo possui uma taxa de escape e um coeficiente de difusão constante.

- (4) O modelo de Morrison<sup>45</sup> trata a liberação dos produtos de fissão para o fluido refrigerante através de um processo difusivo considerando uma esfera como modelo, em um intervalo de tempo específico. Ele utiliza-se de parâmetros difusivos característicos do combustível analisado na condição de queima máxima do combustível.

### 1.3 TERMO-FONTE

O cálculo do termo-fonte é baseado no modo de operação de reatores que podem operar em regime estacionário ou intermitente. No regime estacionário não há variação de potência desde o início até o final da operação, e qualquer variação é considerada muito pequena em relação ao período total de operação da planta (cerca de 15 meses).

O regime operacional intermitente ou variável no tempo, influencia diretamente no "burnup" (queima) do combustível e, conseqüentemente, no termo-fonte do fluido refrigerante do primário do reator. A Figura 1 apresenta esquematicamente o perfil de operação de reatores de forma contínua e intermitente.

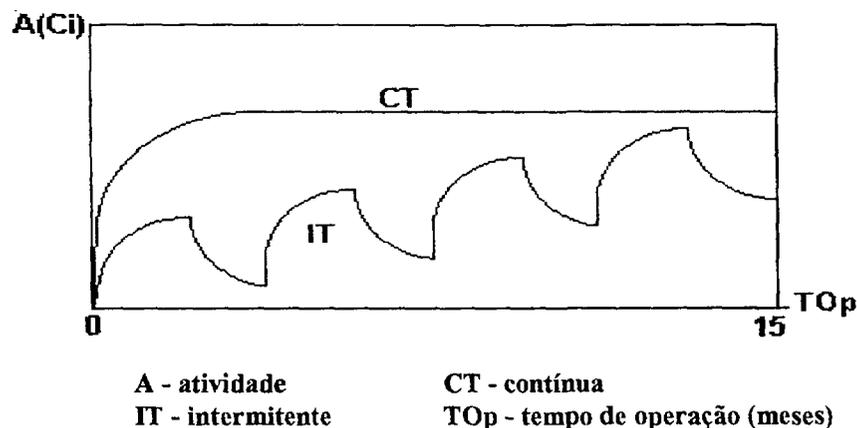


Figura 1: Perfis de Operação de Reatores

Portanto, o termo-fonte desses reatores de será analisado levando-se em consideração o comportamento dos produtos de fissão no fluido refrigerante do primário em função do tempo de operação da planta, ou seja, a variação do termo-fonte em função da potência e do tempo de operação do reator.

Para uma análise mais direcionada do termo-fonte, as considerações à respeito dos produtos de fissão não serão aplicadas a todos os produtos de fissão gerados no combustível, ou seja, haverá uma seleção prévia dos principais produtos de fissão segundo suas importâncias individuais ou por gerarem outros importantes núclídeos ao termo-fonte. Caso não sejam feitas essas considerações, a quantidade de produtos de fissão a ser tratada será muito grande e isso dificultará o manuseio de dados e tornará o processamento e a lógica computacional extensa e muito complexa.

## TERMO-FONTE

A seleção dos produtos de fissão ou nuclídeos estudados nesse trabalho é baseada na norma ANSI-ANS 18.1 (1984) <sup>6</sup>, a qual relaciona em classes e seleciona os principais nuclídeos no termo-fonte de acordo com suas propriedades e características físico-químicas. As classes e os grupos de nuclídeos selecionados nessa norma são os seguintes:

Tabela 1: PRINCIPAIS NUCLÍDEOS PRESENTES NO TERMO-FONTE <sup>6</sup>.

CLASSES	GRUPOS	NUCLÍDEOS
1	GASES NOBRES	Kr85m/Kr85/Kr87/Kr88/Xe131m/Xe133m/Xe133/Xe135m/Xe135/Xe137/Xe138
2	HALOGÊNIOS	Br84/I129* /I131/I132/I133/I134/I135
3	METAIS ALCALINOS	Rb88/Cs135/Cs136/Cs137
4	OUTROS	Sr89/Sr90/Sr91/Y91m/Y91/Y93/Zr95/Nb95/Mo99/Tc99m/Ru103/Ru106/Ag110m/ Te129m/Te129/Te131m/Te131/Te132/Ba140/La140/Ce141/Ce143/Ce144

\* Incluído devido sua importância radiológica.

O tratamento desses nuclídeos seguirá uma ordem de cálculo representada em linhas gerais pelo fluxograma ilustrativo da Figura 2:

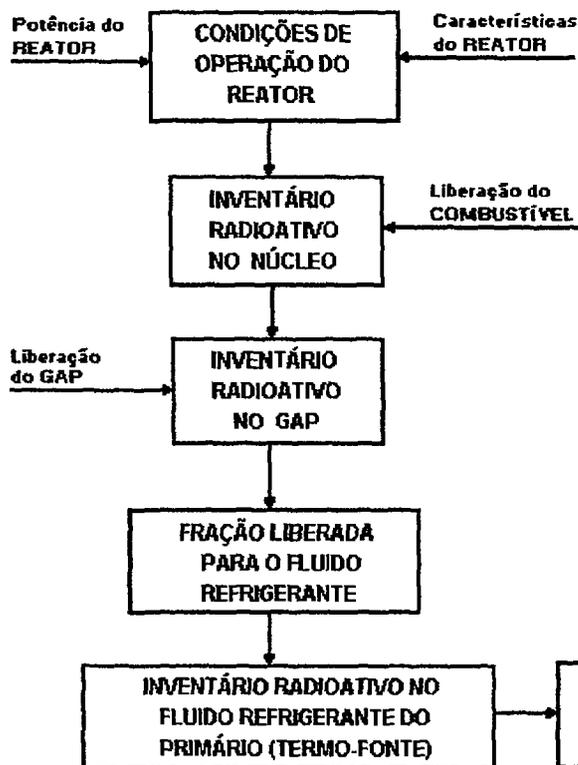


Figura 2: Fluxograma Ilustrativo do Cálculo do Termo-Fonte no Fluido Refrigerante do Primário.

Observa-se na figura 2 que os produtos de fissão gerados no combustível passam para o gap e chegam até o fluido refrigerante do primário. Isso acontece devido as taxas de liberações dos núclídeos do combustível para o gap e do gap para o refrigerante. Esses eventos de liberações ocorrem de forma sequencial e simultânea, e podem ser identificados como fatores de acoplamento das equações de balanço entre regiões, definidas pelo combustível ( $UO_2$ ), gap e fluido refrigerante. O evento de liberação dos produtos de fissão para o refrigerante só ocorre quando há o rompimento, falha ou fissura do revestimento da vareta combustível.

A primeira parte do evento de liberação, geração dos produtos de fissão no combustível, é facilmente determinada através de ferramentas como os códigos computacionais já estabelecidos, que podem executar essa tarefa muito rapidamente sem grandes problemas.

Para a segunda e a terceira etapa do evento de liberação sequencial, o inventário radioativo no gap e no fluido refrigerante, não é facilmente encontrado em qualquer referência, principalmente um código de computador específico que possa executar esse tipo de cálculo, ou seja, que considere a ocorrência simultânea dessas etapas.

Em geral, o que se faz para determinar o termo-fonte no fluido refrigerante do primário de um reator nuclear é aplicar os códigos de queima de combustível, como os citados anteriormente, na planta analisada, considerando seu equilíbrio operacional e multiplicar o inventário radioativo produzido no combustível desse reator por um fator probabilístico considerado como índice de falha. Esse fator corresponde à fração de varetas do núcleo desse reator que geram as maiores potências no núcleo e que por algum motivo estejam danificadas <sup>4</sup>.

Assim, um modelo para determinar o termo-fonte que englobe as três etapas simultaneamente dos eventos de liberações, considerando a variação da potência com o tempo de operação, será feito utilizando a lógica computacional e a estrutura de dados do código CINDER-2.

A opção por utilizar o código computacional CINDER-2 foi por sua versatilidade, simplicidade e por corresponder as expectativas dos cálculos envolvidos nas etapas dos eventos de liberações sequenciais, principalmente a que corresponde a geração dos produtos de fissão no combustível.

O cálculo do termo-fonte no fluido refrigerante do primário utiliza equações de balanço radioativo que correspondem ao comportamento distinto do núclídeo envolvido nas três etapas do evento de liberação sequencial que correspondem à:

- (1) EQUAÇÃO NO NÚCLEO
- (2) EQUAÇÃO NO GAP
- (3) EQUAÇÃO NO REFRIGERANTE

Com relação as equações citadas, pode-se dizer:

- (a) a primeira determina o inventário no núcleo;
- (b) a segunda, relacionada com a primeira, determina o inventário do gap;
- (c) a terceira, relacionada com a segunda que incorporou a primeira, é utilizada para determinar o termo-fonte no fluido refrigerante do primário.

Mediante as necessidades metodológicas decorrentes do surgimento das duas novas equações, modificações metodológicas serão feitas no código CINDER-2, o que decorrerá na geração de um novo código computacional que será denominado de TFP (Termo-Fonte Produtos de fissão), que determinará o inventário radioativo para reatores nucleares durante suas operações. Em linhas gerais, esse código será a aplicação da solução da equação de balanço radioativo no fluido refrigerante para os núclídeos especificados na Tabela 1.

A verificação da consistência dos valores numéricos do termo-fonte determinado por esse novo código será feita avaliando-se o comportamento dos produtos de fissão no combustível, no gap e no fluido refrigerante do primário, levando-se em consideração a variação da potência durante o tempo de operação do reator, comparando os valores obtidos com dados reais, medidos durante a operação da planta. Sempre utilizando os parâmetros operacionais do reator analisado.

#### 1.4 OBJETIVO E DIVISÃO DO TRABALHO

O trabalho tem por objetivo estabelecer uma metodologia de cálculo para determinar o termo-fonte operacional no fluido refrigerante do primário de um reator nuclear, ou seja, determinar o inventário radioativo de acordo com a variação da potência durante o tempo de operação desse reator, considerando os efeitos dos produtos de fissão gerados no combustível e que escapam para o gap e daí para o fluido refrigerante devido as falhas nas varetas combustíveis.

O tratamento matemático da geração dos produtos de fissão no combustível, no gap e no refrigerante do primário será executado pelo código computacional TFP, que utiliza o princípio de cálculo do código CINDER-2<sup>31</sup>. Desta forma, os produtos de fissão selecionados (Ver Tabela 1) serão tratados de forma explícita através de cálculos iterativos de acoplamento de cadeias lineares.

Para se chegar ao objetivo principal do trabalho, analisar os efeitos e determinar o termo-fonte dos produtos de fissão no refrigerante do primário, é necessário que as seguintes etapas sejam executadas:

- (1) estudo do problema de transmutação nuclear na forma de equações de transmutação e cadeias lineares;
- (2) elaboração de um novo conjunto de cadeias lineares de produtos de fissão em função dos estudos e avaliações preliminares;
- (3) elaboração de uma nova biblioteca de dados para os produtos de fissão que serão analisados pelo código TFP;
- (4) modificar o programa fonte do CINDER-2 com o objetivo de criar o TFP;
- (5) definir e implementar as taxas de liberação para os produtos de fissão no conjunto núcleo-gap-refrigerante;
- (6) execução do código TFP para determinar o termo-fonte do fluido refrigerante do primário.

Como meta final e conclusiva, fazer a validação da metodologia estabelecida e implementada no código TFP. Essa metodologia terá os seguintes procedimentos a serem executados.

- (1) execução dos cálculos do termo-fonte no refrigerante do primário pelo código TFP utilizando os dados de entrada do CINDER-2, com a finalidade de checar a lógica do novo programa;
- (2) comparação dos valores do termo-fonte de um reator de grande porte considerando seu índice de falha e os parâmetros operacionais empregados quando foram feitas as medidas do inventário radioativo nesse reator;
- (3) simulação da operação de um reator tipo PWR com o código TFP, empregando os parâmetros operacionais e de projeto desse reator e comparação com os valores encontrados nas bibliografias a seu respeito, como a unidade SURRY-1 (Reator americano de 2544 MWt).

A divisão desse trabalho é feita em cinco (5) capítulos, que são:

- **CAPÍTULO 1 - INTRODUÇÃO**

Parte introdutória sobre a importância do termo-fonte, seu histórico e conceito sobre o termo-fonte.

- **CAPÍTULO 2 - PRODUTOS DE FISSÃO**

Abordagem teórica e descritiva a respeito da importância dos produtos de fissão no termo-fonte, equacionamento do problema que dará origem ao modelo proposto e parâmetros necessários para a determinação dos inventários radioativos dos produtos de fissão no fluido refrigerante do primário.

- **CAPÍTULO 3 - Os CÓDIGOS CINDER-2 E TFP**

Apresentação das mudanças executadas no código CINDER-2 e implementações efetuadas para criar o código TFP.

● **CAPÍTULO 4 - RESULTADOS**

Verificar a consistência dos cálculos efetuados pelo código TFP devido as abordagens matemáticas estabelecidas e ao modelo implementado.

Comparar o termo-fonte estabelecido durante a operação de um reator de potência com o termo-fonte calculado pelo código TFP, para o mesmo reator, considerando a sua forma de operar durante o tempo de vida útil do núcleo.

● **CAPÍTULO 5 - CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES**

A partir da verificação da consistência dos cálculos envolvidos no modelo matemático, aplicado na análise do transporte dos produtos de fissão para o gap e para o fluido refrigerante, e das comparações feitas entre o termo-fonte medido e o calculado, concluir a respeito das atividades dos núclídeos individualmente, por grupo, por classes e na planta.

Conclusões sobre a utilização do código TFP, seu uso, sua abrangência e versatilidade.

Recomendações à respeito do código TFP, novos avanços em suas bibliotecas de dados, da geração e difusão do trítio, produtos de corrosão ativados e das implementações a serem feitas futuramente

## 1.5 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 1

- /1/ REACTOR SAFEGUARS COMMITTEE, AEC; Summary Report of Reactor Safeguards Committee, March 1950 (WASH-3 Rev.).
- /2/ Theoretical Possibility and Consequences of Major Accidents in Large Nuclear Power Plants. Division of Civilian Application. AEC, March 1957 (WASH-740).
- /3/ FINAL ENVIRONMENT STATEMENT CONCERNING PROPOSED RULE MAKING ACTION: Numerical Guides for Design Objectives and Limiting Conditions, Volume 2, Analytical Models, July 1968 to July 1973, 450p., UNCLAS (WASH-1258 vol.2).
- /4/ WESTINGHOUSE E. Co.; Source Term Data for Westinghouse Pressurized Water Reactors, Pennsylvania, July 1973, WCAP-8253 revised.
- /5/ AMERICAN NATIONAL STANDARD; Source Term Specification, American National Standards Instituto. INC, May 1976 (ANS 18.1/N237 - 1976).
- /6/ AMERICAN NATIONAL STANDARD; Source Term Specification, American National Standards Instituto. INC, (ANSI/ANS 18.1 -1984).
- /7/ BERAHA, R. et al; Fuel Survey in the Light Water Reactors Based on the Activity of the Fission Products, Nuclear Technology, Fuel Cycles, 49 (426) 1980.
- /8/ INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY; Coolant Technology of Water Cooled Reactors, Volume 3, IAEA-TECDOC-667, October 1992.
- /9/ TRIPLETT, J. R; Reactivity Changes and Isotope Yields at High Exposures, Hanford Atomic Products Operation, HW-33912 (Jan., 1955).
- /10/ BENEDICT, Manson ; PIGFORD, Tomas H.; LEVI, Hans Wolfgang; Nuclear Chemical Engineering, Second Editions, McGraw-Hill, Book Company.
- /11/ BRESLAUER, S. K. and KARRIKER, F. P.; Isotopic History Trace, General Electric Company, XDC-60-3-211 (1960).

- /12/ MARLOWE, O. J. and OMBRELLO, P. A.; CLAND - A One Dimensional Few-Group Depletion Code for the IBM-704, Bettis Atomic Power Laboratory, WAPD-TM-53 (May, 1957).
- /13/ HOFFMAN, G. W.; One Dimensional Few Group Burnout Code - Isotopic Density Equations, Bettis Atomic Power Laboratory, WAPD-TM-2 (April, 1956).
- /14/ MARLOWE, O. J.; Nuclear Reactor Depletion Program for the Philco-2000 Computer, Bettis Atomic Power Laboratory, WAPD-TM-221 (Jan., 1981).
- /15/ CALLAGHAN, et. al., TURBO - A Two Dimensional Few Group Depletion Code for the IBM-704, Bettis Atomic Power Laboratory, WAPD-TM-95 (Nov., 1957).
- /16/ CALDWELL, W. R., BERENGER, P. F. and PFEIFER, C. J.; The PDO-5 and PDO-6 Programs for the Solution of the Two Dimensional Neutron Diffusion-Depletion Problem, Bettis Atomic Power Laboratory, WAPD-TM-477 (Jan., 1955).
- /17/ PFEIFER, C. J.; ZIP-2 - Synthesis Depletion Program, Bettis Atomic Power Laboratory, WAPD-TM-228 (Nov., 1961).
- /18/ FLANAGAN, C. A.; INT-2 - A Three Dimensional Neutron Flux Synthesis and Depletion Calculation Computer Program, Bettis Atomic Power Laboratory, WAPD-TM-468 (1964).
- /19/ McCARTY, D. S.; DRACO - A Three Dimensional Few-Group Depletion Code for the IBM-704, Bettis Atomic Power Laboratory, WAPD-TM-137 (Dec., 1958).
- /20/ LIETZE, M. P., et. al.; CRUNCH - An IBM-704 Code for Calculating N Successive First Order Reactions, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-2958 (Nov., 1960).
- /21/ FRIEND, C. W. and KNIGHT, J. R.; ISOCRUNCH - Modification to the CHUNCH Program for the IBM-704, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-3689 (1961).
- /22/ TRIPLETT, J. R., et. al.; The RBU Burnup Code: Formulation and Operating Procedures, HW-70049 (July, 1961).
- /23/ VONDY, D. R.; Development of a General Method of Explicit Solution to the Nuclide Chain Equation for Digital Machine Calculations, ORNL-TM-361 (Oct., 1962).

- /24/ VONDY, D. R. and FOWLER, T. B.; Computer Code TONG for Zero Dimensional Reactor Depletion Calculations, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-TM-1633 (June, 1967).
- /25/ ENGLAND, T. R.; CINDER- A One-Point Depelition and Fission Product Program, Westinghouse Eletric Corporation, report WAPD-TM-334 (1962, Rev.1964).
- /26/ BELL, M. J.; ORIGEN - The ORNL Isotope Generation and Depletion Code, Oak Ridge National Laboratory, ORNL-4628 (May, 1973).
- /27/ GUMPRECHT, R. O; Mathematical Basis for RIBD, Douglas United Nuclear, DUN-4136 (June, 1968).
- /28/ TASAKA, K.; DCHAIN2: A computer Code for Calculation of Transmutation of Nuclides, Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI-M-8727 (March, 1980).
- /29/ TASAKA, K.; DCHAIN: Code for Analysis of Buildup and Decay of Nuclides, Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI-1250 (March, 1977).
- /30/ TASAKA, K. and SASMATO, Nobuo; FP-S: Program for Calculation of Atomic Density for each Fission Product Nuclide, Japan Energy Research Institute, JAERI-1198 (Dec., 1970).
- /31/ MARR, D. R.; A Users Manual for Computer Code RIBD-II, A Fission Product Inventory Code, Hanford Engineering Dvelopment Laboratory, HEDL-TME-75-26 (1975).
- /32/ WILSON, W. B.; ENGLAND, T. R.; LABAUVE, R. J.; BATTI, M. E.; WESSOL, D. E.; PERRY, R. T.; Status of Cinder and ENDF/B-V Basead Libraries for Transmutation Calculations, IN: Proc. Conf. Waste Transmutation; Austin, TX. July 22-24, 1980 (March 1981), p.673.
- /33/ NAKAJIMA, T., FEMAXI-IV: A computer Code for Analysis of Fuel Rod Behaviour Under transient Conditions, North-Holland, Amsterdan, Nucl. Eng. and Des., 88(1985) 69-84.
- /34/ NAKAJIMA, T., and SAITO, H.; 5<sup>th</sup> SMIRT Seminar, Harwell (1985).
- /35/ GARDINI, M., RONCHI,C.; Transport and Release of Radioactivie Fission Products in Nuclear Fuels: The New Analitical Method of the MITRA Code, Nuclear Science Engenering, 107, (1991) 315

- /36/ *Water Reactor Fuel Behaviour and Fission Products Release in Off-Normal and Accident Conditions*, IAEA, Vienna, 1987, IWGFPT/27.
- /37/ BESLU, P., LEUTHROT, C., FREJAVILLE, G.; *PROFIP Code: An Model to Evaluetad the Release of Fission Products from a detected Fuel in PWR*, IAEA, Specialising Meeting, Chalk River, Nucl. Lab., IWGFPT/6, September (1979), 23,28.
- /38/ BARTA, O., BENA, J., KAPISOVSKÝ, V.; *Simple Checking Method of the Fuel Rods at the Core of the Power Reactor During the Irradiation*, Report UJV-7382M, Jan. (1985).
- /39/ BARTA, O. et al; *Evaluation od the Cladding Integrity on the Basic of the Irradiation Set-up Materials for Water Reactor Fuel Elements and Method of Measurement*, IAEA, Tech. Committee Meeting, Vienna, Oct. (1986).
- /40/ LOCKE, D. H.; *Ramifications of the Presence of Defected Fuel on LWR Power Reactor Operation*, IAEA, Specialising Meeting, Chalk River, Nucl. Lab., IWGFPT/6, September (1979), 225-234.
- /41/ BOURGEOIS, P.; *Ph. D. Thesis*, FRNC-Th-912, Univ. Strassbourg, 1979.
- /42/ KALFSBEEK, W. H.; *Theabundance of Fission Gasses in the Off-Gas of a Boiler Water Reacto*, Nucl. Techn. 62, July (1983), 7-21.
- /43/ LEWIS, B. J., PHILLIPS, C. R., NOTLEY, M. J. F.; *An Model for the Release of Radiactive Krypton, Xenon and Iodine from Defective UO<sub>2</sub> Fuel Elements*, Nucl. Techn. 73, April (1986), 72-83.
- /44/ LEWIS, B. J.; *Fission Products Release from Defected Nuclear Reactor Fuel Elements*, Ph. D. Thesys, Univ. of Toronto, (1983).
- /45/ MORRISON, D. L. et ali ; *AnEvaluationof the Aplicatibility of Existing Data ofthe Analitical Description of Nuclear-Reacto Accident*, BMI-1856, Barttelle Memorial Institute (1969).

## CAPÍTULO 2

- 2.1 INTRODUÇÃO
- 2.2 GERAÇÃO DOS PRODUTOS DE FISSÃO
- 2.3 LIBERAÇÃO DOS PRODUTOS DE FISSÃO DO COMBUSTÍVEL
- 2.4 ATIVIDADES DOS PRODUTOS DE FISSÃO NO REFRIGERANTE
- 2.5 MODO DE FALHA DA VARETA COMBUSTÍVEL
- 2.6 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 2

## 2.1 INTRODUÇÃO

A operação de um reator nuclear depende fundamentalmente do modo como os neutrons interagem com a matéria. Os processos relacionados com o nascimento e o desaparecimento dos neutrons são os mais importantes entre todos, pois a sustentação da reação em cadeia no núcleo do reator depende de um balanço detalhado entre a produção e o desaparecimento dos neutrons nesse núcleo. O desaparecimento dos neutrons do núcleo do reator ou simplesmente remoção de neutrons é resultado em grande parte de uma reação de absorção, sendo, uma das mais importante a *captura radiativa*. O produto dessa reação é a radiação gama ( $\gamma$ ), devido a reação ser do tipo  $(n,\gamma)$ .

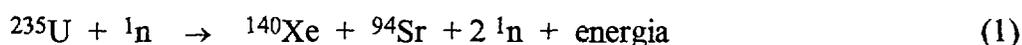
O processo de nascimento ou produção de neutrons é ocasionado pela reação de *fissão*. Nesse processo, um neutron interage com um núcleo pesado (como o U-235), gerando dois ou mais neutrons, dois grandes fragmentos e considerável liberação de energia <sup>1</sup>.

Os fragmentos que surgem na fissão são chamados de produtos de fissão. Esses produtos de fissão são gerados em quantidades consideráveis e quando liberados para o fluido refrigerante do primário do reator podem causar um risco de contaminação do ambiente, interno ou externo ao prédio do reator. Por esse motivo, é necessário que se faça uma quantificação dos produtos de fissão gerados no núcleo desse reator.

A formação dos produtos de fissão no núcleo do reator é uma função crescente do nível de potência na qual o reator opera, do tempo de exposição do combustível ao fluxo de neutrons, e conseqüentemente, da energia total produzida pelo combustível. Nos primeiros reatores que operavam em uma potência relativamente baixa com baixos níveis de exposição do combustível, a quantidade de produtos de fissão formados não era muito grande. Hoje, com reatores mais modernos e operando em um elevado nível de potência e grande tempo de exposição do combustível, a quantidade de produtos de fissão gerados no núcleo desses reatores é muito maior <sup>2</sup>.

## 2.2 GERAÇÃO DOS PRODUTOS DE FISSÃO

Os produtos da reação de fissão de núclídeos actinídeos, como o Urânio-235, com o neutron são em média 2,4 neutrons, dois (2) núclídeos (fragmentos de fissão), raios gamas e neutrinos. O evento da reação do neutron com o núcleo pesado envolvido não depende só das propriedades das partículas que reagem mas também da energia com que elas colidem, pois é necessário que seja vencida a barreira da fissão para que o núcleo pesado venha a fissionar <sup>3</sup>. Há poucos núcleos pesados que podem ser induzidos a fissionar, alguns com os neutrons de qualquer energia denominados de núcleos fisséis (<sup>233</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu e <sup>241</sup>Pu) e outros com os neutrons de alta energia denominados de fissionáveis (<sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th e <sup>240</sup>Pu). Um exemplo de uma reação de fissão é mostrado a seguir:



A reação em cadeia é perpetuada pelos neutrons que surgem da fissão e geram cerca de 200 Mev de energia em cada fissão, devido à energia cinética dos fragmentos de fissão, neutrons e outras partículas. A energia cinética é dissipada como calor quase que instantaneamente. Os produtos da reação interagem com o meio ao redor produzindo ionização e excitação molecular e atômica. Os fragmentos de fissão são responsáveis por cerca de 83% da energia produzida no núcleo do reator. Suas energias cinéticas são dissipadas em uma distância de vários microns ( $\mu\text{m}$ ) do local onde ocorreu a fissão <sup>2</sup>.

