

COMPARAÇÃO ENTRE DADOS EXPERIMENTAIS PROVENIENTES DA CARACTERIZAÇÃO ISOTÓPICA DE COMBUSTÍVEIS NUCLEARES IRRADIADOS COM AQUELES OBTIDOS UTILIZANDO-SE O CÓDIGO COMPUTACIONAL ORIGEN-2

Jorge Eduardo de Souza Sarkis , Cláudio Rodrigues

IPEN-CNEN/SP
CAIXA POSTAL 11049
CEP 05422-970 , SÃO PAULO , S.P., BRASIL
e-mail : jesarkis@net.ipen.br

RESUMO

No ciclo do combustível códigos computacionais são largamente empregados no estudo da composição isotópica, queima e depleção de combustíveis nucleares irradiados .

Neste trabalho utilizou-se o código ORIGEN 2 na caracterização isotópica de 9 amostras de combustíveis nucleares irradiados , com uma queima na faixa de 15,6 a 31,8Gwd/t provenientes do reator de potência da central nuclear de Obrigheim.

Os resultados encontrados foram comparados com aqueles obtidos por meio de análises destrutivas utilizando-se as técnicas de espectrometria de massas , espectrometria alfa e espectrometria gama . Serão discutidos dados de composição e concentração isotópica para os isótopos dos principais elementos actnídeos e produtos de fissão presentes no combustível nuclear após sua irradiação

INTRODUÇÃO

Códigos computacionais são largamente empregados em toda extensão do ciclo do combustível nuclear quer na avaliação e previsão do comportamento do combustível quer na definição de procedimentos para o tratamento químico e salvaguardas do material nuclear.

Em estudos de física de reatores servem para simulação de ciclos de irradiação e cálculo da queima de combustíveis nucleares irradiados. Em centrais nucleares auxiliam na avaliação tanto da queima como da reatividade dos elementos combustíveis irradiados a serem armazenados nos tanques de resfriamento. Em laboratórios de análises de elementos combustíveis pós-irradiados, assim como em centrais de reprocessamento, juntamente com dados obtidos por meio de técnicas analíticas destrutivas e não destrutivas, fornecem informações para caracterização isotópica destes materiais.

Código Computacional ORIGEN 2 .O código ORIGEN 2 [1] foi desenvolvido no final da década de 70 pelo Oak Ridge National Laboratory, Estados Unidos, como um aperfeiçoamento do código ORIGEN[2] sobre o qual possui diversas vantagens das quais podemos citar:

- variações das seções de choque dos principais nuclídeos com a queima durante a irradiação ;
- tabelas de constantes nucleares atualizadas;
- energia por fissão específica para cada nuclídeo fissil;
- permite uma maior variedade de ciclos de combustíveis;

-possibilidade de um detalhamento do ciclo do combustível;

-especifica fatores de separação para o reprocessamento para cada elemento individualmente.

O seu banco de dados contém dados nucleares concernentes a 130 actnídeos, 850 produtos de fissão e 720 produtos de ativação provenientes das bibliotecas ENDF/B-V [3] e ENDF/B-IV[4] desenvolvidas pelo National Neutron Cross Section Center, Brookhaven National Laboratory, Estados Unidos. O espectro de nêutrons foi calculado pela combinação do espectro estático XSDRNPM[5] e o código multidimensional de depleção CITATION[6] .A formação ou desaparecimento de um dado nuclídeo por transmutação, fissão ou decaimento durante um ciclo de irradiação é calculada usando um modelo pontual para resolução das equações não levando-se em consideração outros efeitos espaciais, efeitos de ressonância de alto absorção ou mudanças no espectro de nêutrons senão aqueles já estabelecidos previamente em seu banco de dados.

Por meio deste código a taxa na qual a concentração de um dado nuclídeo "i" muda durante um período de irradiação é descrita por meio de um sistema acoplado de equações diferenciais do tipo:

$$\frac{dX_i}{dT} = \sum_{j=1}^N l_{ij} h_j x_j + \phi \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k x_k - (h_i + \phi \sigma_i + r) x_i + F_i \quad (1)$$

$i = 1, 2, \dots, N,$

onde:

x_i = densidade atômica do nuclídeo i ;

T = período de irradiação ;

N = número de nuclídeos presentes ;

λ_{ij} = fração de desintegração radioativa de outros nuclídeos que levam a formação do nuclídeo "i";

h_i = constante de decaimento radioativo do nuclídeo "i";