Os fragmentos de fissão podem ter número de massa entre 72 e 160 e podem ser divididos em dois grupos: o grupo dos fragmentos leves com número de massa entre 80 e 110 e o grupo dos fragmentos pesados com número de massa entre 125 e 155 <sup>2</sup>.

Cerca de 80 fragmentos de fissão produzem cadeias de decaimento radioativo características, resultando em sucessivas emissões de partículas betas ( $\beta^-$ ). Esse decaimento é a forma mais predominante de emissão de partículas betas seguidas pela emissão de um ou mais raios gamas. Devido a essas emissões, cerca de 200 produtos de fissão diferentes passam a existir em um reator nuclear. O termo *produtos de fissão* é usado para definir tanto os núclídeos gerados pela fissão (fragmentos de fissão) como pelo decaimento radioativo (produtos de decaimento radioativo) <sup>2</sup>.

Os produtos de fissão são gerados em uma quantidade específica para cada núcleo pesado fissionado, ou seja, é a probabilidade de formação de um dado núclídeo na fissão ou numa dada cadeia

de decaimento radioativo. Essa probabilidade de formação é denominada de "yield de fissão" ou simplesmente "yield". O yield é função do núcleo a ser fissionado e da energia do neutron incidente e é sempre expresso pela porcentagem de ocorrência desse nuclídeo pelo seu número de massa. Cada núcleo fissil ou fissionável possui sua curva característica de yield e cada fragmento de fissão possui seu yield de fissão característico <sup>1</sup>. A Figura 3 apresenta um exemplo característico da porcentagem de formação de produtos de fissão.

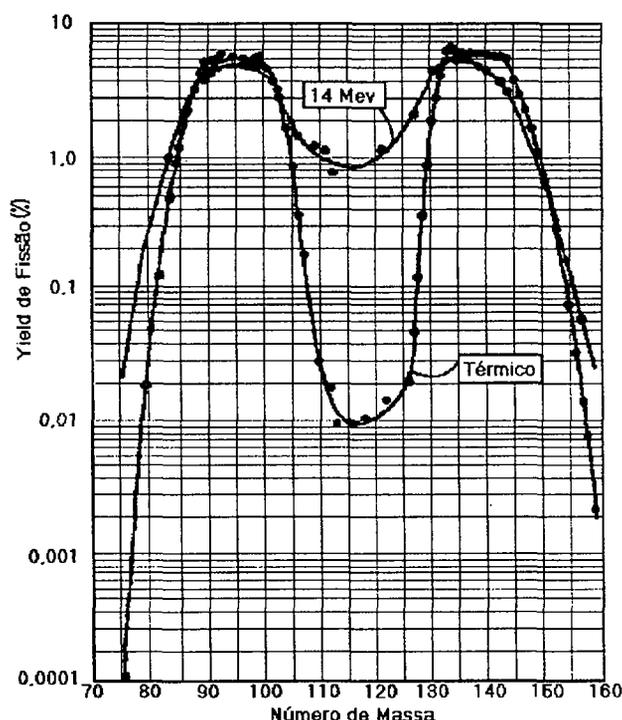


Figura 3: Curvas Características do Yield de Fissão em Função do Número de Massa <sup>4</sup>.

Para fazer uma análise dos produtos de fissão sob o ponto de vista da transmutação nuclear é necessário um tratamento matemático do processo físico, com a finalidade de descrever os aspectos envolvidos na reação de fissão. Esse tratamento matemático basea-se na produção e destruição dos produtos de fissão gerados no combustível de um reator nuclear durante a operação. A equação de balanço radioativo (produção e destruição) de um certo nuclídeo Ni é dado por <sup>4</sup>:

$$\frac{dN_i}{dt} = P - R \quad (2)$$

onde:

$N_i$  - concentração do nuclídeo  $i$ .

$P$  - modos de produção do nuclídeo  $i$ .

$R$  - modos de destruição (remoção) do nuclídeo  $i$ .

Para melhor descrever os processos de produção e destruição do nuclídeo analisado, tomemos como representação esquemática da transmutação nuclear desse nuclídeo a Figura 4.

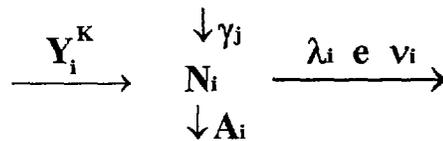


Figura 4: Ilustração do Processo de Produção e Destruição de um Nuclídeo  $N_i$ .

O termo  $Y_i^K$  é a taxa de produção do nuclídeo  $N_i$  via fissão, função do yield do nuclídeo fissil ou fissionável  $K$  em um dado nível de energia do neutron. Esse termo é um dos fatores mais importantes para a análise de transmutação, pois representa a formação do nuclídeo  $i$  via reação de fissão e caracteriza a ocorrência do mesmo como função da energia (velocidade) do neutron incidente no núcleo fissil ou fissionável em questão <sup>4</sup>. O termo  $\gamma_j$  representa a produção do nuclídeo  $N_i$  devido a reação de captura do tipo  $(n,\gamma)$  ou decaimento radioativo do nuclídeo  $N_j$ . O termo  $A_i$  representa a destruição do nuclídeo  $N_i$  devido a absorção de neutrons, o termo  $\lambda_i$  é a destruição do nuclídeo  $N_i$  devido ao seu decaimento radioativo e o termo  $\nu_i$  representa a remoção do nuclídeo  $N_i$  devido a sua taxa de liberação do sistema.

Como pode ser verificado na Figura 4 e descrito no parágrafo anterior, o comportamento do nuclídeo  $N_i$  pode ser aplicável a todos os nuclídeos de uma forma geral. Assim sendo, os termos que representam a produção ( $\gamma_j$  e  $Y_i^K$ ) para o nuclídeo  $N_i$ , significam perda para o nuclídeo  $N_j$ , ou seja, houve a formação do nuclídeo  $N_i$  devido as destruições do nuclídeo  $N_j$ . De outra forma, as destruições do nuclídeo  $N_i$  atual representam a geração de um novo nuclídeo  $N_{i+1}$ . Se esses acontecimentos ocorrem de forma simultânea, haverá uma ligação direta entre todos os nuclídeos envolvidos nessas produções e perdas. Essa ligação é definida como acoplamento entre os nuclídeos. Esse acoplamento será representado na equação de balanço radioativo pelo símbolo  $(\gamma)$ . A produção por fissão é fruto do

fissionamento de vários núcleos fisséis ao mesmo tempo e em decorrência desse evento haverá o processo de transmutação nuclear.

Fundamentado nesses aspectos, pode-se agora definir uma equação de balanço radioativo para o nuclídeo Ni que incluirá todos os efeitos ocorridos a esse nuclídeo durante o processo de queima do combustível no núcleo do reator, mais especificamente na pastilha combustível (ci), então a equação será:

$$\frac{dN_{ci}}{dt} = \sum_k Y_{ci}^k \cdot S + \sum_j \gamma_{ci}^j \cdot N_j - \lambda_{ci} \cdot N_{ci} - A_{ci} \cdot N_{ci} - \nu_{ci} \cdot N_{ci} \quad (3)$$

Os termos da equação que representam as probabilidades de destruição do nuclídeo Ni no combustível ( $\lambda_{ci}$ ,  $A_{ci}$  e  $\nu_{ci}$ ), podem ser expressos de uma forma mais simplificada, através de uma única variável que é:

$$\beta_{ci} = \lambda_{ci} + A_{ci} + \nu_{ci} \quad (4)$$

Inserindo a eq.(4) que representa as destruições ( $\beta_{ci}$ ) do nuclídeo Ni no combustível, na eq. (3) que representa todas as transformações sofridas por esse nuclídeo no combustível, tem-se uma equação de balanço radioativo genérica para representar todas as transformações sofridas por todos os nuclídeos presentes na pastilha combustível, sendo:

$$\frac{dN_{ci}}{dt} = \sum_k Y_{ci}^k \cdot S + \sum_j \gamma_{ci}^j \cdot N_j - \beta_{ci} \cdot N_{ci} \quad (5)$$

### 2.3 LIBERAÇÃO DOS PRODUTOS DE FISSÃO DO COMBUSTÍVEL (UO<sub>2</sub>)

O escape dos produtos de fissão do combustível de um reator é fundamentado em três aspectos principais: o seu inventário radioativo (dependente do yield de fissão, cadeia de decaimento, meia-vida e o modo de operação do reator), as propriedades físicas, incluindo a natureza da radioatividade e volatilidade e as propriedades químicas de cada nuclídeo. Alguns nuclídeos (pai) passam a ser importantes devido as características radioativas de um determinado nuclídeo (filho) da cadeia, o qual é gerado depois do precursor (pai) ter escapado do combustível.

Os produtos de fissão gerados no combustível (UO<sub>2</sub>) são transportados por vários mecanismos e acumulam-se nos espaços abertos no interior do combustível, no gap ou depositam-se nas paredes internas do revestimento (cladding) das varetas. No entanto, esses produtos de fissão podem sofrer um grande número de interações químicas dependendo das suas concentrações, características químicas e natureza termoquímica do ambiente, antes de haver uma ruptura no revestimento.

Entre os vários fatores que afetam o combustível e os produtos de fissão quimicamente o que mais se destaca é o potencial químico do oxigênio, caracterizado como a medida da disponibilidade do oxigênio para as reações químicas que ocorrem dentro do combustível. O potencial químico do oxigênio no combustível geralmente eleva-se (o valor passa a ser mais positivo) com a elevação da temperatura ele sofre grande mudança no seu valor próximo ao valor estequiométrico (1 átomo de Urânio para 2 átomos de Oxigênio, O/U = 2,000). O potencial químico do oxigênio no combustível pode mudar consideravelmente com o decorrer da queima, devido a reação do oxigênio com os produtos de fissão gerados <sup>5</sup>.

As formas químicas dos produtos de fissão no combustível dependem das propriedades dos elementos formados na fissão. Alguns nuclídeos como: o Iodo-I e o Césio-Cs são ativos quimicamente, enquanto que outros como os gases nobres Kriptônio-Kr e Xenônio-Xe são inertes quimicamente. No entanto, elementos de todos os grupos da tabela periódica são formados na fissão <sup>5,6</sup>.

Como resultado das considerações acima, pode-se estimar que as reações químicas no combustível são numerosas e complexas e podem ser rapidamente alteradas pelo ambiente termoquímico do combustível. O comportamento dos produtos de fissão no combustível pode ser simplificado conservando suas características químicas de acordo com suas reatividades com o oxigênio existente no combustível (UO<sub>2</sub>) e seus estados físicos, o que permite fazer um arranjado distinto em sete grupos ou famílias de produtos de fissão <sup>5,6,7</sup>, que são:

- 1 - Gases Nobres (Kr e Xe)
- 2 - Halogênios (Br e I)
- 3 - Metais Alcalinos (Rb e Cs)
- 4 - Calcogênios (Te e Se)
- 5 - Alcalinos Terrosos (Sr e Ba)
- 6 - Metais Nobres (Ru, Mo, Rh, Tc e Ag)
- 7 - Terras Raras (Ce, Pr, La, Y, Zr e Nb)

As propriedades químicas dos produtos de fissão distribuídos no combustível influenciam na determinação das taxas de liberação desses elementos do combustível. Algumas características químicas, físico-químicas e radioquímicas serão descritas a seguir com o intuito de fornecer um resumo informativo a respeito das propriedades de cada grupo de elementos:

- (1) GASES NOBRES: Os isótopos do Xenônio-Xe e do Kriptônio-Kr constituem uma fração substancial dos produtos de fissão. Por serem inertes quimicamente e seu estado físico ser o gasoso, os núclídeos desse grupo estão entre os que escapam mais rapidamente do combustível <sup>5,6</sup>;
- (2) HALOGÊNIOS: Os mais importantes halogênios são o Bromo-Br e o Iodo-I. Nesse grupo o que mais se destaca é o Iodo, devido os seus isótopos serem importantes contribuidores da exposição de pessoal. Os halogênios escapam do combustível na forma gasosa por serem altamente voláteis, constituindo também uma grande fração dos produtos de fissão <sup>5,6</sup>;
- (3) METAIS ALCALINOS: Somente dois metais alcalinos são formados em quantidades significativas como produtos de fissão, o Rubídio-Rb e o Césio-Cs. O Césio é muito mais importante que o Rubídio por causa do seu yield de fissão e meia-vida. O césio escapa do combustível pelo processo de difusão atômica na forma de íons, e semelhante a ele o rubídio <sup>5,6,7</sup>;
- (4) CALCOGÊNIOS: Existem vários outros produtos de fissão nesse grupo, entretanto os que mais se destacam são os isótopos do Telúrio (Te) por terem yield de fissão muito grande, meias-vidas longas, importantes produtos de decaimento (como o Iodo) e serem contribuidores em potencial dos produtos de fissão que possuem meias-vidas longas <sup>5,6,7</sup>;
- (5) ALCALINOS TERROSOS: Os núclídeos Estrôncio-Sr e o Bário-Ba são classificados como os mais importantes alcalinos terrosos gerados na fissão, geralmente eles reagem com o oxigênio do combustível e formam óxidos bastante estáveis, e nessa forma são liberados do combustível em pequenas quantidades <sup>5,6,7</sup>;

- (6) METAIS NOBRES: Os nuclídeos classificados como metais nobres, podem, assim como as terras raras, formar óxidos e serem liberados do combustível nessa forma <sup>5,6,7</sup>;
- (7) TERRAS RARAS: Os nuclídeos conhecidos como terras raras possuem baixa volatilidade e grande estabilidade química quando na forma de óxido, e são liberados do combustível em quantidades muito pequenas <sup>5,6,7</sup>

Em decorrência dessas e de muitas outras propriedades, vários institutos de pesquisa tentaram ao longo dos anos modelar a quantidade de produtos de fissão que eram liberados do  $UO_2$  e acumulavam no gap das varetas combustíveis durante a operação do reator. A conclusão obtida dos vários estudos realizados sobre as taxas de escape dos produtos de fissão do  $UO_2$ , foi a obtenção de modelos computacionais que estimavam a magnitude dessas taxas de escape segundo modelos de migração atômica <sup>6,8,9,10</sup>

A determinação dessas taxas consideraram isótopos particulares dentro de cada grupo característico, levando-se em consideração as propriedades químicas e a importância radiológica de cada elemento. Para esse trabalho o modelo a ser utilizado será o definido por Jae-Choon YANG <sup>11</sup>.

O modelo de Yang calcula a liberação dos produtos de fissão para o gap mediante análise cinética dos fenômenos envolvidos nesse processo. A escolha desse modelo foi feita devido a metodologia de cálculo empregada para a queima do combustível ser bastante semelhante a que o código Cinder-2 utiliza <sup>8</sup>, e passa a ser utilizada também pelo código TFP.

O modelo definido por Yang apresenta três formas de liberação dos produtos de fissão do combustível para o gap, que são: **Recuo**, **Knockout** e **Migração**. Essas formas de liberação dependem fundamentalmente da quantidade de nuclídeo Ni produzida na pastilha combustível (NCi). As formas de liberações do nuclídeo  $i$  do combustível para o gap são as seguintes:

### Recuo

Para as fissões que ocorrem em uma certa distância da superfície do combustível menor que o comprimento médio da distância percorrida pelos fragmentos de fissão no  $UO_2$  (7 a 9  $\mu m$ ), os produtos

de fissão gerados nessa fissão podem ser liberados diretamente do combustível (Apêndice - A). A expressão que determina a liberação de um dado nuclídeo  $i$  para o gap devido ao recuo é dada por:

$$N_{ri} = N_{ci} \cdot \frac{R}{d} \quad (6)$$

onde:

$N_{ri}$  - número de nuclídeos  $i$  que recuaram por seg (átomos/s).

$N_{ci}$  - quantidade de nuclídeo  $i$  produzida no combustível (átomos/s).

$R$  - comprimento do recuo no  $UO_2$  (cm).

$d$  - diâmetro da pastilha combustível (cm).

### Knockout

O “knockout” é a passagem através da superfície do combustível de um fragmento de fissão que transporta um volume elementar ( $V_m$ ) de átomos, e os produtos de fissão que estão inclusos neste volume, quando ejetado. Esse processo de liberação ocorre somente em uma fina camada, equivalente ao comprimento do recuo, da superfície da vareta combustível<sup>8,11</sup>. A concentração de um nuclídeo  $i$  liberado por knockout para o gap na camada de recuo é dada por:

$$N_{ki} = N_{ci} \cdot \frac{R}{d} \cdot \frac{V_m}{V_c} \cdot \frac{\lambda_i T_F}{(\lambda_i + \nu_i)} \quad (7)$$

onde:

$N_{ki}$  - nuclídeo  $i$  liberado para o gap devido ao knockout (átomos/s).

$V_c$  - volume da vareta combustível ( $cm^3$ ).

$\lambda_i$  - constante de decaimento do nuclídeo  $i$  ( $s^{-1}$ ).

$\nu_i$  - constante de liberação do nuclídeo  $i$  do combustível ( $s^{-1}$ )

$T_F$  - taxa de fissão (fissões/s).

## Migração

A contribuição para o acúmulo dos produtos de fissão no gap durante a operação pela migração ocorre devido à elevação da temperatura do local onde encontram-se esses núclídeos. A migração é um processo difusivo complexo que não pode ser expresso por uma simples lei de difusão. No entanto, de acordo com o trabalho de Beyer e Hahn <sup>12,8</sup> sobre gases estáveis, o fenômeno de migração só ocorre em elevadas temperaturas. A expressão que determina a liberação desses produtos de fissão do UO<sub>2</sub> para o gap por é dada por <sup>8</sup>:

$$\frac{dN_{mi}}{dt} = f_{mi} \cdot N_{ci} - (\lambda_i + v_i) \cdot N_{mi} \quad (8)$$

Como a fração de migração ( $f_{mi}$ ) é proporcional a concentração do núclídeo que foi liberado do combustível, então a taxa de liberação ( $N_{Di}$ ) que depende da concentração, da temperatura e da constante de liberação desse núclídeo, é determinada pela seguinte expressão:

$$N_{Di} = v_i \cdot N_{mi} \quad (9)$$

onde:

$N_{mi}$  - concentração do núclídeo  $i$  liberado para o gap devido a migração (átomos).

$f_{mi}$  - fração de núclídeos que participam na migração (%).

$v_i$  - constante de liberação do núclídeo  $i$  do combustível ( $s^{-1}$ ).

A variação de  $f_{mi}$  em função da temperatura média do combustível é mostrada na Tabela 2 <sup>8</sup>.

Tabela 2: LIBERAÇÃO DE PRODUTOS DE FISSÃO EM ELEVADAS TEMPERATURAS

TAXAS DE LIBERAÇÃO	TEMPERATURAS (°C)
< 0,0250	1000
0,1334	1200
0,2667	1400
0,3667	1600
0,4584	1800
0,5000	1900

Assim sendo, as liberações dos produtos de fissão do  $UO_2$  para o gap ocorrem mediante ao Recuo, Knockout e Migração. A taxa de liberação total do combustível para o gap ( $R_{Ci}$ ) é a soma da fração liberada devido ao recuo eq. (6), devido ao knockout eq. (7) e devido a migração eq. (9). Dessa forma a fração de liberação total será dada por:

$$R_{Ci} = N_{Ri} + N_{Ki} + N_{Di} \quad (10)$$

Portanto, a equação de balanço no gap devido as liberações por recuo, knockout e migração sofridos pelo nuclídeo  $i$  é similar a eq.(5), que determina a concentração desse nuclídeo no combustível, modificando o termo que é função do seu yield e da taxa de fissão no combustível. Em consequência das modificações desses termos a equação será:

$$\frac{dN_{Gi}}{dt} = R_{Ci} + \sum_j \gamma_{Gi}^j \cdot N_j - \beta_{Gi} \cdot N_{Gi} \quad (11)$$

O termo ( $\beta_{Gi}$ ) representa todas as destruições ou remoções sofridas pelo nuclídeo  $i$  no gap, sendo dado por:

$$\beta_{Gi} = A_{Gi} + \lambda_{Gi} + v_{Gi} \quad (12)$$

onde:

$A_{Gi}$  - taxa de destruição via absorção de neutrons pelo nuclídeo  $i$  no gap ( $s^{-1}$ ).

$\lambda_{Gi}$  - constante de decaimento do nuclídeo  $i$  no gap ( $s^{-1}$ ).

$v_{Gi}$  - taxa de liberação do nuclídeo  $i$  do gap para o refrigerante ( $s^{-1}$ ).

## 2.4 ATIVIDADES DOS PRODUTOS DE FISSÃO NO REFRIGERANTE

A liberação dos produtos de fissão para o gap é o primeiro passo para a determinação do inventário radioativo desses nuclídeos no fluido refrigerante do primário de um reator. Assim sendo, nesse tópico será definido a forma de quantificar, no fluido refrigerante do primário, os produtos de fissão que devido a falha no revestimento das varetas combustíveis são liberados para o refrigerante.

Uma vareta combustível é dita falhar quando o seu revestimento sofre uma ruptura e permite que os produtos de fissão que acumularam no gap em um dado período da operação do reator escapem para o fluido refrigerante. Se o combustível permanece sólido, só os gases nobres e outros produtos de fissão mais voláteis estarão no gap em uma quantidade considerável para serem liberados.

Devido ao inventário radioativo do núcleo esta dividido entre muitas varetas combustíveis, a falha de algumas varetas com a exposição dos produtos de fissão ao fluido refrigerante do primário pode ser tolerada, sem que haja uma necessidade de interromper a operação do reator.

Os mecanismos de falha do combustível surgem de interações termo-mecânicas do combustível e do revestimento, da produção e liberação dos produtos de fissão, danos de radiação, sensibilidade a temperatura, reações químicas e um conjunto de outros fenômenos de quem a relativa importância não varia só entre classes de elementos combustíveis mas também entre os tipos de falhas.

A complexidade do fenômeno físico da interação revestimento-combustível (PCI), encontrada durante a operação, é grande. No entanto, em qualquer ocorrência operacional, o comportamento do elemento combustível é fortemente dependente da densidade de potência, da queima a qual o combustível foi submetido, as condições físico-químicas do refrigerante, as possíveis interações químicas refrigerante-revestimento ou refrigerante-combustível e um grupo de outras variáveis.

O grau de liberação dos produtos de fissão da vareta combustível para o fluido refrigerante é determinado pelas suas volatilidades e propriedades químicas, que exercem um importante papel nesse processo. Portanto, é possível agrupar os elementos produzidos na fissão através das suas propriedades químicas, físicos-químicas e volatilidade <sup>2</sup>.

A tabela 3 lista os principais produtos de fissão agrupados em classes de nuclídeos e em ordem decrescente de volatilidade.

Tabela 3: PRODUTOS DE FISSÃO AGRUPADOS PELAS SUAS VOLATILIDADES <sup>2</sup>.

GRUPOS	CLASSES	NUCLÍDEOS	VOLATILIDADE
I	Gases Nobres	Xe e Kr	Inertes
II	Halogênios Metais Alcalinos Telúrio	I e Br Cs e Rb Te	Voláteis
III	Alcalinos Terrosos Metais Nobres Terras Raras	Ba e Sr Ru, Mo, Rh, Tc e Ag Ce, Pr, La, Y, Zr e Nb	Não Voláteis

Como pode ser visto na tabela 3, os elementos são separados em três grupos: Inertes, Voláteis e Não Voláteis. Os elementos do *grupo I* são sempre gasosos mesmo na temperatura ambiente e são liberados sem nenhum problema. Os elementos do *grupo II* são voláteis na temperatura de operação do reator e são provavelmente liberados em significantes quantidades no evento de falha da vareta combustível. O Iodo e o Césio são os principais contribuidores da volatilidade desse grupo. Finalmente, os elementos do *grupo III*, são não voláteis e podem ser liberados em pequenas quantidades, principalmente nas reações químicas quando das interações combustível refrigerante.

Dois tipos de falhas são consideradas nas análises do comportamento do revestimento das varetas combustíveis <sup>2</sup>:

- (1) as rupturas no revestimento são tão pequenas que apenas os produtos de fissão Inertes e Voláteis são liberados em grandes quantidades e os demais em pequenas quantidades;
- (2) uma deformação excessiva no revestimento que venha a bloquear o fluxo do refrigerante ou perder a capacidade de suportar as pastilhas de UO<sub>2</sub> na forma de coluna, impedindo que a vareta troque calor com o fluido refrigerante e assim venha a romper-se.

O tipo de falha a ser adotada nesse trabalho é a ruptura do revestimento em pequenos furos, cuja taxa de escape é diretamente proporcional a quantidade de núclídeos presentes no gap. A ruptura do revestimento em grandes aberturas é pouco provável de acontecer no início da operação do reator, apesar do desgaste que os materiais sofrem devido as exigências operacionais da planta. A taxa de escape do revestimento com esse tipo de ruptura é dada por <sup>11,12</sup>:

$$R_{Gi} = v_{Gi} \cdot N_{Gi} \quad (13)$$

onde:

$R_{Gi}$  - taxa de liberação do nuclídeo  $i$  do gap para o fluido refrigerante (átomos/s).

$N_{Gi}$  - concentração do nuclídeo  $i$  presente no gap (átomos).

$v_{Gi}$  - constante de liberação do nuclídeo  $i$  do gap ( $s^{-1}$ ).

A equação de balanço dos produtos de fissão no fluido refrigerante do primário é similar as equações de balanço (5) e (11), e conseqüentemente será dada por:

$$\frac{dN_{Ri}}{dt} = R_{Gi} + \sum_j \gamma_{Ri}^j \cdot N_j - \alpha_{Ri} \cdot N_{Ri} \quad (14)$$

O termo  $\alpha_{Ri}$  expressa a taxa de destruição do nuclídeo  $i$  no fluido refrigerante do primário, sendo ele dado por:

$$\alpha_{Ri} = \lambda_{Ri} + A_{Ri} + q_{Ri} \quad (15)$$

O termo  $q_{Ri}$  é a taxa de remoção do nuclídeo  $N_i$  do fluido refrigerante do primário através do sistema de purificação da planta, da linha de asperção do pressurizador, vazamentos do primário para o secundário e vazamentos dos sistemas em geral (quando eles ocorrem).

## 2.5 MODO DE FALHA DA VARETA COMBUSTÍVEL

Durante a operação de um reator várias varetas combustíveis falham devido a fenômenos termo-mecânicos que ocorrem na pastilha combustível e no revestimento. Para a pastilha combustível esses fenômenos ocasionam a modificação do seu diâmetro e induzem à sua interação com o revestimento (PCI - "Pellet Cladding Interaction"), e são definidos como <sup>13,14,15</sup>.

- (1) expansão térmica;
- (2) formação de trincas, devido ao elevado gradiente de temperatura e ciclagem térmica;
- (3) densificação e inchamento, devido a reestruturação e aos produtos de fissão.

Para o revestimento os fenômenos que ocasionam a modificação do seu diâmetro durante a operação do reator são:

- (1) expansão térmica;
- (2) diferencial de pressão aplicado ao revestimento;
- (3) fluência térmica e sob irradiação.

Os efeitos da expansão térmica na pastilha combustível, devido aos gradientes térmicos, se manifestam logo no início da operação do reator. Quando a potência do reator é elevada, o gradiente térmico gera tensões térmicas tagenciais e longitudinais, essas tensões induzem à formação de trincas radiais que se abrem causando a interação entre a pastilha combustível e o revestimento da vareta <sup>14,15</sup>.

Se a potência for elevada ao seu valor nominal máximo, e permanecer assim, nenhuma deformação posterior devido a expansão térmica será produzida, mas, com a queima prolongada, o diâmetro da pastilha combustível modifica-se de duas formas <sup>15</sup>:

- (1) diminuição gradual devido a densificação do  $UO_2$ ;
- (2) aumento devido ao inchamento causado pelos produtos de fissão sólidos (Não Voláteis - Tabela. 2) e gasosos (Inertes e Voláteis - Tabela 2) <sup>14,15</sup>.

Se a potência for alvo de ciclagem, aparece associado a esses efeitos a relocação do combustível (as partes rachadas da pastilha combustível são relocadas na direção do revestimento) que também depende do nível de potência e da queima do combustível <sup>15</sup>.

Da ocorrência dos efeitos citados e com a queima prolongada do combustível, o inchamento associado a relocação e reestruturação, pode predominar sobre a densificação, levando o diâmetro da pastilha combustível a um valor maior do que o inicialmente obtido por expansão térmica, ocasionando assim uma maior interação com o revestimento <sup>15</sup>.

O revestimento da vareta combustível durante a operação do reator está constantemente submetido a uma grande pressão externa ( $\geq 2000$  psi) <sup>14</sup>, o que proporcionará um elevado diferencial de pressão no revestimento. Este diferencial de pressão tende a colapsar o revestimento em direção a pastilha combustível e fazer com que ocorra o evento de interação pastilha- revestimento <sup>15</sup>.

Com a irradiação prolongada a fluência (deformação lenta e permanente de um material quando exposto à uma tensão constante), auxiliado por uma alta tensão compressiva, elevada temperatura e fluxo de neutrons, deformará o revestimento em direção à pastilha combustível mais rapidamente, ocasionando também a interação pastilha-revestimento <sup>15</sup>.

Apesar da interação pastilha-revestimento ocasionar grandes alterações no diâmetro do revestimento da pastilha combustível, ela sozinha não proporciona efeito suficiente para provocar fissuras no revestimento, é necessário que ocorra simultaneamente uma corrosão assistida por tensão denominada de SCC ("Stress Corrosion Cracking"). A associação desses dois fenômenos é responsável pela grande maioria das rupturas dos revestimentos das varetas. No entanto, a corrosão sob tensão só ocorre na presença de uma tensão trativa e um meio corrosivo, sendo o meio corrosivo fornecido pelo fluido refrigerante do primário e a tensão trativa pelo evento de interação pastilha-revestimento <sup>15</sup>.

Como esses eventos acontecem constantemente nos reatores, o modo de falha das varetas combustíveis é baseado principalmente na ocorrência de uma PCI acompanhada por uma SCC. Esse modo de falha caracteriza-se por ocasionar no revestimento pequenos furos que possibilitam a liberação dos produtos de fissão Inertes, Voláteis e Não Voláteis para o fluido refrigerante do primário.

Considerando que este seja o principal modo de falha das varetas combustíveis nos reatores, ele será empregado na análise dos dados, na simulação do comportamento operacional e na verificação do processo de liberação simultânea no reator estuda nesse trabalho <sup>14,15</sup>.

## 2.6 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 2

- /1/ LAMARSH, J. R.; *Introduction to Nuclear Reactor theory*, New York, Addison-Wesley, 1966.
- /2/ LEWIS, E. E.; *Nuclear Power Reactor Safety*, John Wiley & Sons, New York, 1977.
- /3/ DUDERSTADT, J. J. & HAMILTON, L. J.; *Nuclear Reactor Analysis*, New York, John Wiley, 1975.
- /4/ BENEDICT, Manson; PIGFORD, Thomas H.; LEVI, Hans Wolfgang; *Nuclear Chemical Engineering*, Second Editions, McGraw-Hill, Book Company.
- /5/ AMERICAN NUCLEAR SOCIETY; *Report of the Special Committee on Source Terms*, Sponsored by the American Nuclear Society, September 1984.
- /6/ RITZMAN, R. L.; *Release of Radioactivity in Reactor Accidents*, Reactor Safety Study; An Assessment of Accident Risks in U.S. Commercial Nuclear Power Plants. Appendix VII, October 1975, WASH-1400 (NUREG-75/014).
- /7/ SAUTERON, Jean; *Les Combustibles Nucleaires*, Hermann, Paris, 1965.
- /8/ BERAHA, R. et al; *Fuel Survey in the Light Water Reactors Based on the Activity of the Fission Products*, Nuclear Technology, Fuel Cycles, 49 (426) 1980.
- /9/ AMERICAN NATIONAL STANDARD, *Method for Calculating the Fractional Release of Volatile Fission Products from Oxide Fuel*, (ANSI/ANS-5.4-1982).
- /10/ LEWIS, Brent J. et al; *A model for the Release of Radioactive Krypton, Xenon and Iodine from Defective Fuel Elements*, Nuclear Technology, Nuclear fuels, 73 (72) 1986.
- /11/ INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY; *Coolant Technology of Water Cooled Reactors*, Volume 3, IAEA-TECDOC-667, October 1992.
- /12/ BEYER, L. E.; HAHN, C. R.; *Production of Fission Gas Release of UO<sub>2</sub> Fuel*, BNWL-1875, Battelle-Pacific Northwest Laboratories (Nov. 1974).

- /13/ DUNCAN, R.; Stainless Steel Failure Investigation Program, GEAP-5530, February 1968.
- /14/ STOLLER CORPORATION, S. M.; An Evaluation of Stainless Steel Cladding for Use in Current Design LWRs, New York, NP-2642, Contract TPS 79-773, December 1982.
- /15/ ESTEVES, Armando M.; Modelagem da Interação Pastilha-Revestimento de Varetas Combustíveis de Reactores PWRs, Eng. Mec. Escola Politécnica - USP, Tese de Mestrado, 1991.

## CAPÍTULO 3

### 3.1 INTRODUÇÃO

### 3.2 OS CÓDIGOS CINDER-2 E TFP

#### 3.2.1 O CÓDIGO CINDER-2

#### 3.2.2 O CÓDIGO TFP

#### 3.2.3 SELEÇÃO DOS NUCLÍDEOS UTILIZADOS NO CÓDIGO TFP

### 3.3 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 3

### 3.1 INTRODUÇÃO

Normalmente no cálculo (Modelagem) do termo-fonte operacional é necessário dispor de um código de computador que trate o problema da queima do combustível e viabilize a quantificação dos produtos de fissão nos demais sistemas da planta. Esse cálculo é feito através da cinética da transmutação nuclear.

De acordo com esse contexto, o código CINDER-2 foi escolhido para efetuar os cálculos referentes à queima do combustível durante a operação do reator, devido à sua simplicidade, versatilidade e precisão matemática, assim como, por possuir uma compreensível rotina do tratamento matemático dos dados, referentes aos produtos de fissão na pastilha combustível

O tratamento dos dados sobre os produtos de fissão que acumulam no gap, e mediante a falhas no revestimento das varetas combustíveis, são liberados para o fluido refrigerante do primário, implica na definição de modelos matemáticos que determinem essas liberações.

No capítulo 2 (dois) foram apresentadas considerações teóricas sobre os aspectos da geração e remoção dos produtos de fissão do sistema, as quais serão utilizadas para verificar o comportamento dos produtos de fissão ao longo da queima do combustível, analisar as formas de acoplamento entre as cadeias lineares, a importância de determinados núclídeos no termo-fonte e os modos de falhas das varetas combustíveis que expõem os produtos de fissão ao circuito primário.

Dessa forma, a inclusão das fontes e das remoções dos produtos de fissão do sistema, estabelecem as diretrizes básicas na determinação do termo-fonte de um reator nuclear durante sua operação, sendo o inventário radioativo função da variação do tempo e da potência estabelecida.

## 3.2 OS CÓDIGOS CINDER-2 E TFP

### 3.2.1 O CÓDIGO CINDER-2

O código CINDER-2 foi publicado pela primeira vez em 1962 denominado de CINDER <sup>1</sup>, e foi empregado em um grande número de aplicações. Algumas dessas aplicações são apresentadas a seguir:

- cálculo da energia de decaimento dos produtos de fissão incluindo os efeitos de absorção de neutrons. Esse cálculo foi inserido na norma ANS 5.1 como padrão <sup>2</sup>;
- geração conjunta da energia de decaimento e inventário radioativo de todos os nuclídeos significativos no acidente de TMI-2, para a comissão presidencial <sup>3,4</sup>;
- cálculo conjunto da energia de decaimento e da identificação dos maiores contribuidores para uma variedade de combustíveis de reatores térmicos <sup>5</sup>;
- cálculo da produção de produtos de fissão gasosos no combustível de reatores térmicos e outros grupos específicos de nuclídeos (como os definidos na WASH-1400) <sup>3</sup>;
- cálculo do espectro gama e beta dos produtos de fissão em 150 grupos de energia em amostras de combustíveis específicos, e também o histórico de irradiação e resfriamento em experimentos realizados em "Los Alamos Scientific Laboratory" (LASL) e também em "Oak Ridge National Laboratory" (OAK) <sup>6,7</sup>;
- cálculo do espectro neutrônico das reações fotoneutrônicas <sup>8</sup>.

Essas aplicações indicam a utilidade, versatilidade, validação e aceitação desse código.

No entanto, o principal objetivo de criação desse código foi a resolução das complicadas cadeias de acoplamento através do método de "cadeias lineares". Cada cadeia linear representa um único caminho linear de um nuclídeo para outro, resultando em uma pequena independência de equações diferenciais acopladas que descrevem a taxa de mudança de concentrações parciais de um nuclídeo em cada cadeia.

A solução de um grande número de equações diferenciais acopladas foi reduzido para um número menor de equações, cada uma caracterizada pela sua simples forma de geração e remoção. Por causa da natureza linear de cada cadeia (processo de Markov), as equações genéricas podem ser solucionadas sequencialmente para a concentração parcial de cada nuclídeo individualmente na cadeia correspondente.

As concentrações dos núclídeos no combustível são obtidas por soma das concentrações parciais, levando-se em consideração os aspectos matemáticos da técnica de linearização de cadeias empregados nesse código.

Os dados utilizados nas bibliotecas desse código devem necessariamente refletir uma seleção única das cadeias lineares pertinentes à seções de choque, decaimento, "branching" e "yields" de fissão. Os dados nucleares exibidos nessa biblioteca são provenientes da quinta versão da "Evaluated Nuclear Data File (ENDF/B-V)"<sup>9,10</sup>.

A magnitude do problema matemático para se tratar as concentrações dos produtos de fissão no ambiente de um reator, sem considerar a técnica de linearização das cadeias é mostrada na Figura 5, que representa as cadeias dos produtos de fissão em um pequeno intervalo de massa (84 < A < 88) e número atômico (30 < Z < 39).

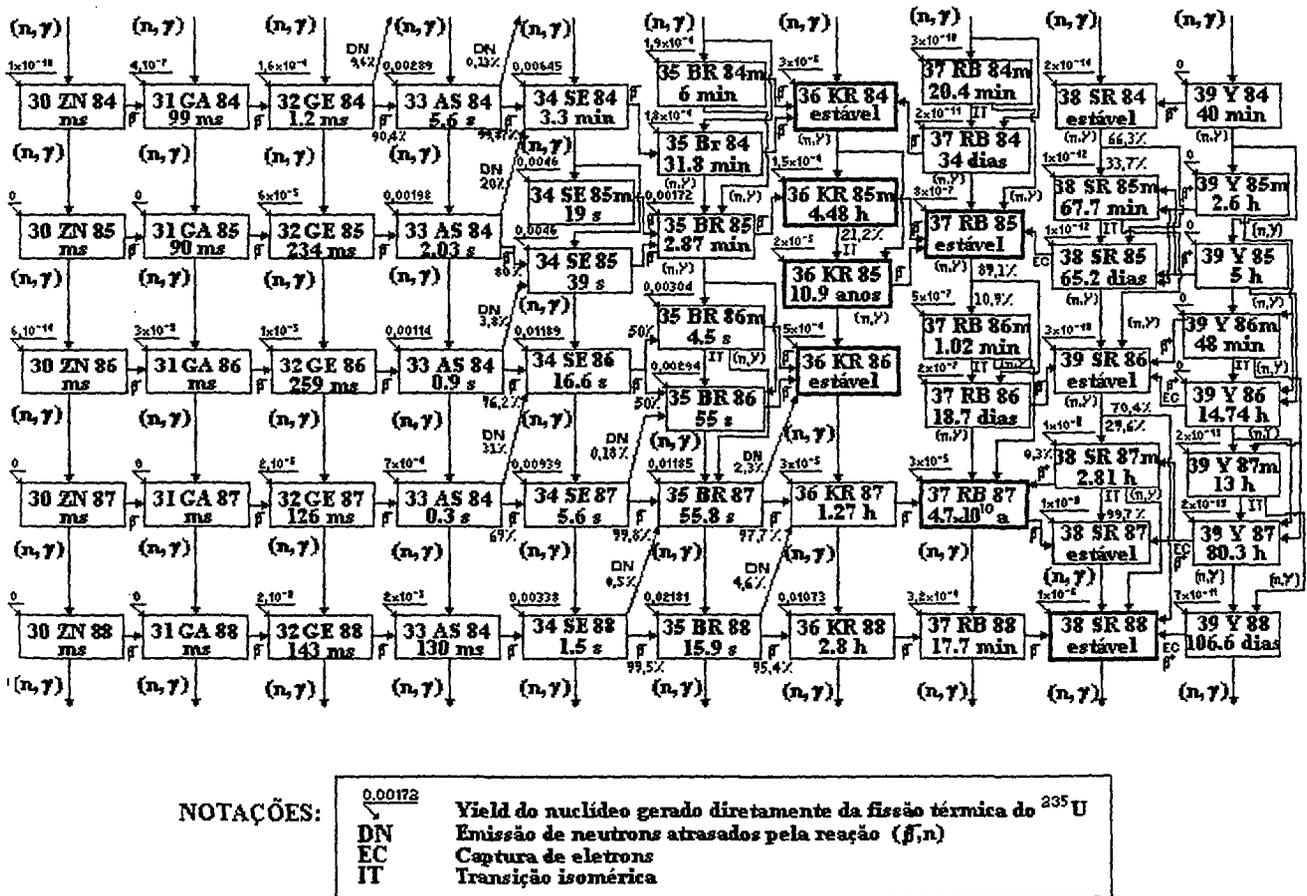


Figura 5: Cadeias de Produtos de Fissão com Massa de 84 a 88 e Número Atômico de 30 a 39.

Como observado na figura 5, a complexidade de se resolver analiticamente essas cadeias é grande, no entanto, fazendo-se algumas simplificações: os núclídeos com meia vida bastante pequena, concentrações e seções de choque baixas e com pequeno yield na cadeia são considerados em equilíbrio e não são tratados explicitamente no processo.

É importante observar que a "exclusão" desses núclídeos devido a essas simplificações é relacionada puramente a peculiaridades matemáticas. Fisicamente eles continuam contribuindo para a formação dos outros núclídeos através da interligação das cadeias a que pertencem.

As aproximações e as simplificações feitas nas cadeias apresentadas na figura 5, reduz os 57 núclídeos originais para somente 7 núclídeos. Essa redução é ilustrada na figura 6.

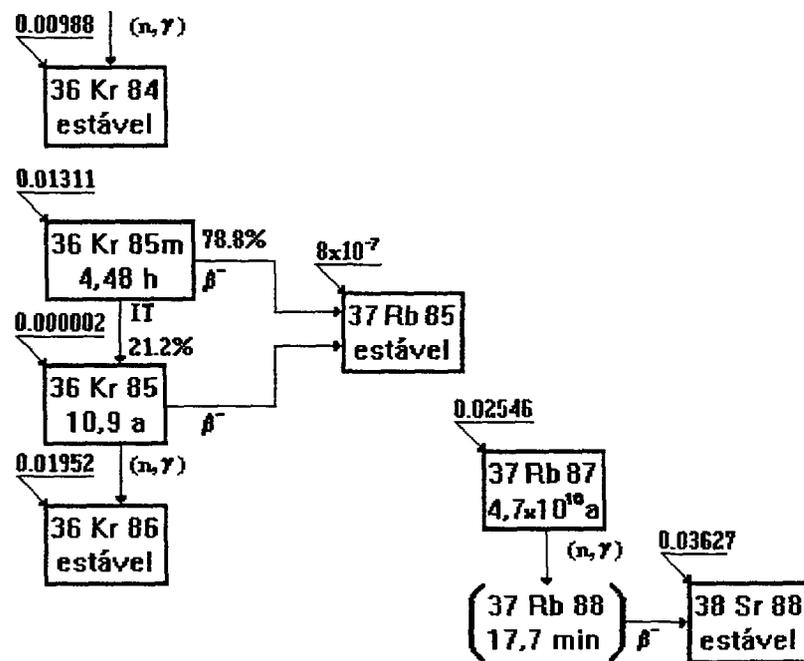


Figura 6: Representação Simplificada das Cadeias dos Produtos de Fissão.

Nota-se na Figura 6 que o Rubídio ( $^{88}\text{Rb}$ ) aparece em parêntesis para indicar o caminho verdadeiro na formação dos núclídeos da cadeia. Dessa forma, é assumido que o Estrôncio ( $^{88}\text{Sr}$ ) é formado diretamente via absorção de neutrons pelo Rubídio ( $^{87}\text{Rb}$ ). A estrutura dessa cadeia não tratará o Rubídio ( $^{88}\text{Rb}$ ) explicitamente, devido à sua meia vida ser muito pequena.

Nota-se também que todos os núclídeos dessa figura tem uma parcela de formação via fissão. Isso acontece devido as simplificações efetuadas nos núclídeos da figura 5, ou seja, os yields desses núclídeos ausentes estão adicionados aos yields dos núclídeos representativos mostrados na figura 6, caracterizando assim, para esses núclídeos, um yield cumulativo nessas cadeias de transmutação.

É importante comentar que, na Figura 6 não há a formação de laços ou “loops” entre os núclídeos das cadeias, ou seja, as gerações e as perdas dos núclídeos se dá sempre em única direção ou sentido. Dessa forma pode-se garantir a linearidade das equações que descrevem o fenômeno.

Para ser feita uma análise de transmutação nuclear, não somente para os núclídeos mostrados como representativos na figura 6, mas para todos os núclídeos que são formados na pastilha combustível, é necessário descrever todos os eventos que exercem influência nessas transformações. O método a ser aplicado na busca da descrição desses eventos, consiste em representar os núclídeos da figura 6 em forma de cadeias lineares. Essa representação é conhecida como técnica de *linearização de cadeias* <sup>11,12</sup>.

A técnica de linearização de cadeias é um processo que implica em decompor as cadeias de transmutação em um conjunto de cadeias lineares, em forma de *linha*. Para ilustrar essa técnica, será considerado a seguinte cadeia hipotética <sup>11</sup>.

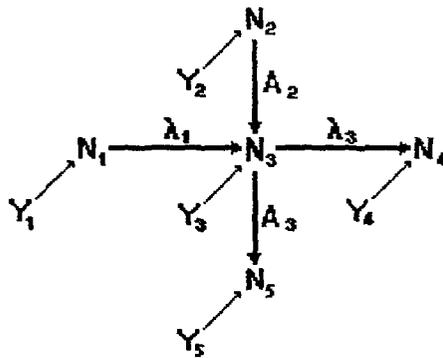


Figura 7 :Cadeia Hipotética de Transmutação Nuclear <sup>11,12</sup>.

onde:

$Y_i = Y_i^K$  - "yield" de fissão do nuclídeo  $i$  devido ao nuclídeo fissil  $K$  (átomos/fissões).

$A_i$  - taxa de destruição via absorção de neutron pelo nuclídeo  $i$ .

$\lambda_i$  - constante de decaimento radioativo do nuclídeo  $i$  ( $s^{-1}$ ).

As equações de balanço radioativo para determinar as concentrações dos cinco nuclídeos mostrados na cadeia hipotética, são as seguintes:

$$\frac{dN_1}{dt} = Y_1.s - \beta_1.N_1 \quad (16)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = Y_2.s - \beta_2.N_2 \quad (17)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = Y_3.s + \lambda_1.N_1 + A_2.N_2 - \beta_3.N_3 \quad (18)$$

$$\frac{dN_4}{dt} = Y_4.s + \lambda_3.N_3 - \beta_4.N_4 \quad (19)$$

$$\frac{dN_5}{dt} = Y_5.s + A_3.N_3 - \beta_5.N_5 \quad (20)$$

Há três possibilidades de formar o nuclídeo 3, que são: (1) diretamente da fissão; (2) absorção de neutron pelo nuclídeo 2; e (3) pelo decaimento radioativo do nuclídeo 1, sendo que os dois últimos processos são inerentes a essa cadeia. Portanto, a densidade do nuclídeo 3 pode ser decomposta em duas partes:  $N_{3A}$  e  $N_{3B}$ , sendo  $N_{3A}$  a densidade parcial do nuclídeo 3, devido ao processo de decaimento radioativo do nuclídeo 1, e  $N_{3B}$  a densidade parcial do nuclídeo 3, devido à absorção de neutrons pelo nuclídeo 2, onde  $N_3 = N_{3A} + N_{3B}$ . A contribuição da densidade parcial do nuclídeo 3, devido ao yield da fissão pode ser incluído na parte A ou B, ou então em uma nova parte C. No entanto, nesse desenvolvimento ela será incluída na parte A.

Agora considerando o nuclídeo  $N_4$ , há duas possibilidades de formação desse nuclídeo: primeiro, devido ao yield da fissão, e segundo, pelo decaimento radioativo do nuclídeo 3. Como feito para o nuclídeo 3, a densidade do nuclídeo 4 será dividida em duas partes;  $N_{4A}$  e  $N_{4B}$ , tal que,  $N_4 = N_{4A} + N_{4B}$ , onde  $N_{4A}$  e  $N_{4B}$  são as densidades parciais do nuclídeo 4 devido à produção desse nuclídeo por

decaimento radioativo de  $N_{3A}$  e  $N_{3B}$ , respectivamente. Assim como para o nuclídeo 3, a contribuição do yield pode ser incluída em A ou B ou em uma nova parte C. Seguindo o mesmo procedimento, uma resolução similar pode ser feita para o nuclídeo 5. Dessa forma, as cadeias consideradas anteriormente podem ser representadas em um grupo de cadeias lineares e estão apresentadas na Figura 8 <sup>11</sup>.