ϕ = fluxo médio de nêutrons ponderados na posição e energia;

f_{ik} = fração de nêutrons que quando absorvidos por outros nuclídeos levam a formação do nuclídeo "i";

σ_k, σ_i = seção de choque média de absorção de nêutrons do nuclídeo "k" e "i", respectivamente;

r_i = taxa de remoção contínua do nuclídeo "i";

F_i = taxa de alimentação contínua do nuclídeo "i"

Durante o ciclo de irradiação existirão "n" equações do tipo acima descritas para os "n" nuclídeos presentes. A solução deste sistema de equações diferenciais é feita pelo método de matriz exponencial, descrito detalhadamente por Croff [6], e fornece a quantidade de cada nuclídeo presente.

Devido a grande versatilidade e volume de informações fornecidas, o código ORIGEN 2 encontra diferentes aplicações no ciclo do combustível nuclear dentre as quais destacam-se projetos e operações de instalações nucleares;

- cálculos de calor de decaimento em piscinas de resfriamento de combustíveis nucleares irradiados;
- cálculos de espectros de irradiação gama utilizados na avaliação e projetos de blindagens para laboratórios e cascos de transporte de material nuclear irradiado;
- projetos de plantas de reprocessamento e depósitos de rejeitos radioativos;
- análises de risco;
- projeção de composição e características de rejeitos radioativos.

OBJETIVOS

Este trabalho tem como objetivo demonstrar o potencial do código computacional ORIGEN 2 na caracterização isotópica de combustíveis nucleares irradiados e previsão de formação de elementos actídeos e produtos de fissão.

PARTE EXPERIMENTAL

A parte experimental deste trabalho foi realizada junto ao grupo de radioquímica e análises isotópicas do Institut für Transurium Elements, EURATON, Karlsruhe, Alemanha Ocidental.

Os dados experimentais utilizados foram obtidos durante a caracterização isotópica de amostras de combustíveis nucleares irradiados provenientes de uma campanha de reprocessamento de dois elementos combustíveis pertencentes ao reator nuclear de potência a água pressurizada, da Central Nuclear de Obrigheim, com 350 MWe de potência, Alemanha Ocidental [8] .

Para o estudo desenvolvido neste trabalho foram selecionadas 3 varetas do elemento combustível designado pela sigla BE-124 e uma vareta do elemento combustível designada pela sigla BE-120. Ambos os elementos combustíveis são formados por 180 varetas com enriquecimento em ^{235}U de 3% e 2,83% ,respectivamente.

Na Figura 1 tem-se o diagrama esquemático do núcleo do reator e a posição dos elementos combustíveis em estudo durante os ciclos de irradiação a que foram submetidos.