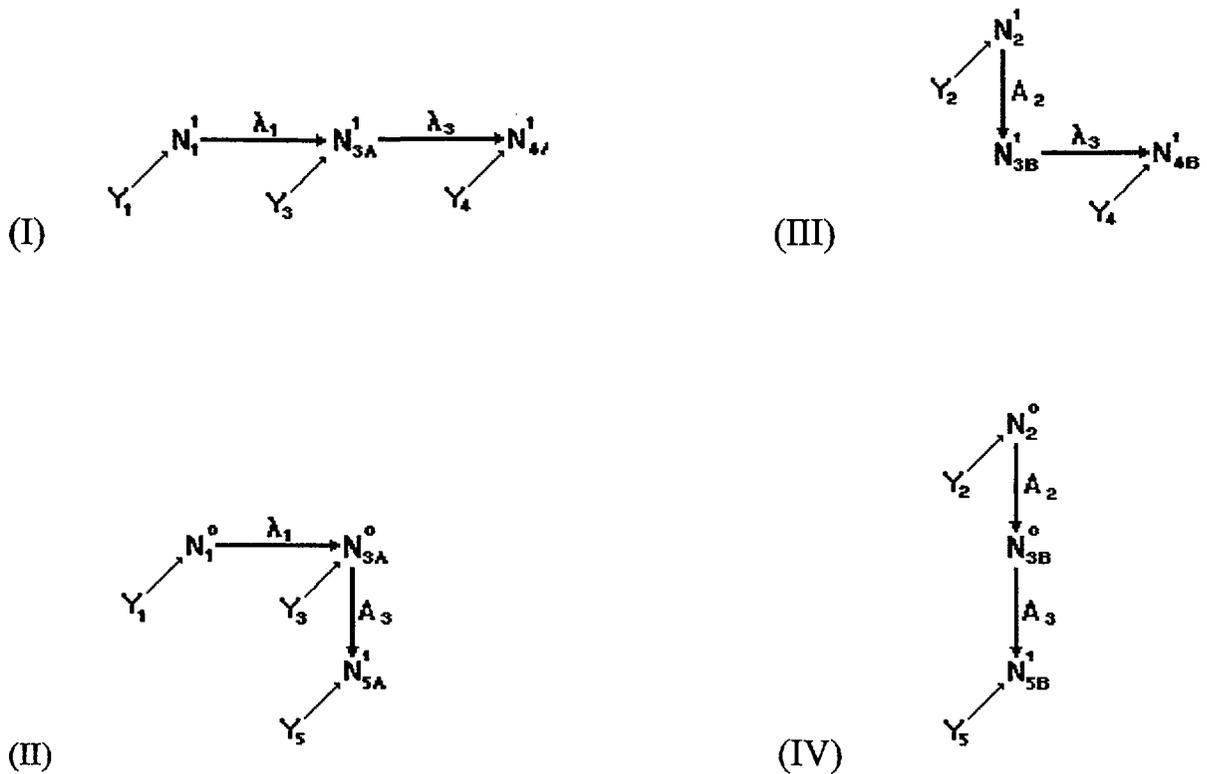


Figura 8 : Cadeias Hipotéticas Linearizadas.

Como descrito anteriormente, a densidade final de cada nuclídeo nas cadeias lineares hipotéticas da Figura 8 é a soma das densidades parciais. Essa soma, mediante a identificação do caminho estabelecido na linearização, é feita através da verificação do nuclídeo na soma (in-sum) e fora da soma (out-of-sum). Os nuclídeos que estão na soma são identificados com o sobrescrito 1 e os fora da soma como o sobrescrito 0. Essa identificação é feita para assegurar que uma densidade parcial não seja somada mais de uma vez, haja visto que existem caminhos que já foram estabelecidos em cadeias lineares anteriores, como pode ser verificado na Figura 8. Portanto, a densidade final à partir das densidades parciais de cada nuclídeo das cadeias mostradas nessa figura são dadas por:

- Densidade do nuclídeo N1 = N1
- Densidade do nuclídeo N2 = N2
- Densidade do nuclídeo N3 = N3A(I) + N3B(II)
- Densidade do nuclídeo N4 = N4A + N4B
- Densidade do nuclídeo N5 = N5A + N5B

Para os vários nuclídeos formados nas pastilhas combustíveis, os seus comportamentos não diferem muito do que foi descrito acima, no entanto, as gerações desses nuclídeos não ocorrem de forma isolada, ou seja, as sucessivas transformações que eles sofrem não acontecem só nas suas cadeias individuais mas também em outras cadeias, nas quais muitas vezes encontram-se interligadas, representando um acoplamento entre si. Portanto, a utilização da técnica de linearização torna-se de grande utilidade pela sua simplicidade e versatilidade de solução.

Tomando como exemplo uma situação geral para uma cadeia individual, e considerando que os nuclídeos estão linearizados e suas formações ocorrem em um único sentido, pode-se representar simplificadaamente os acoplamentos, as formações e as perdas dos nuclídeos nessa cadeia.

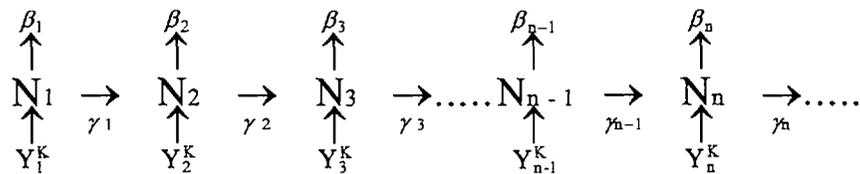


Figura 9: Ilustração da Cadeia Linear Genérica de Transmutação Nuclear do Nuclídeo Ni.

A estrutura de cálculo baseada na técnica de cadeias lineares, representada pela Figura 9., consiste em solucionar a equação de transmutação que representa a equação de balanço nuclear para o n-ésimo nuclídeo (Nn) na pastilha combustível. Portanto, essa equação pode ser escrita da seguinte forma:

$$\frac{dN_n(t)}{dt} = \sum_k Y_n^k \cdot S_k(t) + \gamma_{n-1} \cdot N_{n-1}(t) - \beta_n(t) \cdot N_n(t) \tag{21}$$

Portanto, pode-se em princípio argumentar a respeito da eq.(21) e desenvolver uma relação recursiva capaz de fornecer uma solução analítica para solucionar esse problema, o que seria muito complexo devido ao número de núclídeos envolvidos. De um modo mais simples, pode ser utilizado algumas propriedades da transformada de Laplace na forma de fração parcial e aplicar na eq.(21) e obter uma solução na forma de somatório das frações parciais do núclídeo  $i$  no combustível. Essa solução é dada pela seguinte expressão <sup>12</sup>:

$$N_n(t + \Delta t) = \sum_{m=1}^n \frac{1}{\gamma_n} \cdot \sum_{k=m}^n \gamma_k \left\{ \overline{Y_m S} \left[ \frac{1}{\prod_{l=m}^n \beta_l} - \sum_{j=m}^n \frac{\exp(-\beta_j \cdot t)}{\beta_j \prod_{i=m \neq j}^n (\beta_i - \beta_j)} \right] + N_n(t) \cdot \sum_{j=n}^n \left[ \frac{\exp(-\beta_j \cdot t)}{\prod_{i=m \neq j}^n (\beta_i - \beta_j)} \right] \right\} \quad (22)$$

Onde  $\Delta t$  é o intervalo de tempo considerado, os parâmetros  $\beta$ 's,  $\gamma$ 's e  $\overline{Y_m S}$  são mantidos constantes durante o intervalo de tempo  $\Delta t$ .  $\overline{Y_m S}$  é taxa de produção média do núclídeo  $m$  devido aos núclídeos fissionáveis.

As frações parciais representadas na eq.(22) podem ser interpretadas da seguinte forma: cada termo na somatória ( $\sum_{j=i}^n$ ) representa uma contribuição do  $j$ -ésimo núclídeo até  $i$ -ésimo núclídeo no tempo  $t$ . Além disso, essa equação já separa as contribuições das fontes via fissão e da densidade do núclídeo  $j$  no tempo  $t_0$ , sendo os termos em parêntesis, os representantes da contribuição devido ao yield de fissão do  $j$ -ésimo núclídeo e da concentração inicial do mesmo.

A restrição utilizada pelo código CINDER-2 e normalmente aos sistemas de um reator está vinculada à densidade máxima de potência e à potência de operação, durante a vida operacional do reator. De acordo com essa afirmação, a eq.(21) estará restrita ao seguinte vínculo <sup>13</sup>:

$$Dp(t) = \sum_k G_k \cdot N_k(t) \cdot S_k(t) \quad (23)$$

onde:

$Dp(t)$  - densidade de potência ( $W/cm^3$ ).

$G_K$  - energia liberada por fissão de um núclídeo fissil ou fissionável (Mev).

$N_K(t)$  - densidade atômica do núclídeo K (átomos/ $cm^3$ ).

$S_K(t)$  - taxa de fissão por núclídeo fissil ou fissionável do núclídeo K (fissões/s).

A eq.(23) escrita de modo que possa representar a densidade de potência relacionada aos grupos de energia proporcionais ao fluxo no quarto grupo, é expressa da seguinte forma:

$$Dp(t) = \phi^4(t) \cdot \sum_k G_k \cdot N_k(t) \cdot \sum_{j=1}^4 \sigma_{fK}^j(t) \cdot \frac{\phi^j(t)}{\phi^4(t)} \quad (24)$$

onde:

$\phi^4(t)$  - fluxo de neutrons para o 4º grupo de energia (n/cm<sup>2</sup>.s).

$\sigma_{fK}^j(t)$  - seção de choque microscópica de fissão do nuclídeo K, no grupo de energia J (cm<sup>2</sup>).

$\phi^j(t)$  - fluxos de neutrons dependentes da energia (n/cm<sup>2</sup>.s).

A estratégia de cálculo utilizada pelo código CINDER-2 para determinar a variação temporal da concentração dos actínídeos e produtos de fissão é calcular primeiramente as concentrações dos actínídeos através de uma aproximação "quase estática" <sup>11,14</sup>, que consiste em dividir o tempo de operação de um reator numa série de intervalos de tempo ( $\Delta t$ ).

Durante todo o processo de cálculo, parâmetros como a densidade de potência (Dp), razão de fluxo [ $\phi^j(t)/\phi^4(t)$ ] e seção de choque microscópica são assumidos serem conhecidos em cada intervalo de tempo. Portanto a eq. (24) torna-se:

$$\phi^4(t) = \frac{DP(t)}{\sum_K G_K \cdot N_K(t) \cdot \sum_{j=1}^4 \sigma_{fK}^j(t) \cdot \frac{\phi^j(t)}{\phi^4(t)}}, \text{ onde: } \phi^j(t) = \frac{\phi^j(t)}{\phi^4(t)} \cdot \phi^4 \quad (25)$$

O processo inicia-se com a determinação dos fluxos de neutrons [ $\phi^j(t)$ ] no início do primeiro intervalo de tempo através da eq. (25) e são mantidos constantes no decorrer desse intervalo. Em seguida, calcula-se as novas concentrações dos actínídeos e produtos de fissão nesse mesmo intervalo, utilizando a equação (22).

Com as novas concentrações, determina-se o fluxo no início do segundo intervalo de tempo, que por sua vez será utilizado no cálculo das novas concentrações, e assim, sucessivamente, acontecendo nos demais intervalos de tempo <sup>14</sup>. O fluxo de neutrons, a taxa de fissão [ $S_K(t)$ ] e seção de choque microscópica ( $\sigma_{fK}$ ), permanecem constantes durante o intervalo de tempo.

As concentrações dos produtos de fissão são determinadas simultaneamente assumindo uma densidade de fissão média ( $\overline{Y_m.S}$ ) em cada intervalo de tempo. Essa densidade de fissão é dada por:

$$\overline{Y_m.S} = \frac{Y_m.S(t) + Y_m.S(t + \Delta t)}{2} \quad (26)$$

Além das densidades atômicas dos núclídeos, o código também determina outras quantidades como as atividades no núcleo do reator ( $UO_2$ ), seções de choque de absorção macroscópicas por grupo de energia, fluxos de neutrons, etc.<sup>14</sup>. Assim como, é executado internamente uma análise do erro de truncamento dos fatores exponenciais, a fim de garantir a precisão adequada do cálculo.

Alguns termos que estão definidos na biblioteca de dados nucleares ENDF/B-V<sup>15,16,17</sup>, que representa um grande auxílio na utilização dos códigos de computador, como o CINDER-2, são os seguintes: constante de decaimento, seções de choque em 4 grupos de energia, fração de produção de um núclídeo via fissão de um determinado núclídeo fissil (yield's) ou fissionável e as frações de ramificações (branching). Os parâmetros iniciais necessários para a execução do código CINDER-2, resumem-se em<sup>18</sup>:

- (1) número de intervalos de tempo;
- (2) razão de fluxo nos quatros grupos de energia para cada intervalo de tempo;
- (3) concentração inicial do material combustível;
- (4) fluxo térmico efetivo ou densidade linear de potência térmica;
- (5) seções de choque em 4 grupos para os actínídeos em cada intervalo de tempo.

Os dados de saída do CINDER-2 no final de cada intervalo de tempo são os seguintes:

- (1) fluxo térmico efetivo total;
- (2) variação do fluxo térmico por grupo de energia;
- (3) seções de choque macroscópica para cada núclídeo;
- (4) atividade (Ci) parcial por núclídeo da cadeia e total por núclídeo (soma das parciais).

De acordo com as simplificações feitas e com a técnica de linearização de cadeias, a biblioteca de dados ENDF/B-V<sup>18</sup> vem a ter 102 cadeias lineares que descrevem o comportamento de 211 núclídeos representando os produtos de fissão e outras 39 cadeias lineares que descrevem o comportamento de 46 núclídeos representando os actínídeos. Todas as cadeias dos produtos de fissão contidas na biblioteca de dados (ENDF/B-V) usadas no CINDER-2 estão mostradas na Figura 10.

- 1 . Zn72-Ga72-Ge72-Ge73-Ge74
- 2 . As75
- 3 . Ge76-Ge77-As77-Se77-Se78-Se79-Se80
- 4 . Br81-Br82-Kr82-Kr83-Kr84
- 5 . Se82
- 6 . Kr85m-Rb85-Rb86-Sr86
- 7 . Kr85m-Kr85-Rb85-Rb86-Sr86
- 8 . Kr85m-Kr85-Kr86
- 9 . Kr87-Rb87-Rb88-Sr88
- 10 . Kr88-Rb88-Sr88
- 11 . Kr89-Rb89-Sr89-Y89-Y90-Zr90
- 12 . Sr90-Y90-Zr90
- 13 . Sr90-Sr91-Y91-Zr91-Zr92-Zr93
- 14 . Sr92-Y92-Zr92-Zr93
- 15 . Y93-Zr93
- 16 . Zr94-Zr95-Nb95-Mo95-Mo96-Mo97
- 17 . Zr94-Zr95-Nb95m-Mo95-Mo96-Mo97
- 18 . Zr94-Zr95-Nb95m-Nb95-Mo95-Mo96-Mo97
- 19 . Zr96-Zr97-Nb97-Mo97-Mo98-Mo99-Tc99m-Tc99-Ru100-Ru101
- 20 . Mo98-Mo99-Tc99-Ru100-Ru101
- 21 . Mo100-Ru101-Ru102-Rh102-Rh103-Pd104-Pd105-Pd106-Pd107
- 22 . Ru104-Ru105-Pd105-Pd106
- 23 . Ru104-Ru105-Rh105-Pd106
- 24 . Ru106-Pd106-Pd107-Pd108-Pd109-Ag109-Ag110m-Cd110
- 25 . Ru106-Pd107-Pd108-Pd109-Ag109
- 26 . Pd109-Ag109-Cd110
- 27 . Pd110-Ag111-Cd111-Cd112-Cd113-Cd114-Cd115-In115-Sn116
- 28 . Pd112-Cd112-Cd113-Cd114-Cd115-In115-Sn116
- 29 . Cd114-Cd115m-In115-Sn116
- 30 . Cd116-Sn117-Sn118-Sn119-Sn120
- 31 . Sn121m-Sb121-Sb122-Te122
- 32 . Sn121-Sb121-Sb122-Te122
- 33 . Sn122-Sn123-Sb123-Sb124-Te124
- 34 . Sn122-Sb123-Sb124-Te124
- 35 . Sn124-Sn125-Sb125-Te125m-Te124
- 36 . Sn124-Sn125-Sb125-Te124
- 37 . Sn126-Te126-Te127-I127-Xe128
- 38 . Sn126-Te126-Te127m-Te127-I127-Xe128
- 39 . Sn126-Sb126-Te126-Te127-I127-Xe128
- 40 . Sn126-Sb126-Te126-Te127m-Te127-I127-Xe128
- 41 . Sb127-Te127m-Te127-I127-Xe128
- 42 . Sb127-Te127-I127-Xe128
- 43 . Sb128-Te128-Te129-I129-I130-Xe130-Xe131
- 44 . Sb128-Te128-Te129m-Te129-I129-I130-Xe130-Xe131
- 45 . Sb128-Te128-Te129m-Te129-I129-Xe130-Xe131
- 46 . Sb128-Te128-Te129-I129-Xe130-Xe131
- 47 . Sb128-Te128-Te129m-I129-I130-Xe130-Xe131
- 48 . Sb128-Te128-Te129m-I129-Xe130-Xe131
- 49 . Sb129-Te129m-Te129-I129-I130-Xe130-Xe131
- 50 . Sb129-Te129m-Te129-I129-Xe130-Xe131
- 51 . Sb129-Te129-I129-I130-Xe130-Xe131
- 52 . Sb129-Te129-I129-Xe130-Xe131
- 53 . Sb129-Te129m-I129-I130-Xe130-Xe131
- 54 . Sb129-Te129m-I129-I130-Xe130-Xe131
- 55 . Te130
- 56 . Te131m-I131-Xe131-Xe132-Xe133-Cs133
- 57 . Te131m-I131-I132-Xe132-Xe133-Cs133
- 58 . Te132-I132-Xe132-Xe133-Cs133-Cs134
- 59 . Te132-I132-Xe132-Xe133m-Cs133-Cs134
- 60 . I133-Xe133-Xe134-Xe135-Cs135-Cs136-Ba136-Ba137
- 61 . I133-Xe133m-Xe133-Cs133
- 62 . I133-Xe133-Cs133-Cs134-Cs135
- 63 . I133-Xe133-Cs133-Cs134-Ba134
- 64 . Te134-I134-Xe134-Xe135-Cs135-Cs136-Ba136-Ba137
- 65 . I135-Xe135-Cs135-Cs136-Ba136
- 66 . I135-Xe135-Xe136-Xe137-Cs137-Cs138-Ba138
- 67 . I135-Xe135m-Xe135-Cs135-Cs136-Ba136-Ba137
- 68 . I135-Xe135m-Xe135-Xe136-Xe137-Cs137-Cs138-Ba138
- 69 . Xe137-Cs137-Ba137-Ba138-Ba139-La139-La140-Ce140
- 70 . Xe138-Cs138-Ba138-Ba139-La139-La140-Ce140
- 71 . Ba140-La140-Ce140-Ce141-Pr141
- 72 . Ba141-La141-Ce141-Pr141-Pr142-Nd142-Nd143
- 73 . Ba141-La141-Ce141-Pr141-Pr142-Pr143-Nd143
- 74 . Ba142-La142-Ce142-Ce143-Pr143-Nd143-Nd144-Nd145
- 75 . Ce143-Ce144-Nd144-Nd145
- 76 . Ce143-Pr143-Nd144-Nd145
- 77 . Ce143-Ce144-Pr145-Nd145
- 78 . Pr145-Nd145-Nd146-Nd147-Pm147-Pm148m-Pm149-Sm149-Sm150-Sm151-Sm152-Sm153-Eu153-Eu154-Eu155-Gd156
- 79 . Pr145-Nd145-Nd146-Nd147-Pm147-Pm148-Pm149-Sm149-Sm150-Sm151-Sm152-Sm153-Eu153-Eu154-Eu155-Eu156-Gd156
- 80 . Pr145-Nd145-Nd146-Nd147-Pm147-Sm147-Sm148-Sm149-Sm150-Sm151-Sm152
- 81 . Pr145-Nd145-Nd146-Nd147-Pm147-Pm148m-Sm148-Sm149-Sm150-Sm151-Sm152
- 82 . Pr145-Nd145-Nd146-Nd147-Pm147-Pm148-Sm148-Sm149-Sm150-Sm151-Sm152
- 83 . Nd147-Pm147-Pm148m-Pm149-Sm150-Sm151
- 84 . Nd147-Pm147-Pm148-Pm149-Sm150-Sm151
- 85 . Nd147-Nd148-Pm149-Sm149
- 86 . Nd147-Pm147-Pm148m-Pm148-Sm148-Sm149-Sm150-Sm151
- 87 . Nd147-Pm147-Pm148m-Pm148-Pm149-Sm149-Sm150
- 88 . Nd148-Pm149-Sm149-Sm150-Sm151-Sm152-Sm153-Eu153-Eu154-Eu155-Eu156-Gd156-Gd157
- 89 . Nd148-Pm149-Sm149-Sm150-Sm151-Sm152-Sm153-Eu153-Eu154-Gd154-Gd155
- 90 . Nd148-Pm149-Sm149-Sm150-Sm151-Sm152-Sm153-Eu153-Eu154-Eu155-Gd155
- 91 . Nd148-Pm149-Sm149-Sm150-Sm151-Sm152-
- 92 . Pm149-Sm149
- 93 . Nd150-Pm151-Sm151-Sm152-Sm153-Eu153-Eu154-Eu155-Eu156-Gd156-Gd157
- 94 . Nd150-Pm151-Sm151-Sm152-Sm153-Eu153-Eu154-Eu155-Gd155
- 95 . Nd150-Pm151-Sm151-Eu151
- 96 . Nd150-Pm151-Sm151-Sm152-Sm153-Eu153-Eu154-Gd154-Gd155
- 97 . Pm151-Sm152-Sm153
- 98 . Sm154-Eu155-Eu156-Gd156-Gd157-Gd158
- 99 . Sm154-Eu155-Gd155
- 100 . Eu157-Gd157-Gd158-Gd159-Tb159-Tb160-Dy160-Dy161-Dy162
- 101 . Eu157-Gd157-Gd158-Gd159-Tb159-Tb160-Tb161-Dy161-Dy162
- 102 . Gd160

Figura 10: Cadeias dos Produtos de Fissão do ENDF/B-V Utilizadas pelo CINDER-2.

Inicialmente o processo de cálculo do CINDER-2 determina as concentrações dos actínídeos através dos dados sobre suas cadeias e logo em seguida determina as concentrações dos produtos de fissão, também através dos dados de suas cadeias.

O fluxograma da Figura 11 mostra a execução do código CINDER-2 para realizar os cálculos que fornecem, entre vários dados de saída, as atividades de cada nuclídeo dentro do combustível, e mais especificamente dentro da pastilha de  $UO_2$ .

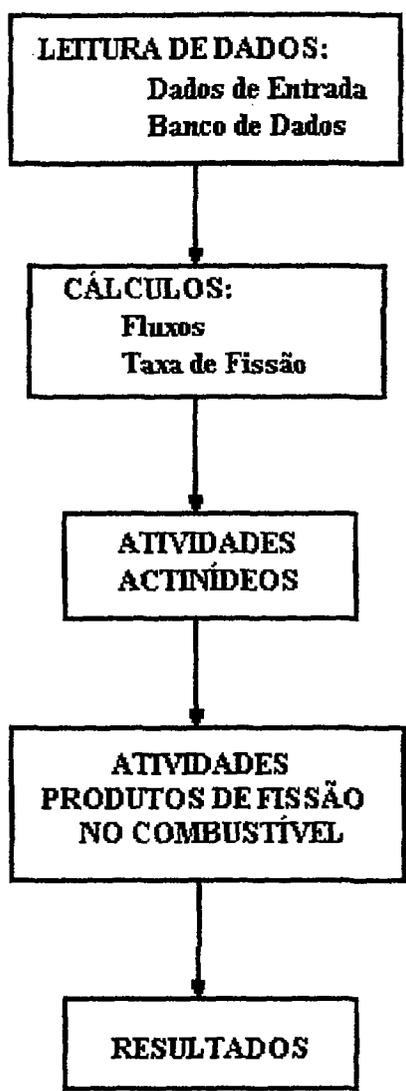


Figura 11: Fluxograma de Execução do Código CINDER-2.

3.2.2 O CÓDIGO TFP

O código TFP criado a partir da metodologia de cálculo do CINDER-2 tem o intuito de solucionar as complicadas cadeias de acoplamento através da técnica de linearização de cadeias. Não somente no combustível ( $UO_2$ ), mas também no gap e o no fluido refrigerante do primário.

O caminho trilhado para solucionar esta questão foi contrário ao estabelecido para o CINDER-2, ou seja, ao invés de reduzir o número de cadeias lineares originais, o que ocorreu foi uma ampliação desse número, isso devido ao acoplamento existente entre as equações de balanço das três regiões envolvidas nos cálculos, através das fontes geradoras dos nuclídeos.

Como especificado no capítulo 2, os nuclídeos gerados no combustível (região 1) escapam desse meio para o gap (região 2) por três processos: Recuo, Knockout e Migração, e chegam até o fluido refrigerante (região 3), por intermédio de falhas ou rupturas que ocorrem no revestimento das varetas combustíveis durante a operação do reator. Como consequência dessas liberações, surge a necessidade de conhecer o comportamento desses nuclídeos mediante seus acoplamentos nas regiões.

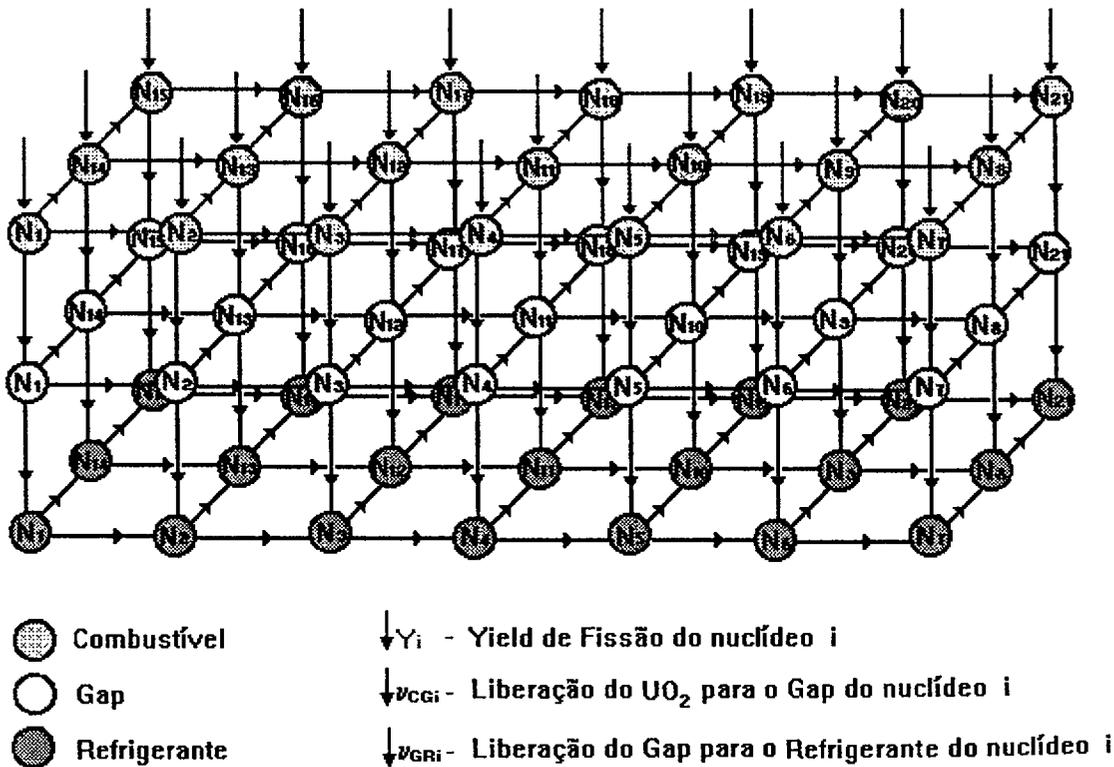


Figura 12: Representação da Geração e Acoplamento dos Nuclídeos em 3 Dimensões.

Essa representação ilustra o acoplamento dessas duas novas regiões e fornece uma configuração à cadeia original com três dimensões, onde cada plano horizontal representa uma região. Essa representação tridimensional, para ser tratada deverá sofrer uma nova linearização, onde, o primeiro passo desse linearização consiste em definir superfícies verticais conservando sempre nas regiões os núcleos envolvidos nesse processo. Esses planos verticais podem ser feitos longitudinal ou transversalmente.

O segundo passo para a linearização dessas novas cadeias consiste em definir os caminhos ou as possibilidades de geração dos núcleos nas regiões estabelecidas. Como exemplo ilustrativo tem-se a geração de quatro núcleos na forma de três dimensões:

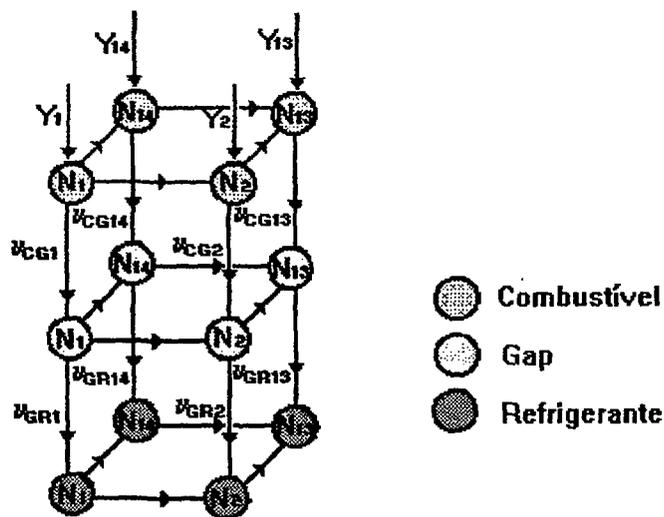


Figura 13: Representação da Geração dos Núcleos em 3 Dimensões

A formulação de acoplamento entre essas regiões é simples, pois é assumido que a geração desse nuclídeo ( $N_i$ ) ocorre em uma única direção: ( $UO_2 \rightarrow$  Gap  $\rightarrow$  Refrigerante). Nesse caso, não haverá uma produção do nuclídeo  $N_i$  em direção oposta ao caminho estabelecido. Considerando ainda a figura 13, escolhe-se superfícies verticais tal que seja preservado a estrutura de cadeias lineares pré-estabelecido no CINDER-2.

Por exemplo, para uma cadeia de transmutação de quatro núcleos representando a região 1 (Combustível-C) no plano, tem-se:

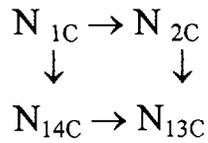


Figura 14: Arranjo de 4 Nuclídeos Representando a Região 1.

Se o arranjo da figura 14 for linearizado as cadeias lineares formadas serão:

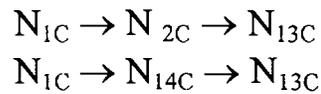


Figura 15: Cadeias Lineares de 4 Nuclídeos Originais.

A linearização do arranjo da figura 14 decompõe a cadeia de 4 nuclídeos originalmente em 2 cadeias lineares de 3 nuclídeos cada uma, como mostrado na figura 15.

Admitindo além da região 1 o acoplamento de duas outras regiões (Gap-G e Refrigerante-R) o arranjo de três nuclídeos representando as regiões estabelecidas terá assim dois planos. A linearidade das equações e o processo de Markov garantem a decomposição nesses planos, que podem ser representados da seguinte forma:



Figura 16: Arranjo de 3 Nuclídeos Representando as Três Regiões

Linearizando o plano I da figura 16, considerando o acoplamento das três regiões (Combustível-C, Gap-G e Refrigerante-R), caracterizará um processo de dupla linearização das cadeias da figura 13. Portanto, as cadeias linearizadas desse plano serão:

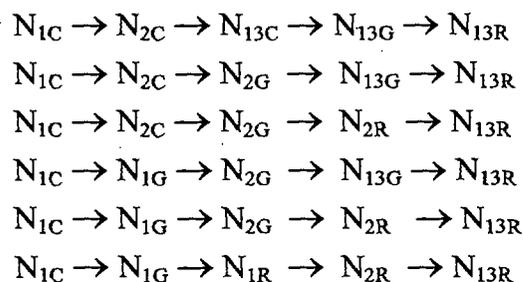


Figura 17: Cadeias Lineares com 3 Nuclídeos Originais e Regiões.

Como foi verificado nas cadeias lineares do CINDER-2, deve ser observado para as novas cadeias lineares, como estabelecido na figura 17, o processo de soma das densidades parciais. Neste caso, deve ser considerado o critério de análise parcial do nuclídeo, admitindo a verificação dos nuclídeos na soma (in-sum) e fora da soma (out-of-sum). Essa soma deverá ser executada respeitando a região onde esta localizado o respectivo nuclídeo.

Do exposto, pode-se concluir que o número de nuclídeos nas cadeias lineares dependem da quantidade de nuclídeos das cadeias originais da biblioteca de dados do CINDER-2. Portanto, o número de nuclídeos por cadeia linear é a soma da quantidade de nuclídeos originais mais a quantidade de novas regiões. Isso é mostrado pela seguinte expressão:

$$NN = NO + NR \quad (27)$$

onde:

- NN - nuclídeos por cadeia nova
- NO - núclídeos na cadeia original
- NR- número de regiões

O número de novas cadeias é a soma progressiva dos núclídeos existentes na cadeia original, ou seja, o primeiro núclídeo mais o segundo mais o terceiro até o n-ésimo núclídeo da cadeia, sendo que, o n-ésimo núclídeo corresponde a quantidade de núclídeos originais presente na cadeia. Isso é representado pela equação:

$$NC = \sum_{i=1}^{NO} i \tag{28}$$

onde:

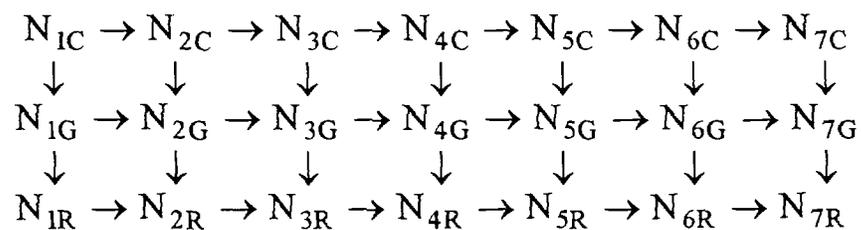
NC - número de cadeias novas

NO - núclídeos na cadeia original

i - núclídeo da cadeia

Essa nova sistemática de compor as cadeias linearmente, proporciona um crescimento na configuração e no arranjo das novas cadeias. Esta nova forma de arranjar as novas cadeias cria uma regra básica para “montar” qualquer cadeia ou grupo de cadeias, independente da quantidade de núclídeos que elas venham a possuir. Sendo essa regra denominada de “regra do desdobramento”.

Se for aplicado a regra do desdobramento no arranjo que representa a maior quantidade de núclídeos distribuídos linearmente entre as três regiões de estudo, e que serão obviamente tratados pelo código TFP, tem-se:



C, G e R - ambientes do Combustível, Gap e Refrigerante.

Figura 18: Arranjo Representativo de Núclídeos Acopladas nas Três Regiões de Cálculo.

Portanto, esse arranjo fornecerá um desdobramento em 28 cadeias lineares de 9 núclídeos cada uma delas, perfazendo um total de 252 núclídeos individuais.

A metodologia de cálculo proposta pelo código TFP consiste em preservar as cadeias lineares do CINDER-2 e aplicar a cada uma delas a regra do desdobramento, incluindo evidentemente o acoplamento entre as regiões 2 e 3. No entanto, mesmo conservando a metodologia de cálculo original aplicada as cadeias lineares do CINDER-2, a complexidade do problema aumenta significativamente, pois, para cada cadeia linear original, existe uma série de novas cadeias lineares, como visto no exemplo de aplicação da regra do desdobramento na Figura 17.

Nessa complexidade inclui também a somatória das concentrações parciais de cada núclídeo envolvido no cálculo, a qual deverá ser feita duas vezes, ou seja, uma primeira vez para as cadeias lineares originais e uma segunda vez para as cadeias lineares desdobradas, sendo que, essas somatórias devem respeitar a região onde encontram-se esses núclídeos. Essas somatórias parciais só ocorrem se o núclídeo analisado estiver de acordo com o critério de soma (in-sum), caso contrário, sua contribuição parcial não será incluída na concentração total em cada região.

### 3.2.3 SELEÇÃO DOS NUCLÍDEOS UTILIZADOS NO CÓDIGO TFP

A determinação do número de nuclídeos em uma nova cadeia linear foi feita a partir das considerações do capítulo 2, sobre as propriedades dos nuclídeos, meia-vida e importância radiológica. Mediante a isso, relacionou-se os nuclídeos mais importantes e que por conseguinte deveriam estar contidos na lista de nuclídeos da norma ANSI/ANS 18.1 <sup>19</sup>, que relaciona todos os nuclídeos encontrados no fluido refrigerante do primário de um reator nuclear durante a operação.

Outro critério de seleção foi a ocorrência do nuclídeo principal da cadeia por mais de uma vez no somatório das frações parciais e o último critério de seleção foi a exclusão das cadeias lineares que estavam repetidas.

Essas simplificações e considerações tornou possível tratar as cadeias lineares dos produtos de fissão devido à redução sofrida no número de cadeias originais que era 102 e passou a ser 37 e também no número de nuclídeos originais que era 211 e passou a ser 77.

Uma outra consideração importante foi feita aos actinídeos, admitindo-se que os elementos combustíveis estariam presentes entre o <sup>235</sup>U e o <sup>241</sup>Pu. Essa consideração reduziu as cadeias lineares dos actinídeos de 39 para 8 cadeias e de 46 nuclídeos para 14. As cadeias lineares reduzidas dos actinídeos estão mostradas na Figura 19 e as dos produtos de fissão estão mostradas na Figura 20.

- 1 . U235-U236- U237-U238-U239-NP239-PU239-PU240-PU241
- 2 . U235-U236- U237-NP237-NP238-NP239-PU239-PU240-PU241
- 3 . U235-U236- U237-NP237-NP238-PU238-PU239-PU240-PU241
- 4 . U235-U236- U237-U238-NP239-PU239-PU240-PU241
- 5 . U238-U237- NP237-NP238-PU238-U234
- 6 . U238-NP239- NP240-PU240-PU241
- 7 . U238-U239- NP239-NP240m-PU240-PU241
- 8 . U238-NP239-PU239-PU238

Figura 19: Cadeias Lineares dos Actinídeos Tratadas pelo Código TFP

- |  |  |
|--|--|
| 1 . Kr85m  | 20 . Te131m-I131-Xe131-Xe132-Xe133             |
| 2 . Kr85m-Kr85                                   | 21 . Te131m-I131-I132-Xe132-Xe133              |
| 3 . Kr87-Rb87-Rb88                               | 22 . Te132-I132-Xe132-Xe133-Cs133-Cs134        |
| 4 . Kr88-Rb88                                    | 23 . Te132-I132-Xe132-Xe133m-Xe133             |
| 5 . Kr89-Rb89-Sr89                               | 24 . I133-Xe133-Xe134-Xe135-Cs135-Cs136        |
| 6 . Sr90-Sr91-Y91                                | 25 . I133-Xe133m-Xe133                         |
| 7 . Y93-Zr93                                     | 26 . I133-Xe133-Cs133-Cs134                    |
| 8 . Zr94-Zr95-Nb95                               | 27 . Te134-I134-Xe134-Xe135-Cs135-Cs136        |
| 9 . Zr94-Zr95-Nb95m                              | 28 . I135-Xe135-Cs135-Cs136                    |
| 10 . Zr94-Zr95-Nb95m-Nb95                        | 29 . I135-Xe135-Xe136 -Xe137-Cs137             |
| 11 . Zr96-Zr97-Nb97-Mo97-Mo98-Mo99-Tc99m         | 30 . I135-Xe135m-Xe135-Cs135-Cs136             |
| 12 . Mo98-Mo99                                   | 31 . I135-Xe135m-Xe135-Xe136-Xe137-Cs137       |
| 13 . Ru106-Pd106-Pd107-Pd108-Pd109-Ag109- Ag110m | 32 . Xe137-Cs137-Ba137-Ba138-Ba139-La139-La140 |
| 14 . Sb128-Te128-Te129-I129                      | 33 . Xe138-Cs138-Ba138-Ba139-La139-La140       |
| 15 . Sb128-Te128-Te129m-Te129-I129               | 34 . Ba140-La140-Ce140-Ce141                   |
| 16 . Sb128-Te128-Te129m-I129                     | 35 . Ba141-La141-Ce141                         |
| 17 . Sb129-Te129m-Te129-I129                     | 36 . Ba142-La142-Ce142-Ce143                   |
| 18 . Sb129-Te129-I129                            | 37 . Ce143-Ce144                               |
| 19 . Sb129-Te129m-I129                           |  |

Figura 20: Cadeias Lineares dos Produtos de Fissão Tratadas pelo Código TFP

O processo de cálculo do código TFP é semelhante ao estabelecido no CINDER-2, com relação aos actínídeos. Para os actínídeos, é determinado primeiramente suas concentrações através dos parâmetros estabelecidos originalmente nas bibliotecas de dados para as suas correspondentes cadeias lineares. Para os produtos de fissão, a metodologia de cálculo é diferente devido as modificações feitas com respeito à nova configuração das cadeias lineares originais.

O código TFP executará simultaneamente o cálculo da concentração (atividade) dos produtos de fissão no núcleo, no gap e no fluido refrigerante do primário do reator analisado durante sua operação. Além desses valores, ele também determina as seções de choque macroscópicas, os fluxos de neutrons, as densidades atômicas para cada intervalo de tempo ( $\Delta t$ ) através das equações de balanço radioativo.

As cadeias lineares dos actínídeos e dos produtos de fissão são manipuladas igualmente ao formato original, admitindo a verificação dos nuclídeos na soma (in-sum = 1) e fora da soma (out-of-sum = 0) para a obtenção da concentração total individual através da soma das frações parciais. Os outros cálculos, como análise de erro e verificação de precisão, são executados normalmente no TFP, como na forma original.

Além dos termos originalmente existentes nas bibliotecas de dados, outros termos como o tipo de nuclídeo e a região onde encontra-se o nuclídeo, estão presentes no código TFP.

Alguns parâmetros iniciais necessários para a execução do código TFP, são basicamente os mesmos utilizados no CINDER-2, com a inclusão de outros como:

- (1) diâmetro da pastilha combustível (cm);
- (2) altura ativa do combustível (cm);
- (3) vazão de purificação do refrigerante do primário ( $\text{cm}^3/\text{s}$ );
- (4) volume do fluido refrigerante do primário ( $\text{cm}^3$ );
- (5) temperatura média do fluido refrigerante do primário ( $^{\circ}\text{C}$ ).

Um exemplo de dados de saída (fornecidos) pelo código TFP no final de cada intervalo de tempo, para cada nuclídeo individual, está mostrado na Tabela 4.

Tabela 4: DADOS DE SAÍDA DO CÓDIGO TFP

**Kr 85m**

TIME STEP	INTERVALO DE TEMPO (horas)	FLUXO TÉRMICO ( $\text{n}/\text{cm}^2.\text{s}$ )	BURNUP (MWD/T)	ATIVIDADE NÚCLEO (Ci)	ATIVIDADE GAP (Ci)	ATIVIDADE REFRIGERANTE (Ci)
1	1,0000E+3	2,6966E+13	4,7852E+02	1,6900E-03	6,4693E-04	2,4764E-04
2	2,0000E+3	5,3485E+13	9,5725E+02	3,3456E-03	1,2807E-03	4,9026E-04
3	3,0000E+3	7,9541E+13	1,4355E+03	4,9558E-03	1,8971E-03	7,2622E-04
4	4,0000E+3	1,0520E+14	1,9132E+03	6,5242E-03	2,4975E-03	9,5604E-04
5	5,0000E+3	1,3051E+14	2,3906E+03	8,0538E-03	3,0830E-03	1,1802E-03

A forma de execução do cálculo do termo-fonte pelo código TFP para cada nuclídeo, dentro do combustível ( $\text{UO}_2$ ), acumulado no gap e liberado para o fluido refrigerante do primário devido a falhas nas varetas combustíveis está mostrado no fluxograma ilustrativo da Figura 21.

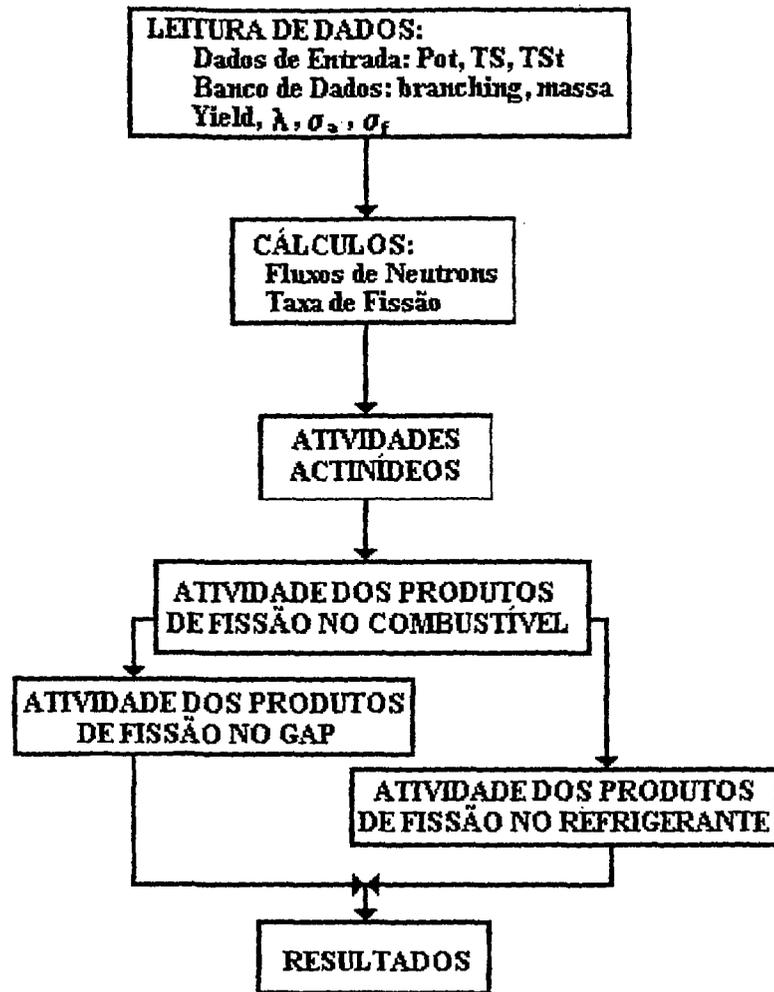


Figura 21: Fluxograma de Execução do Código TFP.

Todas as modificações, implementações e alterações feitas na lógica computacional do código CINDER-2 para a formulação do código TFP levaram à uma redução nas bibliotecas de dados e no programa principal (fonte) em cerca de 50% do original, principalmente para os actinídeos.

As melhorias trazidas por essa nova filosofia de cálculo do termo-fonte beneficiaram a análise do inventário radioativo no fluido refrigerante do primário de um reator nuclear durante sua operação, intermitentemente.

### 3.3 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 3

- /1/ ENGLAND, T. R.; *CINDER- A One-Point Depelition and Fission Product Program*, Westinghouse Eletric Corporation, report WAPD-TM-334 (1962, Rev.1964).
- /2/ GANDINI,A.; *Time-Dependent Generalized Pertubation Theory for burnup Problems*, CNEN RT/FI (75), 4, Comitato Nazionale per l'Energia Nucleare, Rome (1975).
- /3/ WILLIAMS, M. L.; *Nuclear Sci. Eng.*, 70, 20 (1979).
- /4/ WILLIAMS, M. L.; *Pertubation Theory and Sensitivity Theory for Reactor Burnup Analysis*, ORNL-TM-7096, Oak Ridge National Laboratory (1979).
- /5/ GANDINI, A., SALVATORES, M. and TONDINELLY, L.; *Nuclear Sci. Eng.*, 62, 339 (1977).
- /6/ SMITH, D. R.; *Variational Methods in Optimization*, Princeton Hall, Inc., Englewood Cliffs, NJ (1974).
- /7/ FOWLER, T. and VONDY, D.; *Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION*, ORNL-TM-2496, Rev. 2, Oak Ridge National Laboratory (1971).
- /8/ TONDINELLY, L.; *Sensitivity of Actinides Concentration During Burnup With Respect to Nuclear Data*, CNEN RT/FI (76), Comitato Nazionale per l'Energia Nucleare, Rome (1976).
- /9/ SCHETER, R. E.; *Fission Product and Actinide Data Evaluation for ENDF/B-IV*, Trans. Am. Nucl. Soc., 28:738-9, 1978.
- /10/ WILSON, W. B.; ENGLAND, T. R.; LABAUVE, R. J.; BATTAT, M. E.; WESSOL,D. E.; PERRY,R. T.; *Status of Cinder and ENDF/B-V Basead Libraries for Transmutation Calculations In: Nuclear Waste Transmutation Proceedings of the International Conference on...*, held in Austin, TX, July 22-24, 19880. (LA-UR-82-2107)
- /11/ SANTOS, Adimir: *A Differential Approach to Sensitivity Analysis Applied to Transmutation Analysis Problems*, Wisconsin, University of Wisconsin-Madison, April 1983 (Thesis of Ph. D.).
- /12/ RALL, L. B.; *Computation Solution of Nonlinear Operator Equation*, New York, Wiley, 1960.

- /13/ ENGLAND, T. R.; WILSON, STAMATELATOS, M. G.; *Fission Product Data for Thermal Reactors*, A Data Set for EPRI-CINDER Using ENDF/B-V, Paolo Alto, CA. Electric Power Research Inst., 1976. (EPRI-NP-356).
- /14/ ABE, Alfredo Y.; *Análise de Transmutação Considerando o Tratamento Explícito dos Produtos de Fissão num Sistema Acoplado, Composto pelos Códigos HAMMER-TECHNION e CINDER-2*, São Paulo, IPEN/CNEN, 1990. (Dissertação de Mestrado).
- /15/ WILSON, W. B. & ENGLAND, T. R.; OZER, O.; WESSOL, D. E.; *Actinide Decay Power*, Trans. Am. Nucl. Soc., 32:737,1979.
- /16/ DICKENS, J. K.; EMERY, J. F.; LOVE, T.A.; McCONNEL, J. W.; NORTH CUT, K. J.; PEELE, R. W.; WEAVER, H.; *Fission Product Energy Release of U235 Between 2 and 1400 sec*, Oak Ridge, TN, Oak Ridge National Lab., Jan. 1980. (ORNL-NUREG-14)
- /17/ ENGLAND, T. R.; STAMATELATOS, M. G.; *Comparison of Calculated and Experimental Delayed Fission Product Beta and Gamma Spectra from U235 Thermal Fission*, Los Alamos, N. M., Los Alamos Scientific Lab., 1977. (LA-NUREG-6896-MS)
- /18/ WILSON, William B.; *User Information on Interim Cinder-2 Code and Data*, Nuclear Data Group (T-2), Electric Power Research Instituto (EPRI), (Improved) 1982. (LA-5885-MS)
- /19/ AMERICAN NATIONAL STANDARD; *Source Term Specification*, American National Standards Instituto. INC, (ANSI/ANS 18.1 -1984).

## CAPÍTULO 4

- 4.1 INTRODUÇÃO
- 4.2 CERTIFICAÇÃO DA METODOLOGIA MATEMÁTICA DO CÓDIGO TFP
- 4.3 APLICAÇÃO DO MODELO PARA UM REATOR EM OPERAÇÃO
  - 4.3.1 DADOS OPERACIONAIS DO REATOR ANALISADO
  - 4.3.2 PERFIL OPERACIONAL DO REATOR ANALISADO
- 4.4 ANÁLISE NUMÉRICA DO RECUO, KNOCKOUT, MIGRAÇÃO E LIBERAÇÃO PARA O FLUIDO REFRIGERANTE DO PRIMÁRIO
- 4.5 TERMO-FONTE DO REATOR ANALISADO E ANÁLISE DOS RESULTADOS
  - 4.5.1 TERMO-FONTE DO REATOR ANALISADO
  - 4.5.2 ANÁLISE DOS RESULTADOS
- 4.6 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 4

## 4.1 INTRODUÇÃO

O único meio de conectar as equações de balanço com as regiões estabelecidas é através das liberações simultâneas dos núclídeos. Essa conexão faz com que as liberações tenham uma influência grande no termo-fonte radioativo. Baseando-se nesta influência, faz-se uma certificação da metodologia matemática utilizada no código TFP.

Uma vez feita essa certificação, determina-se o termo-fonte radioativo de um reator nuclear de grande porte empregando os dados operacionais do mesmo no código TFP. Essa determinação servirá para uma comparação dos dados calculados teóricamente com os medidos no fluido refrigerante do primário desse reator durante sua operação. O intuito dessa comparação é verificar a consistência matemática do modelo empregado nesse trabalho.