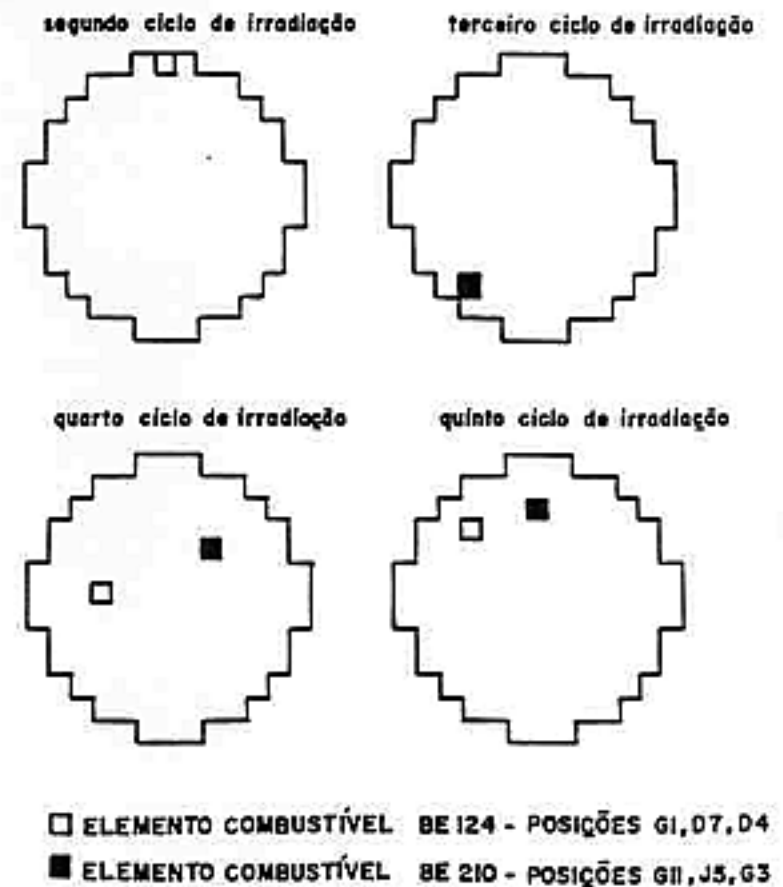


Figura 1. Diagrama esquemático do núcleo reator de Obrigheim.

A Figura 2 mostra a localização das varetas dentro de cada elemento combustível e na Figura 3 as posições de corte de cada vareta.

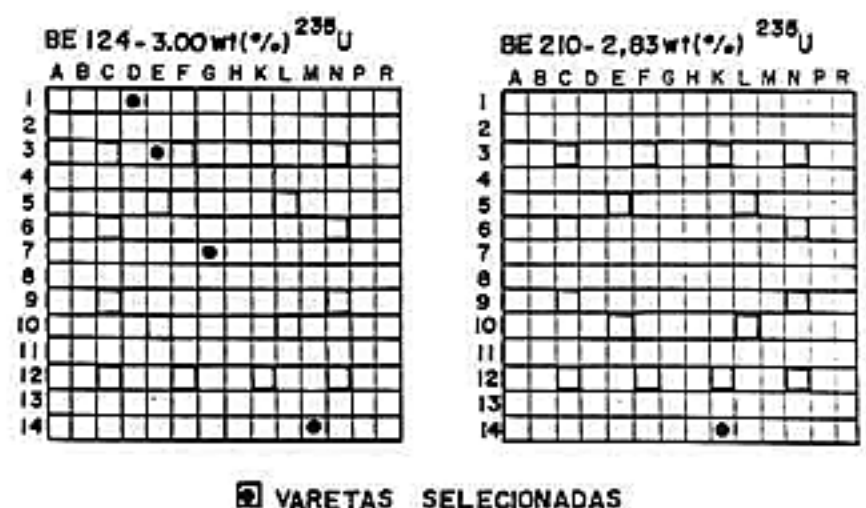


Figura 2 - Localização das varetas dentro de cada elemento combustível .

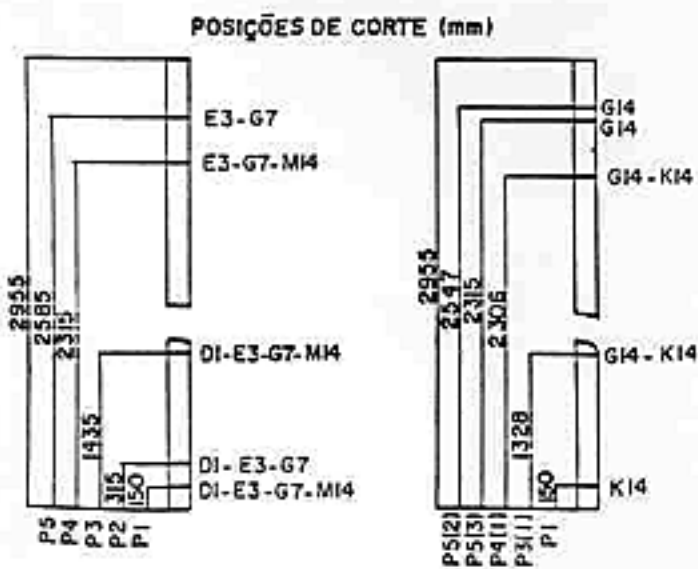


Figura 3 - Posições de corte de cada vareta.

As amostras utilizadas podem ser identificadas na Figura 3 por meio das seguintes siglas: M14P1R1-744, G7P1R2-741, M14P4R1-745, G7P5R1-743, E3P2R1-739, E3P4R2-740, G7P3R2-742, K14P4R1-747. De modo a simplificar a nomenclatura será adotado no texto somente a sigla numérica.

Simulação do Histórico de Irradiação das amostras em estudo por meio do Código Computacional ORIGEN 2. Além de informações básicas tais como tipo de reator, enriquecimento inicial, composição do elemento combustível e tempo de irradiação, a utilização de códigos computacionais exige um conhecimento detalhado do histórico de irradiação a que a amostra foi submetida.