Na verificação da consistência será considerado o perfil operacional do reator com a potência variando durante o tempo de operação e um nível de defeito característico, na forma de pequenos furos, como falha do revestimento das varetas combustíveis.

## 4.2 CERTIFICAÇÃO DA METODOLOGIA MATEMÁTICA DO CÓDIGO TFP

O código TFP possui uma metodologia de cálculo própria, onde, as frações parciais dos núclídeos são calculadas duas vezes, uma para as cadeias originais do CINDER-2 e outra para as cadeias lineares desdobradas nas outras duas regiões.

Essa metodologia de cálculo foi verificada considerando justamente as concentrações parciais dos núclídeos nas três regiões tratadas pelo modelo empregado nesse trabalho.

O primeiro passo para essa verificação consiste em considerar a lei da conservação das massas, ou seja, nenhuma massa ou concentração irá desaparecer do sistema apenas ela será redistribuída nas três regiões estabelecidas, admitindo, evidentemente, que o sistema de purificação não esteja em operação. Isso é feito para que não haja a remoção dos núclídeos que foram liberados para o fluido refrigerante do primário.

O segundo passo consiste em considerar que a geração dos núclídeos só ocorra em um sentido. Dessa forma, é possível admitir que: um núclídeo criado na pastilha combustível só poderá ser liberado desse meio para o gap, e se esse mesmo núclídeo estando agora no gap, só poderá ser liberado para o fluido refrigerante do primário.

O primeiro passo indica que não haverá perda de massa e o segundo que haverá uma ocorrência simultânea de concentrações nas regiões, isso evidencia que não houve perda de massa em qualquer região, e sim, uma redistribuição das mesmas.

O terceiro passo será mostrar através das equações de balanço radioativo os comportamentos e os fenômenos envolvidos para criar e liberar os núclídeos gerados no combustível, segundo o que foi especificado nos dois primeiros passos.

As equações de balanço radioativo que determinam as gerações e perdas dos núclídeos para o gap e do gap para o fluido refrigerante, utilizadas pelo código TFP, são as seguintes:

EQUAÇÃO NO NÚCLEO (Original)

$$\frac{dN_{ic}}{dt} = \sum_K Y_{ic}^K \cdot S^K + \gamma_{i-1} \cdot N_{i-1} - (v_{ic} + \lambda_{ic} + A_{ic}) \cdot N_{ic} \quad (29)$$

EQUAÇÃO NO GAP

$$\frac{dN_{iG}}{dt} = v_{iC} \cdot N_{iC} + \gamma_{i-1} \cdot N_{i-1} - (v_{iG} + \lambda_{iG} + A_{iG}) \cdot N_{iG} \quad (30)$$

EQUAÇÃO NO REFRIGERANTE

$$\frac{dN_{iR}}{dt} = v_{iG} \cdot N_{iG} + \gamma_{i-1} \cdot N_{i-1} - (v_{iR} + \lambda_{iR} + A_{iR}) \cdot N_{iR} \quad (31)$$

A primeira equação descreve os eventos de formação e perda do nuclídeo Ni no núcleo ou na primeira região, a segunda descreve os eventos também de formação e perda desse mesmo nuclídeo no gap ou segunda região e a terceira equação descreve os eventos de perda e formação ainda do nuclídeo Ni no fluido refrigerante do primário ou terceira região.

Os eventos de formação desse nuclídeo Ni na primeira região ocorrem devido a produção direta pela fissão e pelo acoplamento desse nuclídeo com o nuclídeo "pai" ou "filho". As perdas nessa região são causadas pelo decaimento radioativo, pela reação de absorção e pela liberação desse nuclídeo da primeira região para a segunda região.

Essa explanação à respeito das gerações e perdas do nuclídeo Ni nas três regiões estabelecidas, foi para que pudesse ser apresentada a metodologia utilizada na verificação da lógica computacional e estrutura de cálculo utilizadas pelo código TFP na determinação das concentrações parciais do nuclídeo Ni nas respectivas regiões.

Fundamentado nas considerações sobre a verificação da metodologia e na explanação sobre as perdas e gerações do nuclídeo Ni no sistema é simples observar que as concentração do nuclídeo Ni calculada originalmente só na pastilha combustível é agora calculada através das concentrações parciais desse nuclídeo em cada região correspondente, ou seja, a concentração total desse nuclídeo no sistema é dada pela soma das concentrações parciais calculadas na pastilha combustível, no gap e no refrigerante. Somando as equações 29, 30 e 31 e assumindo que as seções de choque são independentes da região, tem-se:

$$\frac{d}{dt}(N_{iC} + N_{iG} + N_{iR}) = \sum_K Y_{iC}^K S^K + \gamma_{i-1}(N_{iC} + N_{iG} + N_{iR}) - (\lambda_i + A_i + v_i)(N_{iC} + N_{iG} + N_{iR}) \quad (32)$$

Apresentando de forma mais compacta a expressão acima tem-se:

$$\frac{d \sum_{r=1}^3 N_{ir}}{dt} = \sum_K Y_{iC}^K \cdot S^K + \gamma_{i-1} \cdot \sum_{r=1}^3 N_{ir} - \beta_i \cdot \sum_{r=1}^3 N_{ir}, \quad \text{onde: } \begin{array}{l} r=1 \text{ (Combustível)} \\ r=2 \text{ (Gap)} \\ r=3 \text{ (Refrigerante)} \end{array} \quad (33)$$

Vale observar que, a expressão acima é igual a equação de balanço radioativo original no combustível, ou seja, eq.(5) no capítulo 2, e que, essa semelhança atesta a consideração feita para verificar a metodologia de cálculo através da redistribuição das concentrações.

Uma outra forma de verificar essa metodologia consiste em admitir que as taxas de liberação do nuclídeo Ni da pastilha combustível para o gap ( $v_{Ci}$ ) e do gap para o refrigerante ( $v_{Gi}$ ) sejam as principais formas de liberação, prevalecendo sobre o decaimento radioativo e a absorção neutrônica. A taxa de liberação desse nuclídeo na terceira região ( $v_{Ri}$ ) é considerada igual a zero.

A produção e a perda do nuclídeo Ni nas regiões serão marcadas pelas grandes taxas de liberações, principalmente com relação as perdas. Como o principal termo de perda desse nuclídeo são as liberações, serão admitidos valores numéricos elevados para essas liberações. Esses valores serão escolhidos aleatoriamente.

Os valores escolhidos aleatoriamente para as taxas de liberações radioativas da pastilha combustível para o gap, do gap para o fluido refrigerante e do fluido refrigerante para outros sistemas da planta, são os seguintes:

Tabela 5: TAXAS ALEATÓRIAS DE LIBERAÇÃO DO  $UO_2$ , DO GAP E DO REFRIGERANTE.

TAXAS DE LIBERAÇÃO		
COMBUSTÍVEL ( $UO_2$ )	GAP	REFRIGERANTE
0,40	0,60	0

Aplicando essas taxas de liberação nas equações de balanço radioativo, juntamente com os dados estabelecidos para os nuclídeos no caso exemplo no CINDER-2, obtem-se as atividades desses

nuclídeos. Para representar o comportamento metodológico, será admitido como nuclídeo de análise o KR-85m. Portanto, as atividades determinadas considerando as taxas aleatórias de liberação em 5 intervalos de tempo (time-step), são:

Tabela 6: ATIVIDADES DO KR85m MEDIANTE LIBERAÇÕES ALEATÓRIAS.

TIME-STEP	UO <sub>2</sub> (Ci)	GAP (Ci)	REFRIGERANTE (Ci)	TOTAL * (Ci)
1	1,15485E-04	7,69849E-05	1,07476E+00	1,07495E+00
2	1,13569E-04	7,57070E-05	1,05692E+00	1,05711E+00
3	1,11587E-04	7,43857E-05	1,03847E+00	1,03866E+00
4	1,09878E-04	7,32471E-05	1,02258E+00	1,02276E+00
5	1,08396E-04	7,22588E-05	1,00878E+00	1,00896E+00

\* Valores expressos em Ci/cm<sup>3</sup> de UO<sub>2</sub>

Os valores numéricos das atividades determinados pelo código TFP e pelo CINDER-2, para o mesmo caso exemplo considerando as taxas aleatórias de liberação, estão apresentados na tabela 7:

Tabela 7: ATIVIDADES DO KR85m DETERMINADAS PELO TFP E CINDER-2.

TIME-STEP	TFP* (Ci)	CINDER-2* (Ci)
1	1,07495E+00	1,07495E+00
2	1,05711E+00	1,05711E+00
3	1,03866E+00	1,03866E+00
4	1,02276E+00	1,02276E+00
5	1,00896E+00	1,00896E+00

\* Valores expressos em Ci/cm<sup>3</sup> de UO<sub>2</sub>

Comparando os valores determinados pelo código TFP com os determinados originalmente pelo CINDER-2, nota-se que os mesmos são semelhantes, e isso prova novamente que a metodologia de cálculo estabelecida para o código TFP está correta.

Representando graficamente os valores das atividades calculadas pelo TFP (total) e pelo CINDER-2 no combustível  $UO_2$  (original), tem-se o seguinte:

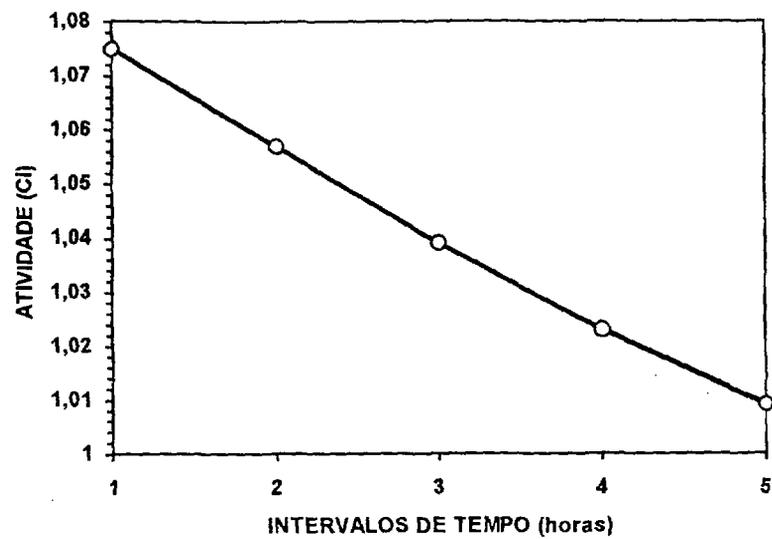


Figura 22: Concentrações do KR-85m no  $UO_2$  e no Refrigerante para 5 Time-Step.

Não havendo nenhuma discrepância entre os valores calculados por ambos os códigos, o gráfico representativo das atividades em função dos intervalos de tempo é concordante.

### 4.3 APLICAÇÃO DO MODELO PARA UM REATOR EM OPERAÇÃO

Tendo estabelecido o modelo para o cálculo do termo-fonte de um reator através da metodologia utilizada no código TFP, resta agora verificar se esse modelo consegue definir valores numéricos que possam ser comparados com valores medidos no fluido refrigerante do primário.

Essa comparação será feita para verificar a consistência das equações que calculam as frações de escape dos núclídeos da pastilha combustível para o gap e do gap para o fluido refrigerante.

Para fazer o mencionado acima, é necessário definir um reator que tenha seus dados operacionais, seu histórico de queima ou histórico de potência e seu período operacional conhecido, assim como, e principalmente, os valores numéricos do inventário radioativo medido durante sua operação. Esse reator deverá ser do tipo PWR.

O reator escolhido como referência do cálculo do termo-fonte foi o SURRY-1, reator de grande porte que opera com uma potência térmica de até 2544 MW e que possui o revestimento das varetas combustíveis de zircaloy-4. Seu primeiro "startup" foi em dezembro de 1973 <sup>1,2</sup>, e continua operando até o presente momento.

A identificação e a quantidade de núclídeos presentes no fluido refrigerante são importantes, pois o modelo está muito atrelado a essas informações, principalmente no que diz respeito à verificação das taxas de liberação desses núclídeos do gap para o fluido refrigerante do primário <sup>3</sup>.

### 4.3.1 DADOS OPERACIONAIS DO REATOR ANALISADO

É importante ressaltar que os dados operacionais da planta analisada devem ser verificados com muito cuidado, para que no momento da simulação do comportamento operacional, dados de entrada como seção de choque, concentrações iniciais dos núclídeos físseis e razões de fluxos, que são determinados previamente, necessitam ser corretos.

Os dados operacionais da SURRY-1 a serem utilizados na simulação do seu comportamento operacional e do seu termo-fonte, são os seguintes <sup>4,5,6,7,8</sup>:

Tabela 8: DADOS OPERACIONAIS DA SURRY-1

DADOS OPERACIONAIS	VALORES	UNIDADES
Enriquecimento Médio no Núcleo	2,50	%
Densidade do UO <sub>2</sub>	8,706	g/cm <sup>3</sup>
Densidade do Fluido Refrigerante	0,727	g/cm <sup>3</sup>
Diâmetro da Pastilha Combustível	0,940	cm
Diâmetro Externo do Revestimento	1,070	cm
Diâmetro Interno do Revestimento	0,946	cm
Comprimento Ativo do Combustível	366	cm
Distância Entre os Centros de duas Varetas (Pitch)	1,430	cm
Massa do Fluido Refrigerante	2,5E+08	g
Vazão de Purificação do Fluido Refrigerante	2,763E+03	g/s
Temperatura da Pastilha Combustível (Média Máxima)	1800	°C
Temperatura Média do Fluido Refrigerante	301	°C
Pressão do Sistema do Circuito Primário	154	bar
Potência Específica Média no Núcleo	92	W/cm <sup>3</sup>

Como cada reator possui sua própria característica, é necessário determinar parâmetros a serem utilizados como dados de entradas do código TFP. Esses parâmetros são determinados por outro código chamado de HAMMER-TECHNION <sup>9</sup>, que resolve a equação de transporte de neutrons em um intervalo de tempo discretizado durante o tempo de queima ou de operação do reator analisado, fornecendo assim: razões de fluxos e seções de choque microscópica em quatro grupos de energia.

Os nuclídeos e as correspondentes atividades específicas medidas no fluido refrigerante durante o primeiro ano de operação do SURRY-1 estão divididos em classes de acordo com suas propriedades nucleares e físico-químicas, como estabelecido no Capítulo 2 deste trabalho, e colocado com muita propriedade pela norma ANSI/ANS 18.1 (1984) <sup>11</sup>, na tabela 9 a seguir:

Tabela 9: TERMO-FONTE DA SURRY-1 NO PRIMEIRO ANO DE OPERAÇÃO ( $\mu\text{Ci/gH}_2\text{O}$ ) <sup>2</sup>.

NUCLÍDEOS	ATIVIDADES
CLASSE 1 - GASES NOBRES	
<sup>85m</sup> Kr	4.26E-03
<sup>85</sup> Kr	2,01E-01
<sup>87</sup> Kr	7,86E-04
<sup>88</sup> Kr	5,67E-03
<sup>133m</sup> Xe	3,28E-03
<sup>133</sup> Xe	1,42E-01
<sup>135</sup> Xe	3,29E-02
CLASSE 2 - HALOGÊNIO	
<sup>131</sup> I	8.26E-04
<sup>132</sup> I	1,22E-03
<sup>133</sup> I	4,89E-03
<sup>134</sup> I	1,17E-03
<sup>135</sup> I	5,20E-03
CLASSE 3 - METAIS ALCALINOS	
<sup>134</sup> Cs	4.07E-04
<sup>136</sup> Cs	2,04E-04
<sup>137</sup> Cs	1,54E-03
<sup>138</sup> Cs	1,58E-03
CLASSE 4 - DEMAIS NUCLÍDEOS	
<sup>99</sup> Mo	8.47E-05
<sup>140</sup> La	9.32E-05

Apesar da quantidade de nuclídeos e atividades presentes nessa Tabela não corresponderem a quantidade mostrada na norma ANSI/ANS 18.1, isso não impede que eles sejam utilizados na análise da taxa de escape do gap para o fluido refrigerante e na confirmação da metodologia de cálculo e modelo utilizados nesse trabalho.

Verifica-se ainda na tabela 9 que o número de classes é igual a quatro (4), enquanto que a quantidade apresentada na norma é igual a seis (6). Isso é explicado pela ausência dos produtos de ativação da água, produtos de corrosão ativados e do trítio. Essas classes não são mostradas nessa tabela por motivos já explicitados no primeiro capítulo desse trabalho.

### 4.3.2 PERFIL OPERACIONAL DO REATOR ANALISADO

O perfil operacional adotado para simular a queima do combustível da SURRY-1 e evidentemente analisar o seu termo-fonte de acordo com os valores medido (Tabela 10) no primeiro ano de operação <sup>1,2</sup> e para fazer uma modelagem mais realística possível da sua operação durante esse período é mostrado na Tabela 10 a seguir:

Tabela 10: PERFIL OPERACIONAL DA SURRY-1

NÚMERO DE INTERVALOS DE TEMPO	PERÍODO OPERATIVO (Dias)	PERÍODO OPERATIVO (Horas)	TEMPO DE OPERAÇÃO (Dias)*	POTÊNCIA DE OPERAÇÃO (W/cm <sup>3</sup> )
1	2	48	2	30,36
2	4	96	6	30,36
3	15	360	21	00,00
4	23	552	44	69,00
5	18	432	62	75,44
6	17	408	79	80,96
7	32	768	111	82,80
8	24	576	135	83,72
9	22	528	157	87,40
10	15	360	172	80,96
11	9	216	181	87,40

\* Corresponde ao período acumulado de operação do reator analisado.

Na tabela 10 nota-se que cada intervalo de tempo possui um período operativo correspondente dentro do tempo total de operação do reator, e que, em cada um desses períodos, é estabelecida uma potência de operação. Assim sendo, essa divisão é fundamentada na variação da potência do reator durante a operação, e a mesma é na verdade a queima do combustível ou o seu "burnup".

Essa divisão em intervalos de tempo é necessária para executar os cálculos da queima do combustível e a determinação da concentração dos produtos de fissão pelo código TFP, mediante a inclusão dos mesmos como dados de entrada para definir o perfil operacional do reator a ser seguido durante a simulação. É bom lembrar que, os intervalos de tempo devem ser expressos em horas.

A representação gráfica do perfil operacional do reator analisado nos primeiros 181 dias no primeiro ano de operação e também dos intervalos de tempo utilizados como dados de entrada no código TFP para a modelagem é mostrado na Figura 23 abaixo:

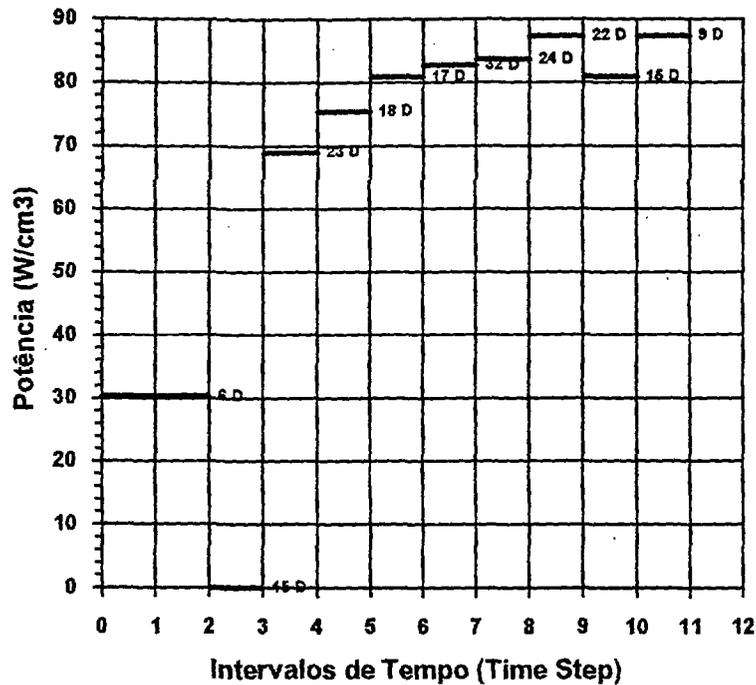


Figura 23: Perfil Operacional da SURRY-1 nos Intervalos de Tempo Modelados

Observa-se nesse gráfico que no primeiro e no segundo intervalo de tempo o reator operou em uma potência específica aproximada de  $30 \text{ W/cm}^3$  por 6 dias. No terceiro intervalo de tempo ele ficou sem operar por 15 dias, devido à uma parada na operação motivada por um defeito mecânico em um dos sistemas do circuito <sup>1</sup>. Após essa parada, o reator retornou ao seu funcionamento normal com uma potência específica de  $69 \text{ W/cm}^3$  no quarto intervalo de tempo por 23 dias. A operação continuou com uma elevação da potência, no 9º e no 11º intervalo de tempo, onde o reator operou em uma potência de  $87 \text{ W/cm}^3$ , por 22 e 9 dias, respectivamente.

Observa-se ainda no gráfico que o perfil operacional além do 11º intervalo de tempo não foi mostrado. Isso foi devido as análises das atividades específicas dos produtos de fissão no fluido refrigerante do primário terem sido feitas nesse período.

#### 4.4 ANÁLISE NUMÉRICA DO RECUO, KNOCKOUT, MIGRAÇÃO E LIBERAÇÃO PARA O FLUIDO REFRIGERANTE DO PRIMÁRIO

A modelagem do termo-fonte de produtos de fissão da SURRY-1 depende fundamentalmente das duas etapas de liberação simultânea de produtos de fissão do combustível, ou seja, da pastilha combustível para o gap e do gap para o fluido refrigerante.

A primeira etapa do processo de liberação simultânea é determinada pelo Recuo, Knockout e Migração. O Recuo e o Knockout são fenômenos que ocorrem independentes da temperatura do combustível, enquanto que a Migração é essencialmente dependente da temperatura <sup>12</sup>.

A segunda etapa do processo de liberação simultânea é determinada de forma empírica através da relação entre a atividade medida no fluido refrigerante durante a operação pela atividade calculada no combustível por códigos de queima, ou de forma analítica, por programas de computador como o código FEMAXI-IV e FUTURE, que determinam a taxa de falha da vareta pela interação da pastilha combustível com o seu revestimento (PCI) <sup>13,14</sup>.

A primeira etapa do processo de liberação ou a liberação dos produtos de fissão para o gap é analisada de acordo com as seguintes formas de liberação:

- (1) o **Recuo**, determinado pela eq.(6) capítulo 2, é função do número de átomos gerados no combustível ( $N_{Ci}$ ), comprimento do recuo na pastilha combustível (R) e do diâmetro da pastilha combustível (d). O diâmetro da pastilha combustível é igual a 0,94 cm (Tabela 8) e o comprimento do recuo no seu interior varia de 7 a 9  $\mu\text{m}$  <sup>15,16</sup>, que proporciona um valor médio de 8  $\mu\text{m}$  que será utilizado. Assim sendo, a liberação dos produtos de fissão da pastilha combustível para o gap devido ao recuo, é dada por:

$$N_{ri} = N_{ci} \cdot \frac{8.0E-04}{0,94} \quad (\text{átomos/s}) \quad (34)$$

- (2) o **Knockout**, como uma outra forma de liberação da pastilha combustível para o gap, determinado pela eq.(7) capítulo 2, é função do comprimento do recuo (R), do diâmetro da pastilha combustível (d), do volume elementar de átomos ejetados ( $V_m$ ), do volume da vareta combustível ( $V_c$ ), da taxa de fissão no combustível ( $T_F$ ), da constante de decaimento radioativo do nuclídeo i ( $\lambda_i$ ), da

constante de liberação do nuclídeo  $i$  do volume ejetado ( $v_i$ ), e da concentração desse nuclídeo na pastilha combustível ( $N_{Ci}$ ).

O volume elementar ejetado ( $V_m$ ) é constante durante todo o processo em qualquer intervalo de tempo, sendo determinado pela seguinte expressão <sup>17</sup>:

$$V_m = \frac{\pi \cdot b^3}{6(d-r)} \left[ r + (r-R) \frac{\pi^2}{6} \right] \quad (35)$$

onde:

$b$  - distância percorrida pelo fragmento de fissão ( $1,0E-06$  cm) <sup>16</sup>.

$d$  - diâmetro da pastilha combustível ( $0,94$  cm) <sup>5</sup>.

$R$  - comprimento do recuo na pastilha combustível ( $8,0E-04$  cm) <sup>3</sup>.

$r$  - raio da pastilha combustível ( $0,47$  cm) <sup>5</sup>.

Aplicando os valores numéricos na equação que determina o volume ejetado ( $V_m$ ) do combustível para o gap, tem-se:

$$V_m = 4,307E-19 \quad (\text{cm}^3)$$

O volume da vareta combustível é baseado no comprimento ativo do combustível ( $L$ ), que no caso do reator analisado equivale a  $366$  cm, e corresponde a um volume útil ( $V_c$ ) de:

$$V_c = \frac{\pi \cdot 0,94^2 \cdot 366}{4} = 2,54E+02 \quad (\text{cm}^3) \quad (36)$$

As constantes de liberação dos nuclídeos do volume ejetado correspondem aos valores determinados experimentalmente para as várias classes e grupos de nuclídeos presentes na pastilha combustível, e equivalem aos seguintes valores <sup>17</sup>:

Tabela 11: CONSTANTES DE LIBERAÇÃO DA PASTILHA COMBUSTÍVEL

GRUPOS	CLASSES	NUCLÍDEOS	VALORES (s <sup>-1</sup> )
I	Gases Nobres	Kr, Xe	6,5E-08
II	Halogênios	Br, I	1,3E-08
	Metais Alcalinos	Rb, Cs	1,3E-08
	Telúrio	Te	1,0E-09
III	Alcalinos Terrosos	Sr, Ba	1,0E-11
	Metais Nobres	Mo	2,0E-09
	Terras Raras	Y, La, Ce, Pr	1,6E-12

As outras variáveis que constam na equação de liberação de produtos de fissão para o gap por knockout são função das propriedades físico-químicas e nucleares de cada nuclídeo em questão.

(3) a **Migração**, determinada pela eq.(9) capítulo 2, é um processo dependente da temperatura da pastilha combustível. A taxa de fuga do nuclídeo *i* do combustível disponível à migrar é dada por uma interpolação dos valores contidos entre 1000 e 1900 °C<sup>18</sup>, definidos na Tabela 2. Essa interpolação é dada pela seguinte expressão:

$$f_{mi} = 0,50 + \left[ (\bar{T}_m - 1900) \cdot 0,475 / 900 \right] \quad (37)$$

Onde:

$f_{mi}$  - taxa de fuga do nuclídeo *i* da pastilha combustível por migração.

$\bar{T}_m$  - temperatura média da pastilha combustível (°C).

A temperatura da pastilha combustível assumida para determinar a taxa de fuga dos produtos de fissão da pastilha combustível é dada pela seguinte expressão<sup>20</sup>:

$$\bar{T}_m = \bar{T}_f + \frac{R^2 \cdot q}{2} \left\{ \frac{1}{2 \cdot K_{Comb}} + \frac{1}{R \cdot h_{Gap}} + \frac{1}{K_{Clad}} \cdot \ln \left[ \frac{(R+C)}{R} \right] + \frac{1}{h_f \cdot (R+C)} \right\} \quad (38)$$

onde:

$\bar{T}_f$  - temperatura média do fluido refrigerante do primário ( $^{\circ}\text{C}$ )

$q'''$  - fonte volumétrica de calor ( $\text{W}/\text{cm}^3$ ).

R - raio da pastilha combustível (cm).

C - espessura do revestimento do combustível (0,062 cm)<sup>5</sup>.

$K_{\text{Comb}}$  - coeficiente de transferência de calor por condução do  $\text{UO}_2$  (0,021  $\text{W}/\text{cm}\cdot^{\circ}\text{C}$ )<sup>19</sup>.

$K_{\text{Clad}}$  - coeficiente de transferência de calor por condução do revestimento (0,121  $\text{W}/\text{cm}\cdot^{\circ}\text{C}$ )<sup>19,20</sup>.

$h_{\text{Gap}}$  - coeficiente de transferência de calor por convecção do gap (0,85  $\text{W}/\text{cm}^2\cdot^{\circ}\text{C}$ )<sup>12,18</sup>.

$h_f$  - coeficiente de transferência de calor por convecção do canal de escoamento ( $\text{W}/\text{cm}^2\cdot^{\circ}\text{C}$ ).

O coeficiente de transferência de calor por convecção do refrigerante " $h_f$ " é determinado pela seguinte expressão (Anexo-B).

$$h_f = 0,023 \cdot \frac{K}{D_e} \left( \frac{D_e \cdot V \cdot \rho}{\mu} \right)^{0,8} \cdot \left( \frac{C_p \cdot \mu}{K} \right)^{0,4} \quad (39)$$

As constantes utilizadas na determinação de " $h_f$ ", de acordo com o Anexo-B, são avaliadas na temperatura média de operação (301 $^{\circ}\text{C}$ ) do fluido refrigerante do primário (entrada e saída do vaso do reator). Essas constantes avaliadas na temperatura média podem ser aplicadas para análise do coeficiente de transferência de calor tanto no estado-estacionário como em transiente<sup>22</sup>. Dessa forma tem-se:

Tabela 12: CONSTANTES UTILIZADAS NA DETERMINAÇÃO DE  $h_f$ <sup>21,22</sup>

CONSTANTES	SIMBOLOS	VALORES	UNIDADES
Calor Específico	$C_p$	5,469	$\text{W}\cdot\text{s}/\text{g}\cdot^{\circ}\text{C}$
Velocidade Média do Canal	V	433	$\text{cm}/\text{s}$
Densidade	$\rho$	0,727	$\text{g}/\text{cm}^3$
Condutividade Térmica	K	5,75E-03	$\text{W}/\text{cm}\cdot^{\circ}\text{C}$
Viscosidade do Fluido	$\mu$	8,92E-4	$\text{g}/\text{cm}\cdot\text{s}$
Diâmetro Equivalente	$D_e$	1,363	cm

As constantes de liberação dos produtos de fissão por Migração da pastilha combustível para o gap ( $v_i$ ), existente na eq.(9) são as mesmas apresentadas na Tabela 11.

A segunda etapa do processo de liberação simultânea ocorre quando os produtos de fissão acumulados no gap são liberados para o fluido refrigerante do primário devido a ruptura no revestimento do combustível.

Como mencionado, a determinação da forma de ruptura ou falha, o tamanho e o local onde elas ocorrem é uma avaliação muito empírica. Em alguns casos, certos programas conseguem analisar esse problema através de expressões matemáticas, levando em consideração apenas os principais eventos que causam essa falha.

No entanto, a forma mais adequada de verificar a taxa de falha, e a mais utilizada atualmente, é uma análise inversa do problema, ou seja, avalia-se ou mede-se o inventário radioativo no fluido refrigerante do primário e divide-o pelo valor calculado por um código que determina a queima do combustível <sup>16</sup>. Dessa forma, a expressão que determina a taxa de liberação do gap é dada por:

$$v_{iG} = \frac{R_{iG}}{N_{iG}} \quad (40)$$

onde:

$v_{iG}$  - taxa de escape do nuclídeo  $i$  do gap para o fluido refrigerante do primário ( $S^{-1}$ ).

$R_{iG}$  - atividade do nuclídeo  $i$  no fluido refrigerante ( $\mu Ci/gH_2O$ ).

$N_{iG}$  - atividade do nuclídeo  $i$  no gap ( $\mu Ci$ ).

De acordo com essa filosofia, a quantidade de produtos de fissão inertes, voláteis e não voláteis, que escapam do gap para o fluido refrigerante estão vinculados às considerações expressas pela eq.(11). Isso é possível, pois, cada intervalo de tempo corresponde a um período no qual o reator opera sob as mesmas condições.

O tipo de falha admitido para o reator analisado são pequenos furos por onde são liberados os produtos de fissão apresentados na Tabela 10. As taxas de liberação do gap possuem seus valores contidos no intervalo de  $10^{-2}$  à  $10^{-6}$  ( $s^{-1}$ ), sendo esses limites de intervalo, determinados pela experiência prática operacional nos reatores e por serem amplamente utilizados nessas análises <sup>16,25</sup>.

## 4.5 TERMO-FONTE DO REATOR ANALISADO E ANÁLISE DOS RESULTADOS

### 4.5.1 TERMO-FONTE DO REATOR ANALISADO

A simulação do termo-fonte decorre da utilização de dados apresentados em tópicos anteriores, principalmente no que diz respeito à taxa de liberação do gap. Para o reator analisado o tipo de ruptura admitido ocasiona uma taxa de liberação da ordem de  $10^{-6} \text{ s}^{-1}$  ou menor<sup>5</sup>, e sabendo-se que as atividades no fluido refrigerante do primário foram medidas no primeiro ciclo de operação, será considerado também uma taxa de liberação da ordem de  $10^{-8} \text{ s}^{-1}$ . Assim sendo, as taxas de liberação do gap para simular o termo-fonte do reator analisado serão:  $10^{-4}$ ,  $10^{-6}$ ,  $10^{-7}$  a  $10^{-8} \text{ s}^{-1}$ .

Os valores das atividades calculadas pelo código TFP, simulando o termo-fonte da SURRY-1, de acordo com as taxas de liberação mencionadas, estão mostrados na Tabela 13:

Tabela 13: ATIVIDADES ( $\mu\text{Ci/gH}_2\text{O}$ ) COM TAXAS DE LIBERAÇÃO DE  $10^{-4}$  a  $10^{-8} \text{ s}^{-1}$ .

NUCLÍDEOS	$10^{-4}$	$10^{-6}$	$10^{-7}$	$10^{-8}$
CLASSE 1 - GASES NOBRES				
$^{85\text{m}}\text{Kr}$	6,06683E-01	1,97240E-02	2,01360E-03	2,01782E-04
$^{85}\text{Kr}$	5,14855E-03	4,77142E-03	2,33027E-03	3,34800E-04
$^{87}\text{Kr}$	5,94821E-01	9,81193E-03	9,87021E-04	9,87608E-05
$^{88}\text{Kr}$	1,36165E+00	3,32109E-02	3,36511E-03	3,36958E-04
$^{133\text{m}}\text{Xe}$	6,98221E-02	3,25539E-02	4,28740E-03	4,44071E-04
$^{133}\text{Xe}$	2,33690E+00	1,84857E+00	3,02174E-01	3,21860E-02
$^{135}\text{Xe}$	6,75819E-01	3,35491E-02	3,55815E-03	3,62050E-04
CLASSE 2 - HALOGÊNIOS				
$^{131}\text{I}$	1,57941E-01	8,45572E-02	1,54133E-02	1,67989E-03
$^{132}\text{I}$	5,37204E-01	1,67592E-01	2,25534E-02	2,33609E-03
$^{133}\text{I}$	1,99792E+00	2,12811E-01	2,33271E-02	2,35535E-03
$^{134}\text{I}$	2,14597E+00	3,44908E-02	3,46744E-03	3,46928E-04
$^{135}\text{I}$	2,53622E+00	1,08700E-01	1,12047E-02	1,12393E-03
CLASSE 3 - METAIS ALCALINOS				
$^{134}\text{Cs}$	2,84038E-06	2,14788E-05	9,73667E-05	2,08911E-05
$^{136}\text{Cs}$	3,79539E-04	2,80533E-04	1,31402E-04	2,07386E-05
$^{137}\text{Cs}$	5,81155E-04	5,64301E-04	4,14046E-04	7,03415E-05
$^{138}\text{Cs}$	1,25015E+00	1,63952E-02	1,64410E-03	1,64456E-04

É bom lembrar que os valores mostrados na Tabela 13 são correspondentes ao 11<sup>o</sup> intervalo de tempo, de acordo com o perfil operacional analisado, uma vez que os valores das atividades apresentados na Tabela 9 foram medidos nesse período de operação.

Observa-se na Tabela 13 que os valores das atividades do <sup>99</sup>Mo e do <sup>140</sup>La não estão incluídos na mesma. Essa ausência foi causada devido ao modelo utilizado na determinação da liberação dos produtos de fissão do UO<sub>2</sub> para o gap por Recuo, Knockout e Migração ter sido desenvolvido somente para os produtos de fissão inertes e voláteis, não levando em consideração os produtos de fissão não voláteis (ver Tabela 3).

Observa-se ainda na Tabela 13 que os valores das atividades determinados considerando a taxa de liberação do gap da ordem de 10<sup>-7</sup> e 10<sup>-8</sup> s<sup>-1</sup> quando comparados com os valores apresentados na Tabela 9 concordam entre si. Existem nuclídeos que são exceções a essa verificação, como por exemplo: o <sup>85</sup>Kr e o <sup>134</sup>Cs, com taxa de liberação muito elevadas.

Também é verificado na Tabela 13 que a taxa de liberação para a grande maioria dos produtos de fissão é da ordem de 10<sup>-7</sup> s<sup>-1</sup>. Assim sendo, pode-se fazer uma análise mais detalhada do valor aproximado da taxa global de liberação do gap.

Para determinar o valor aproximado da taxa global de liberação do gap será admitido os seguintes eventos:

- (1) verificar por tentativa e erro a taxa de liberação do gap para cada nuclídeo;
- (2) cada classe de nuclídeos possuirá uma taxa de liberação determinada pela média das taxas dos nuclídeos;
- (3) a média das taxas de liberação das classes fornecerá a taxa global de liberação do gap para o fluido refrigerante do primário para o reator analisado.

Portanto, as taxas de liberação individuais por nuclídeo e as taxas de liberação das classes estão mostradas na Tabela 14:

Tabela 14: TAXAS DE LIBERAÇÃO DO GAP POR NUCLÍDEO E POR CLASSE.

NUCLÍDEOS	TAXA DE LIBERAÇÃO DO NUCLÍDEO (S <sup>-1</sup> )	TAXA DE LIBERAÇÃO DA CLASSE (S <sup>-1</sup> )
CLASSE 1 - GASES NOBRES		
<sup>85m</sup> Kr	2,11000E-07	2,62000E-07
<sup>85</sup> Kr	*	
<sup>87</sup> Kr	7,90000E-08	
<sup>88</sup> Kr	1,69000E-07	
<sup>133m</sup> Xe	8,70000E-08	
<sup>133</sup> Xe	4,75000E-08	
<sup>135</sup> Xe	9,80000E-07	
CLASSE 2 - HALOGÊNIOS		
<sup>131</sup> I	4,85000E-09	2,41000E-08
<sup>132</sup> I	1,00000E-09	
<sup>133</sup> I	2,05000E-08	
<sup>134</sup> I	4,80000E-08	
<sup>135</sup> I	4,60000E-08	
CLASSE 3 - METAIS ALCALINOS		
<sup>134</sup> Cs	*	1,25000E-07
<sup>136</sup> Cs	1,30000E-07	
<sup>137</sup> Cs	*	
<sup>138</sup> Cs	1,20000E-07	

\* Valores excluídos do cálculo da taxa da classe.

A taxa de liberação global do gap para o fluido refrigerante do primário do reator analisado, determinada a partir de valores aleatórios, é igual a:  $1,37 \times 10^{-07} \text{ s}^{-1}$ .

Essa determinação é uma forma de verificar a consistência da taxa de liberação determinada por outros métodos.

### 4.5.2 ANÁLISE DOS RESULTADOS

Como já mencionado, a atividade dos produtos de fissão no fluido refrigerante do primário é proporcional a atividade do gap e a taxa global de liberação do gap, ou seja, a taxa de liberação é proporcional a relação entre a atividade no fluido refrigerante e a atividade no gap<sup>2,3,24</sup>.

Admitindo essa consideração, pode-se determinar a taxa de global de liberação do gap através desse processo de cálculo para comparar o valor obtido com o valor determinado a partir dos dados da Tabela 14. As atividades do gap, do fluido refrigerante, as razões entre as atividades (taxa de liberação do gap -  $v_{Gi}$ ) e a taxa de liberação do gap para cada classe, estão mostradas na Tabela 15:

Tabela 15: TAXAS DE LIBERAÇÃO DO GAP DADA PELA RELAÇÃO ENTRE A ATIVIDADE MEDIDA NO REFRIGERANTE E A CALCULADA NO GAP.

NUCLÍDEOS	ATIVIDADE NO GAP ( $\mu\text{Ci}$ )	ATIVIDADE NO REFRIGERANTE ( $\mu\text{Ci/gH}_2\text{O}$ )	TAXA DO NUCLÍDEO ( $\text{S}^{-1}$ )	TAXA DA CLASSE ( $\text{S}^{-1}$ )
CLASSE 1 - GASES NOBRES				
<sup>85m</sup> Kr	2,16856E+08	4,26000E-03	2,11177E-07	1,95745E-07
<sup>85</sup> Kr	1,28748E+06	2,01000E-01	8,00110E-08	
<sup>87</sup> Kr	3,37857E+08	7,86000E-04	8,84043E-08	
<sup>88</sup> Kr	5,71198E+08	5,67000E-03	1,70736E-07	
<sup>133m</sup> Xe	3,44540E+07	3,28000E-03	8,56795E-08	
<sup>133</sup> Xe	1,15877E+09	1,42000E-01	4,65666E-08	
<sup>135</sup> Xe	2,51186E+08	3,29000E-02	6,87638E-07	
CLASSE 2 - HALOGÊNIO				
<sup>131</sup> I	5,03760E+08	8,26000E-04	4,09098E-10	2,54595E-08
<sup>132</sup> I	7,66380E+08	1,22000E-03	3,35493E-08	
<sup>133</sup> I	1,19069E+09	4,89000E-03	9,50410E-09	
<sup>134</sup> I	1,28363E+09	1,17000E-03	5,01313E-08	
<sup>135</sup> I	1,12629E+09	5,20000E-03	3,37036E-08	
CLASSE 3 - METAIS ALCALINOS				
<sup>134</sup> Cs	3,15489E+06	4,07000E-04	3,45091E-10	3,44870E-08
<sup>136</sup> Cs	3,13570E+06	2,04000E-04	1,00351E-08	
<sup>137</sup> Cs	1,05310E+06	1,54000E-03	2,66879E-10	
<sup>138</sup> Cs	1,11323E+09	1,58000E-03	1,27301E-07	

De acordo com os dados expostos na Tabela 15, a taxa de liberação do gap para o fluido refrigerante do primário ou a taxa global de liberação do reator analisado, é igual a:  $8,52 \times 10^{-08} \text{ s}^{-1}$ .

Portanto, quando comparados os valores das taxas globais de liberação obtidos a partir dos dados das Tabelas 14 e 15, verifica-se que a taxa obtida na Tabela 14 é cerca de duas (2) vezes maior que o valor da taxa obtida na Tabela 15. No entanto esse forma de estimar a taxa de liberação do gap para a classe dos gases nobres e halogênios é viável e pode ser empregado sem restrições. Para os metais alcalinos existe um fator de correlação que seria função da temperatura.

Para analisar a contribuição das três fontes de liberação da pastilha combustível para o gap no termo-fonte do reator analisado será considerada a taxa de liberação do gap ( $v_{Gi}$ ) de  $8,52 \times 10^{-08} \text{ s}^{-1}$ . Os valores das atividades ( $\mu\text{Ci/gH}_2\text{O}$ ) devido as três fontes de liberação estão mostradas na Tabela 16:

Tabela 16: ATIVIDADE NO REFRIGERANTE DEVIDO AO RECUO, KNOCKOUT E MIGRAÇÃO

NUCLÍDEOS	RECUO ( $\mu\text{Ci}$ )	KNOCKOUT ( $\mu\text{Ci}$ )	MIGRAÇÃO ( $\mu\text{Ci}$ )
CLASSE 1 - GASES NOBRES			
$^{85m}\text{Kr}$	1,66183E-03	7,44760E-04	1,45493E-03
$^{85}\text{Kr}$	2,06604E-03	1,90202E-03	2,06334E-03
$^{87}\text{Kr}$	8,16854E-04	1,67924E-04	8,28105E-05
$^{88}\text{Kr}$	2,79651E-03	9,68028E-04	5,24648E-04
$^{133m}\text{Xe}$	3,59214E-03	3,40336E-03	3,59785E-03
$^{133}\text{Xe}$	2,54708E-01	2,48397E-01	2,54895E-01
$^{135}\text{Xe}$	2,90347E-03	1,69538E-03	2,97482E-03
CLASSE 2 - HALOGÊNIO			
$^{131}\text{I}$	1,30503E-02	1,26866E-02	1,29845E-02
$^{132}\text{I}$	1,89262E-02	1,76511E-02	1,64152E-02
$^{133}\text{I}$	1,92809E-02	1,51150E-02	1,94894E-02
$^{134}\text{I}$	2,87584E-03	5,54369E-04	6,29170E-05
$^{135}\text{I}$	9,04242E-03	4,89637E-03	9,34999E-03
CLASSE 3 - METAIS ALCALINOS			
$^{134}\text{Cs}$	9,28581E-05	9,31474E-05	9,29927E-05
$^{136}\text{Cs}$	1,18026E-04	1,29449E-04	1,18177E-04
$^{137}\text{Cs}$	3,77372E-04	3,68315E-04	3,77227E-04
$^{138}\text{Cs}$	1,14909E-03	1,41588E-04	3,23675E-04
TOTAL	3,33458E-01	3,08914E-01	3,24807E-01

De acordo com os dados apresentados na Tabela 16, cada fonte contribui com as seguintes frações: Recuo (34,4 %), Knockout (32,0 %) e Migração (33,6 %).

Observando os valores das frações de contribuição de cada fonte, pode-se dizer que a liberação dos produtos de fissão da pastilha combustível torna-se um processo independente da temperatura do  $UO_2$ , uma vez que a fonte que mais contribui para esse inventário é a devido ao recuo.

Portanto, representando graficamente a evolução da atividade do  $^{138}Cs$  em função da temperatura, para as três fontes de liberação de produtos de fissão da pastilha combustível, tem-se:

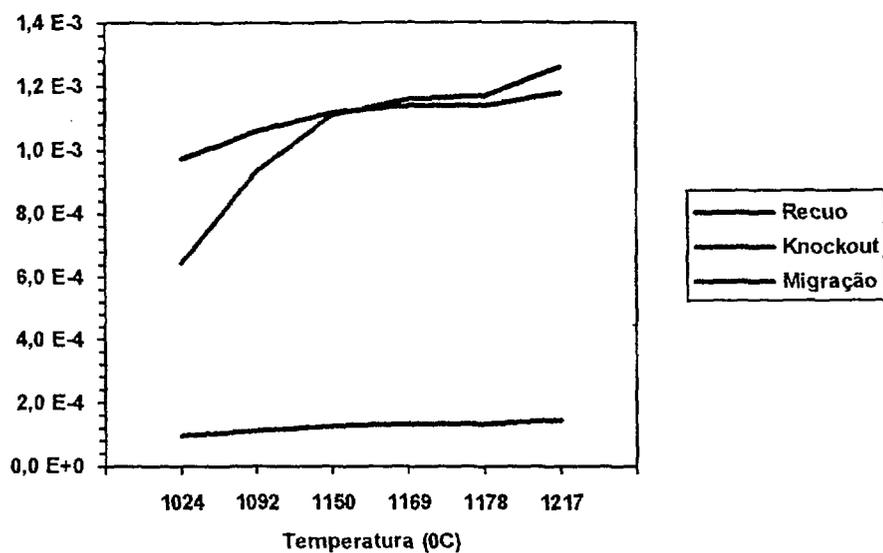


Figura 24: Atividades no Refrigerante Devido ao Recuo, Knockout e Migração.

Observa-se no gráfico da figura 24 que a fonte devido a migração (temperatura) é realmente pequena. Uma tentativa de explicar essa pouca influência da migração, a fonte que depende da temperatura<sup>12,13</sup>, pode estar fundamentada em três aspectos:

- (1) a taxa de liberação ou quantidade de núclídeos aptos a serem liberados da pastilha combustível por migração (fmi - eq. 8), é determinada de forma genérica sem especificar a classe ou o tipo de núclídeo;
- (2) todos os valores das constantes utilizadas na determinação da temperatura do combustível foram obtidas na temperatura média do fluido refrigerante do primário na operação do reator;

(3) apesar da temperatura da pastilha combustível, determinada pela eq.(38), está de acordo com valores estabelecidos para reatores desse porte, como citado por Tong & Weisman<sup>12</sup> e Nakajima<sup>13</sup>, mesmo assim, eles ainda são pequenos para determinar uma taxa de fuga elevada. Por exemplo; a temperatura média máxima da pastilha combustível de 1217 °C corresponde a uma taxa de fuga de 0,1424 ou 24,14%.

Dessa forma, a liberação do UO<sub>2</sub> para o gap pode ser considerado como um processo contínuo de liberação de núclídeos do gap para o fluido refrigerante sem grandes flutuações no inventário decorrente dessas fontes, haja visto que o recuo, a principal fonte de liberação, depende da geração do núclídeo no combustível. O Knockout depende fundamentalmente da taxa de fissão e assim mesmo exerce pouca influência no valor final do inventário. A Migração não influencia de forma significativa no termo-fonte, devido à taxa de liberação ser pequena, e as baixas temperaturas determinadas no UO<sub>2</sub>.

Mesmo assim, demonstrando a influência da temperatura na atividade do primário para alguns núclídeos, foi feita uma análise paramétrica entre as relações das atividades dos núclídeos em função da temperatura do combustível. Essa parametrização é mostrada no gráfico da Figura 25:

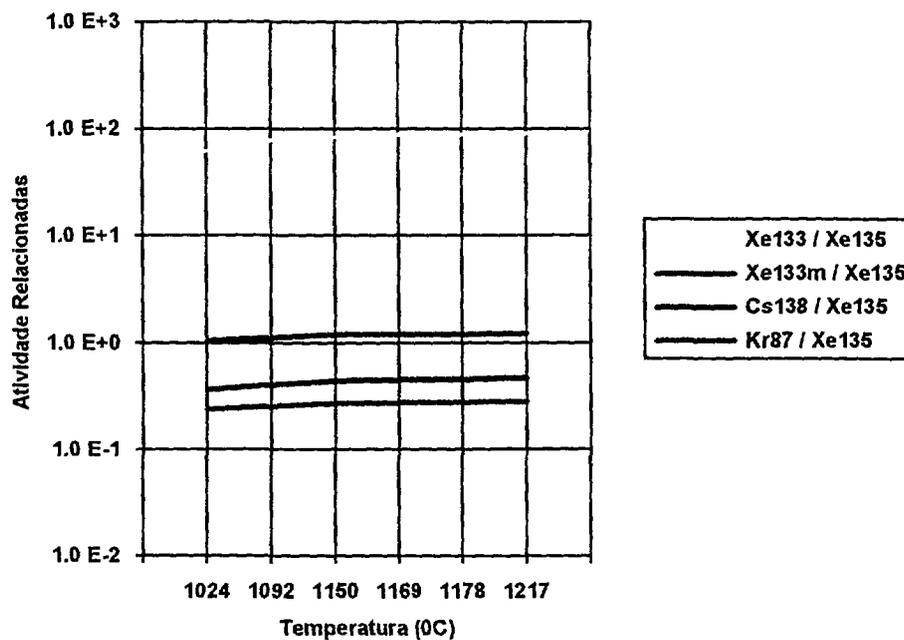


Figura 25: Influência da Temperatura na Atividade do Primário.

Alguns núclídeos como o <sup>131</sup>I e o <sup>133</sup>I, podem representar o comportamento operacional de um reator desde o seu “start-up” até o último momento de sua operação, como é representado no gráfico a seguir para o reator analisado.