Neste trabalho a simulação de irradiação foi feita a partir dos valores de queima e razão isotópica $^{148}\text{Nd}/^{238}\text{U}$ obtidos experimentalmente, dos dados fornecidos pela central de Obrigheim, da interpretação gráfica do histórico de irradiação, Tabela 1, apresentado na Figura 4 [7], desconsiderando-se pequenos transientes de potência.

De modo a exemplificar os procedimentos adotados considere-se, por exemplo, a amostra 742 do elemento combustível BE-124.

Pela análise dos dados da figura 4 tem-se que este elemento combustível foi submetido as seguintes taxas de irradiação.

POTÊNCIA	TEMPO DE IRRADIAÇÃO (DIAS)
100	770
90	42
80	37
60	67
50	4
30	10

Desse modo a taxa de potência relativa (TPR) é dada por:

$$\text{TPR} = 700 \cdot 2x \cdot 11 + 42 \cdot 2x \cdot 10,90 + 37 \cdot 2x \cdot 10,80 + 67 \cdot 2x \cdot 10,60 + 4 \cdot 2x \cdot 10,50 + 67 \cdot 2x \cdot 10,30 = 882,6 \quad (2)$$

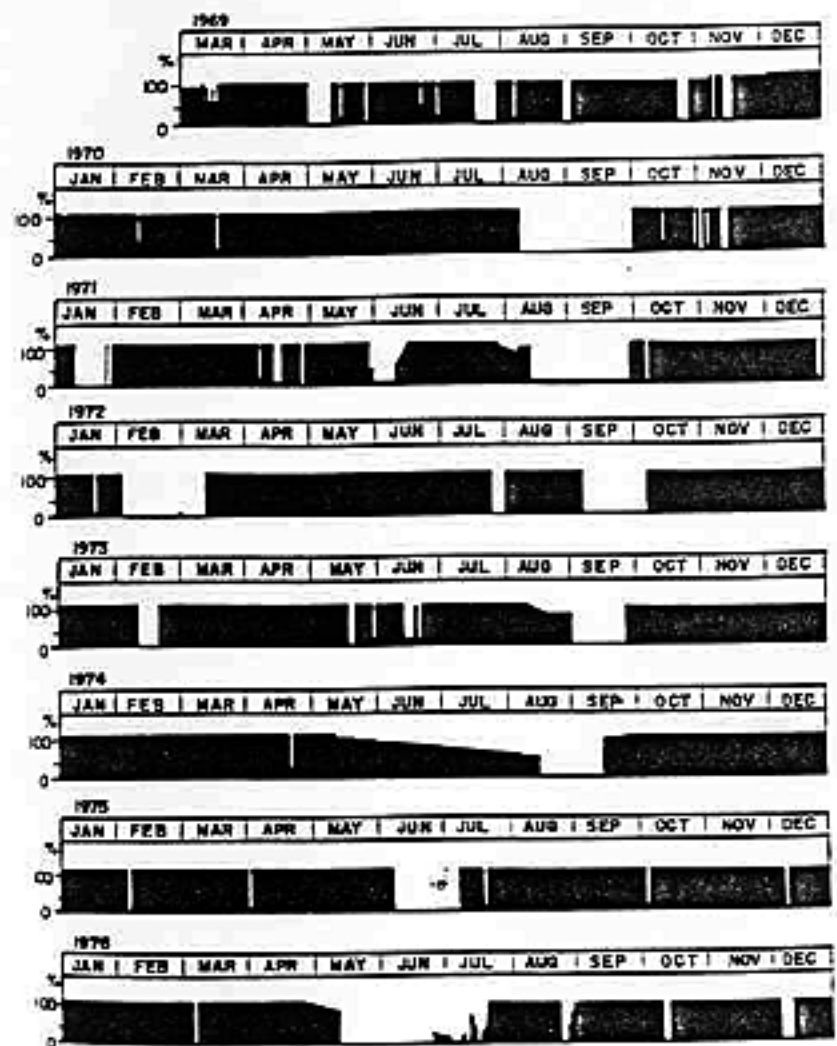


Figura 4 - Histórico de irradiação do reator de Obrigheim entre 1969 e 1976.