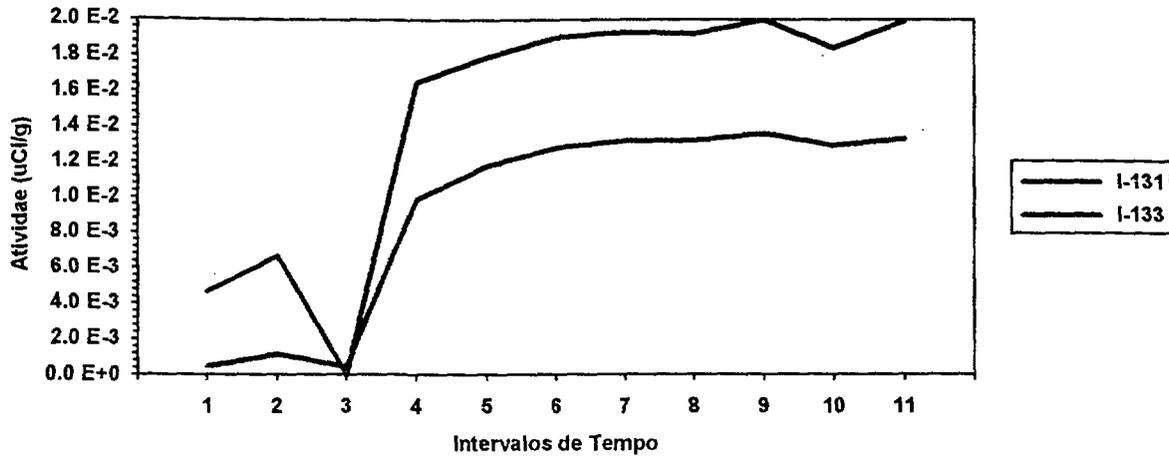


Figura 26: Perfil Operacional do Reator Analisado em Função da Atividade do <sup>131</sup>I e <sup>133</sup>I no Primário.

O emprego do Iodo para representar o comportamento operacional de um reator é devido a praticidade de medida durante a operação, avaliação do período de falha da vareta combustível<sup>1,2</sup> e por ser muito sensível à evolução da atividade no decorrer da operação do reator. Verifica-se a semelhança do perfil operacional com o gráfico da Figura 23.

Para avaliar a influência do decaimento sobre as concentrações dos nuclídeos no fluido refrigerante, é feita uma análise das suas atividades em função das suas constante de decaimento. Essa influência é mostrada, para alguns valores de “λ”, no gráfico da Figura 27.

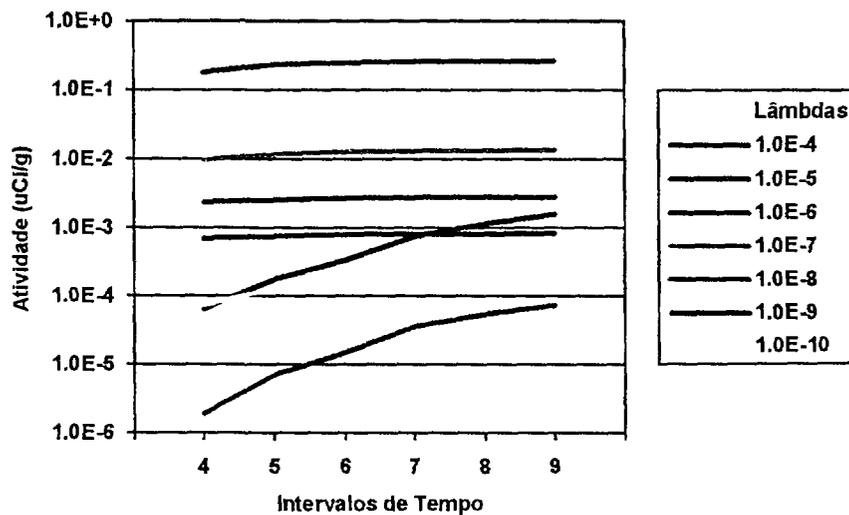


Figura 27: Atividade no Fluido Refrigerante em Função do λ.

Nota-se que os nuclídeos com “ $\lambda$ ” grande ( $1,0 \times 10^{-4}$  a  $1,0 \times 10^{-7}$ ) possuem maiores atividades, como no caso do  $^{133}\text{Xe}$  e  $^{131}\text{I}$ . Os nuclídeos com “ $\lambda$ ” pequeno ( $1,0 \times 10^{-08}$  a  $1,0 \times 10^{-10}$ ) possuem atividades menores, como no caso do  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ . Esses não atingem o equilíbrio ou um estado de saturação no sistema. De uma outra forma, os “ $\lambda$ ” pequenos correspondem a meias-vidas grandes, o que propicia algum tempo para alcançarem a superfície do  $\text{UO}_2$  e serem liberados para o gap, o que não ocorre se o “ $\lambda$ ” for grande.

De todas as análises, a mais importante é a determinação do número de revestimentos que romperam ou de varetas que falharam durante a operação. Essa determinação é feita através da relação entre a atividade medida e a calculada no fluido refrigerante do primário do reator analisado.

A atividade medida representa uma quantidade de varetas que falharam no núcleo do reator durante o período de operação. A atividade calculada é a determinada por um código que executa o cálculo da queima do combustível e liberação de nuclídeos para o fluido refrigerante, como o TFP. De acordo com essa consideração, determina-se o número de varetas que falharam no núcleo da SURRY-1 nos primeiros 181 dias de operação. O número de varetas que falharam está na Tabela 17.

Tabela 17: QUANTIDADE DE VARETAS QUE FALHARAM NA SURRY-1.

NUCLÍDEOS	ATIVIDADE MEDIDA ( $\mu\text{Ci/gH}_2\text{O}$ )	ATIVIDADE CALCULADA ( $\mu\text{Ci/gH}_2\text{O}$ )	QUANTIDADE DE VARETAS FALHAS
CLASSE 1 - GASES NOBRES			
$^{85m}\text{Kr}$	4,26E-03	1,71E-03	2,5
$^{85}\text{Kr}$	2,01E-01	2,09E-03	*
$^{87}\text{Kr}$	7,86E-04	8,39E-04	0,9
$^{88}\text{Kr}$	5,67E-03	2,86E-03	2,0
$^{133m}\text{Xe}$	3,28E-03	3,67E-03	0,9
$^{133}\text{Xe}$	1,42E-01	2,60E-01	0,5
$^{135}\text{Xe}$	3,29E-02	3,03E-03	10,9
CLASSE 2 - HALOGÊNIO			
$^{131}\text{I}$	8,26E-04	1,33E-02	0,1
$^{132}\text{I}$	1,22E-03	1,93E-02	0,1
$^{133}\text{I}$	4,89E-03	1,98E-02	0,3
$^{134}\text{I}$	1,17E-03	2,95E-03	0,4
$^{135}\text{I}$	5,20E-03	9,53E-03	0,6
CLASSE 3 - METAIS ALCALINOS			
$^{134}\text{Cs}$	4,07E-04	9,35E-05	4,4
$^{136}\text{Cs}$	2,04E-04	1,19E-04	1,7
$^{137}\text{Cs}$	1,54E-03	3,81E-04	4,1
$^{138}\text{Cs}$	1,58E-03	1,40E-03	1,2

O número de varetas combustíveis que falharam durante os primeiros 181 dias de operação da SURRY-1 é igual a uma vareta, especificado na ref. 1. O número de varetas que falharam calculado pelo código TFP é igual a 2. Apesar de que o número de varetas falhas calculado e medido não estarem de acordo, isso não implicará em uma mudança drástica no valor do termo-fonte. Essa diferença também não inviabiliza a utilização dos conceitos definidos nesse trabalho a respeito do cálculo do termo-fonte para reatores nucleares.

Isso pode ser demonstrado aplicando o conceito de taxa global de liberação para a atividade no primário (medida e calculada), dessa forma, a atividade global do primário medida é igual a  $2,5 \times 10^{-02}$  e a atividade global do primário calculada é igual a  $2,1 \times 10^{-02}$ , ou seja, a atividade global calculada é cerca de 16% menor que a atividade global medida.

---

#### 4.6 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO CAPÍTULO 4

- /1/ SURRY POWER STATION, UNIT 1; *First Year Operation Report*, (Virginia Electric and Power Co., Richmond (USA)). 4 Mar 1974, 110p. (DOCKET-50280-219) UNCLAS.
- /2/ WESTINGHOUSE E. Co.; *Source Term Data for Westinghouse Pressurized Water Reactors*, Pennsylvania, July 1973, WCAP-8253 revised.
- /3/ BERAHA, R. et al; *Fuel Survey in the Light Water Reactors Based on the Activity of the Fission Products*, Nuclear Technology, Fuel Cycles, 49 (426) 1980.
- /4/ *Directory of Nuclear Reactors*, POWER REACTORS, Supplement to Vols. IV and VII, IAEA, Vienna 1971,
- /5/ *Directory of Nuclear Power Plants in the World 1994*, Edited by HARUO FUJII and ATSUYOSHI MORISHIMA, Japan Nuclear Energy Information Center Co., Ltd, Tokyo, Japan, ISSN 0912-7003.
- /6/ SCHMIDT, Ernst; *Properties of Water and Steam in SI-Units*, Third Enlarged Printing, Edited by Ulrich Grigull, R. Oldenbourg Munchen, 1982.
- /7/ SURRY POWER STATION, Units 1 and 2; *Final Safety Analysis Report*, Part B, Vol 3, (Virginia Electric and Power Co., Richmond (USA)). 21 Jan 1970, 599p. (DOCKET-50280-21) UNCLAS.
- /8/ LAMARSH, J. R.; *Introduction to Nuclear Reactor theory*, New york, Addison-Wesley, 1966.
- /9/ BRHEN, J.; ROTHENSTEIN, W.; TAVIV, E.; *The HAMMER code system*, Palo Alto, CA, Electric power Research Institute, 1978 (EPRI-NP-565, Projet 709).
- /10/ PERRY, Robert H., CHILTON, Cecil H.; *Manual de Engenharia Quimica*, Quinta Edição, Guanabara Dois, 1980.
- /11/ AMERICAN NATIONAL STANDARD; *Source Term Specification*, American National Standards Instituto. INC, (ANSI/ANS 18.1 -1984).

- /12/ TONG, L. S. & WEISMAN, J.; Thermal Analysis of Pressurized Water Reactors, Second Edition, Published by the American Nuclear Society (ANS), pág. 92-110, 1979.
- /13/ NAKAJIMA, T.; FEMAXI-IV: A Computer Code for Analysis of Fuel Rod Behaviour Under Transient Conditions, North-Holland, Amsterdam, Nucl. Eng. and Des., 88 (1985) 69-84.
- /14/ Water Reactor Fuel Behaviour and Fission Products Release in Off-Normal and Accident Conditions, IAEA, Vienna, 1987, IWGFPT/27.
- /15/ INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY; Coolant Technology of Water Cooled Reactors, Volume 3, IAEA-TECDOC-667, October 1992.
- /16/ AOKI, Toshio; Evaluation of Fuel Performance in Reactor (PWR), J. Japan Nucl. Soc. (Japanese), 25(2), 103 (1983).
- /17/ WESTINGHOUSE NUCLEAR SYSTEM, Reference Safety Analysis Report, Volume V, Cap. 11.
- /18/ BEYER, L. E.; HAHN, C. R.; Production of Fission Gas Release of UO<sub>2</sub> Fuel, BNWL-1875, Battelle-Pacific Northwest Laboratories (Nov. 1974).
- /19/ EL-WAKILL, M. M.; Nuclear Heat Transport, Scranton Pennsylvania, International Textbook Company, 1971.
- /20/ GLASSTONE, Samuel, SESONSKE, Alexander; Ingenieria de Reactores Nucleares, Versión Española por Dr. M. Carreira, Editorial Reverté, S. A., Barcelona, España, 1975.
- /21/ ROWE, D. S.; CobraIIIC - A digital Computer Program for Steady State and Transient Thermal-Hydraulic Analysis of Rod Bundle Nuclear Fuel Elements, Battelle Pacific Northwest Laboratories, Washington 1973. (BNWL-1695)
- /22/ SCHIMDT, Ernst; Properties of Water and Steam in SI-Units, Third, Enlarged Printing, Ulrich Grigull, 1982.
- /23/ Especialis' Meeting on the Behaviour of Defected Zirconium Alloy Clad Ceramic Fuel in Water Cooled Reactors, Chalk River, Canada, 17-21 September (IWGFPT-6).

## CAPÍTULO 5

5.1 CONCLUSÕES

5.2 RECOMENDAÇÕES

## 5.1 CONCLUSÕES

O termo-fonte representa o inventário radioativo localizado em um sistema, equipamento ou componente, o qual serve como referência para avaliar os aspectos de segurança em diferentes condições de operação do reator analisado. Ele também representa uma das bases de projeto mais importante para estudo da performance da instalação, distribuição dos produtos de fissão nos sistemas do reator e no meio ambiente em caso de acidente.

O inventário radioativo localizado em um sistema compreende os produtos de fissão, os produtos de ativação da água (N-16, O-18, etc), produtos de corrosão ativados (Co, Cr, Fe, Mn, etc), transurânicos (Np, Pu, Am, etc) e o trítio (H-3), sendo o grupo dos produtos de fissão o que mais se destaca, devido sua complexidade de análise e de maior relevância dentro do termo-fonte.

Dentro do grupo dos produtos de fissão existem aqueles que se destacam pelo seu inventário radioativo no núcleo (rendimento de fissão), cadeia de decaimento, meia-vida, propriedades físicas incluindo a natureza de sua radioatividade (alfa, beta e gama), propriedades químicas, características biológicas e sua concentração devido ao histórico de queima do combustível.

A complexidade de análise compreende principalmente o nível de radiotoxicidade que cada nuclídeo exerce no organismo. Os nuclídeos e suas radiotoxicidades são expressas em classes na norma CNEN-NE 6.02 (1984), que trata do Licenciamento de Instalações Radioativas. Essa representação é dada por:

Classe B - alta radiotoxicidade (Sr-90, Y-91, I-131, Zr-95, Ru-106, Ag-110m, Cs-134, etc)

Classe C - relativa radiotoxicidade (Sr-89, Sr-91, Y-90, I-133, Ru-103, Cs-137, etc)

Classe D - baixa radiotoxicidade (Kr-85, Y-91m, Xe-133, etc)

De acordo as informações sobre as propriedades nucleares dos produtos de fissão, podem ser feitos alguns comentários, como:

- (a) os nuclídeos de meia-vida curta ao decair emitem uma partícula beta ( $\beta^-$ ), formam outros nuclídeos de meia-vida longa, como no caso do  $^{137}\text{Xe}$  que decaie formando o  $^{137}\text{Cs}$ ;
- (b) as atividades dos produtos de fissão com meia-vida longa são menores, e tornam-se importantes quando da parada do reator. Os de meia-vida curta são importantes durante a operação do reator;

- (c) Os produtos de fissão com meia-vida curta, entram rapidamente em equilíbrio, ou seja, suas concentrações tornam-se constantes rapidamente, e as dos nuclídeos de meia-vida longa tendem a crescer durante a operação (ver Figura 27).

Para que se possa verificar esses comentários, é necessário que se tenha disponível um código de computador que possa calcular o termo-fonte radioativo no fluido refrigerante. No entanto, os códigos disponíveis no "mercado" não são de domínio público e por esse motivo, os institutos de pesquisa que precisa fazer esse tipo de determinação tem que desenvolver seus próprios códigos, como no caso do código TFP desenvolvido nesse trabalho.

O código TFP é baseado na lógica computacional do CINDER-2 e no modelo cinético de liberação de produtos de fissão do  $UO_2$  para o gap. Esse modelo considera a liberação para o gap de duas formas: a que não depende da temperatura e a que depende da temperatura.

O processo responsável pela liberação que 'depende da temperatura é a migração, que libera principalmente os nuclídeos com meia-vida longa ou constante de decaimento pequena, e o processo que não depende da temperatura, o recuo e o knockout, liberam principalmente os nuclídeos com meia-vida curta ou constantes de decaimento grandes.

A constante de decaimento não influencia só na liberação da pastilha combustível para o gap, mas também na liberação do gap para o fluido refrigerante do primário do reator analisado. Essa liberação do gap denominada de taxa de liberação global ou simplesmente liberação do gap, não é determinar diretamente no TFP, pois é um processo complexo para ser analisado.

A complexidade dessa análise reside no fato da taxa de liberação ser determinada de forma empírica, através da relação entre a atividade liberada para o fluido refrigerante pela atividade calculada no gap. Essa análise fornece uma taxa de liberação global e aproximada. Essa globalização atingir todos os produtos de fissão de uma única vez implicando em perda de precisão, pois, como observado na Tabela 14 cada nuclídeo possui uma taxa de liberação individual e por classe, do gap

Cada classe contribue ou exerce uma influência no termo-fonte dos produtos de fissão do reator analisado. As contribuições das classes ao termo-fonte calculadas são as seguintes: Gases Nobres (80%), Halogênios (19%) e Metais Alcalinos (1%). As contribuições das classes ao termo-fonte medido são as seguintes: Gases Nobres (96%), Halogênios (3%) e Metais Alcalinos (1%).

Para os Halogênios, a diferença entre os valores medidos e calculados como observado é grande, isso é causado pela globalização da taxa de liberação do gap para o fluido refrigerante do primário do reator analisado.

Mesmo sabendo que há discordância entre os valores medidos e calculados, os resultados são satisfatórios, pois, a metodologia matemática e a lógica computacional utilizadas no código TFP, para a resolução simultânea das cadeias lineares acopladas na região e por regiões, está correta, e mostra que o objetivo principal do trabalho, estabelecer uma metodologia de cálculo para determinar o termo-fonte dos produtos de fissão, foi alcançado.

## 5.2 RECOMENDAÇÕES

A liberação devido ao recuo, depende do comprimento do recuo no  $UO_2$ , e esse por sua vez é função da energia que o fragmento de fissão perde ao longo de uma trajetória, assim sendo, uma análise desse comprimento em função da energia é necessária para adequar a liberação por recuo para cada nuclídeo individualmente ao invés de utilizar um único valor para todos os produtos de fissão.

Recomenda-se fazer um levantamento de modelos que determinem a taxa de fuga da pastilha combustível para o gap por migração para os produtos de fissão não-voláteis.

Para uma análise mais precisa do termo-fonte à partir do  $UO_2$ , passando pelo gap e chegando até o fluido refrigerante, recomenda-se que se faça uma avaliação mais detalhada das liberações para o gap, assim como, das liberações do gap para o fluido refrigerante.

Para fazer uma análise mais precisa, é recomendado que sejam acoplados três outros códigos de computador ao código TFP, ou seja, o primeiro para determinar as liberações do  $UO_2$  para o gap, o segundo para analisar as formas e as falhas do revestimento das varetas combustíveis e um terceiro para determinar com maior precisão a temperatura do sistema Revestimento-Gap- $UO_2$ .

Mesmo sem essas adequações, recomenda-se futuramente completar o número de grupos do termo-fonte no código TFP, ou seja, implementar o cálculo da atividade do trítio, dos produtos de ativação da água e produtos de corrosão ativados.

Uma última recomendação importante, é para que seja implementada no código TFP uma rotina para determinar no núcleo do reator, o local onde encontra-se a vareta combustível que falhou.

**APÊNDICE - A****A.1 FRAÇÃO DE FUGA DA PASTILHA DE UO<sub>2</sub> POR RECUO.**

A fração de fuga da pastilha de UO<sub>2</sub> por recuo é determinada para pastilhas na forma esférica e plana, pois, a determinação na forma cilíndrica é de difícil compreensão. Todas as formas possuem geração interna uniforme. Os resultados obtidos com as duas outras formas foram utilizados para estimar a fração de escape para as varetas na forma cilíndrica.

**Caso Esférico.** a pastilha tem formato esférico e a expressão que determina a fuga dos átomos formados nessa forma de pastilha é dada por <sup>1</sup>:

$$F = \frac{3}{4} \left( \frac{R}{a} \right) - \frac{1}{16} \left( \frac{R}{a} \right)^3, \text{ para } a \leq R \leq 2a$$

onde:

R - comprimento do recuo dentro da pastilha UO<sub>2</sub>.

a - raio da pastilha de UO<sub>2</sub>.

Esta expressão pode ser aplicada para todos os percursos menores que o diâmetro da esfera. Para percursos maiores que o diâmetro da esfera a fração de escape será: F = 1.

**Caso Plano (placa).** a pastilha tem a forma de placa e espessura "2a", sendo a expressão que determina a fuga para esse tipo de pastilha dada por <sup>1</sup>:

$$F = \frac{1}{4} \left( \frac{R}{a} \right)$$

onde:

R - comprimento do recuo dentro da pastilha UO<sub>2</sub>.

a - metade da espessura da placa de UO<sub>2</sub>.

**Caso Cilíndrico.** esse tipo de análise para a geometria cilíndrica é mais difícil que as demais, e a obtenção de uma expressão simples para determinar a fuga dessa forma de pastilha é bastante complexa. Contudo, de acordo com a razão área superficial/volume, a fração de fuga de um cilindro pode estar entre as geometrias esférica e a plana, de mesmo diâmetro ou espessura. Para partículas muito grandes ( $2a \gg R$ ), a fração de fuga depende precisamente dessa razão, portanto, tem-se:  $3/a$  (esfera),  $2/a$  (cilindro) e  $1/a$  (placa), com raio ou espessura  $a$ <sup>1</sup>.

Assim sendo, a fração de fuga das geometrias mencionadas é dada por:  $F = (3/a).(R/4)$  para a esfera,  $F = (1/a).(R/4)$  para a placa e para o cilindro é dada por:

$$F = \frac{2}{a} \left( \frac{R}{4} \right)$$

onde:

R - comprimento do recuo dentro da pastilha de  $UO_2$ .

a - raio da pastilha de  $UO_2$ .

## A.2 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO APÊNDICE A

- /1/ RAY, Joseph W.; WOOTON, Roger O.; BARNES, Rossell H.; *Investigation of Tritium Generation and Release in PM Nuclear Power Plants*, Battelle Memorial Institute, Columbus Laboratories, Columbus, Ohio, October 31, 1966.

## APÊNDICE - B

### B.1 DETERMINAÇÃO DO COEFICIENTE DE TRANSFERÊNCIA DE CALOR POR CONVECÇÃO ( $h_F$ ).

O coeficiente Transferência de Calor por Convecção é determinado como uma parte do número de Nusselt, um número adimensional que inclui os termos condutividade térmica do fluido refrigerante do primário (K), do diâmetro equivalente do canal de escoamento entre as varetas combustíveis do núcleo do reator ( $D_e$ ) e do próprio h. Assim o número de Nusselt é definido pela seguinte expressão:

$$Nu = \frac{h \cdot D_e}{K} \quad (B.1)$$

O número de Nusselt dado pela equação de Dittus-Boelter <sup>1</sup>, é função direta dos números adimensionais de Reynolds e Prandtl, onde:

$$Nu = 0,023 \cdot Re^{0,8} \cdot Pr^{0,4} \quad (B.2)$$

Os números de Reynolds e Prandtl são definidos pelas seguintes expressões:

$$\text{Número de Reynolds} = Re = D_e \cdot V \cdot \rho / \mu$$

$$\text{Número de Prandtl} = Pr = C_p \cdot \mu / K$$

onde:

V - velocidade do fluido refrigerante no canal de escoamento (cm/s).

$C_p$  - calor específico do fluido refrigerante (W.s/g.°C).

K - condutividade térmica do fluido refrigerante (W/cm.°C).

$\rho$  - densidade do fluido refrigerante (g/cm<sup>3</sup>).

$\mu$  - viscosidade do fluido refrigerante (g/cm.s).

$D_e$  - diâmetro equivalente do canal de escoamento (cm).

O diâmetro equivalente é empregado nos números adimensionais, devido a forma do canal de escoamento não ser circular. O diâmetro equivalente de escoamento é determinado pela seguinte expressão <sup>2</sup>:

$$D_e = \frac{4 \cdot (P_T^2 - (\pi \cdot D_{ext}^2 / 4))}{\pi \cdot D_{ext}} \quad (B.3)$$

onde:

$P_T$  - "Pitch", distância entre os centros das varetas combustíveis (cm).

$D_{ext}$  - diâmetro externo da vareta combustível (cm).

A figura B.1, apresenta o arranjo das varetas combustíveis no núcleo em um arranjo quadrado, como o encontrado no reator analisado e o canal de escoamento do fluido refrigerante do primário <sup>2</sup>.

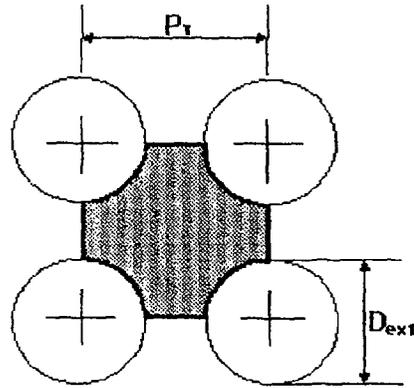


Figura B.1: Arranjo das Varetas Combustíveis Formando o Canal de Escoamento.

Substituindo os números adimensionais existentes na eq.(B.2) por suas correspondentes constantes na eq.(B.1) e explicitando esses novos arranjos em função de  $h$ , tem-se a expressão <sup>1</sup>:

$$h = 0,023 \cdot \frac{K}{De} \left( \frac{De \cdot V \cdot \rho}{\mu} \right)^{0,8} \cdot \left( \frac{Cp \cdot \mu}{K} \right)^{0,4} \quad (B.4)$$

## B.2 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS DO APÊNDICE B

- /1/ EL-WAKIL, M. M.; *Nuclear Heat Transport*, Scranton Pennsylvania, International Textbook Company, 1971.
- /2/ KERN, Donald Q.; *Process Heat Transfer*, New York, International Student Edition, Mc Graw-Hill Book Company INC, 1950, p 138-139.



M21071



**Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares**

Cidade Universitária "Armando de Salles Oliveira"  
Caixa Postal 11049 - CEP 05422-970 - Pinheiros  
Tel.: (011) 816-9000 - End. Telegráfico IPENUCLEAR  
Telex: (11) 83592-IPEN-BR Fax: (011) 212-3546  
São Paulo - SP - Brasil