Como para esta amostra o valor da queima obtido experimentalmente foi de 31832 Mwd/t [9], calcula-se um fator de potência (FP) dividindo-se o valor experimental da queima pela taxa de potência relativa. No exemplo em questão tem-se:

$$\text{FP} = 31832,3 / 882,6 = 36,07 \quad (3)$$

TABELA 1. Interpretação do histórico de irradiação dos elementos combustíveis BE-120 e BE-124.

ELEMENTO COMBUSTÍVEL			
BE-120		BE-124	
Tempo de Irradiação (Dias)	Potência (%)	Tempo de Irradiação (Dias)	Potência (%)
30	100	5	100
5	0	2	0
8	100	101	100
4	0	1	0
60	100	13	100
9	0	43	0
77	100	135	100
8	0	5	0
40	100	35	100
5	80	28	0
43	100	131	100
5	0	5	0
5	80	83	100
17	90	6	0
420	0	25	100
131	100	10	30
5	0	39	100
88	100	27	85
6	0	24	0
25	100	229	100
10	0	25	90
40	100	13	85
27	80	54	78
24	0	5	50
229	100		
25	90		
67	60		
4	50		

Dessa forma estabelece-se a seguinte correspondência:

POTÊNCIA	FP
100	36,07
90	32,45
80	28,86
60	21,42
50	18,03
30	10,82

Os dados acima são inseridos na estrutura do programa ORIGEN 2 ajustando-os até que a razão isotópica $^{148}\text{Nd}/^{238}\text{U}$ esteja de acordo com o valor obtido experimentalmente. Os valores para 100% de potência e razão isotópica $^{148}\text{Nd}/^{238}\text{U}$ encontrados para as amostras foram:

Amostra	FP	$^{148}\text{Nd}/^{238}\text{U}$ ($\times 10^{-4}$)
739	32,66	5,305
740	35,71	5,888
741	24,50	3,436
742	36,07	5,911
743	29,75	4,905
744	17,98	2,900
745	28,75	4,706
747	37,20	7,096

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Na literatura internacional existem diversos trabalhos em que dados teóricos são comparados com valores experimentais [10, 11, 12] todavia, códigos computacionais não específicos, como o código ORIGEN2, possuem limitações na comparação direta com dados de composição e concentração isotópica com aqueles provenientes de um trabalho experimental. Isto deve-se ao fato de não levarem em consideração problemas ocasionais de dissolução e contaminação das amostras, características individuais de cada amostra em estudo tais como: variações temporais e locais no fluxo de energia de nêutrons, dimensões do encamisamento e da pastilha do combustível e, principalmente, devido à imprecisões nos dados nucleares e na interpretação do histórico de irradiação do combustível a ser analisado. Assim sendo, os dados a seguir apresentados serão analisados exclusivamente sob o ponto de vista de contabilidade e caracterização isotópica das amostras em estudo não levando em consideração, pois para tanto faltam informações, aspectos físicos nucleares.

Na Tabela a seguir, e até o final deste trabalho, as amostras serão apresentadas na ordem crescente à queima sofrida. Os dados obtidos experimentalmente receberão a notação "E" e aqueles obtidos por meio do código computacional ORIGEN 2 por "O" e "D" como a diferença percentual relativa..

Na Tabelas 2 são apresentados os resultados da composição isotópica, em percentagem atômica, para os principais isótopos de cada elemento analisado.

Os resultados obtidos mostram que os valores de composição isotópica experimentais e teóricos estão em boa concordância principalmente para os isótopos majoritários dos elementos urânio e plutônio

Para o caso dos isótopos neodímio verifica-se claramente a influência da contaminação na composição isotópica dos nuclídeos ^{150}Nd , ^{148}Nd .

Para os isótopos de amerício observam-se maiores desvios provavelmente devido a imprecisão dos dados nucleares

TABELA 2 - Composição Isotópica dos elementos ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{148}Nd , ^{150}Nd , ^{241}Am , ^{243}Am .

Nº	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu	^{241}Pu	^{148}Nd	^{150}Nd	^{241}Am	^{243}Am
744E	1,614	98,09	71,33	8,257	8,789	4,051	81,29	18,71
O	1,670	98,07	71,31	8,448	9,606	4,287	73,85	24,83
D	-3,47	0,03	-0,04	-2,31	-9,33	-5,83	9,16	-32,73
741E	1,475	98,21	68,98	9,197	9,768	7,582	73,19	26,81
O	1,485	98,22	67,86	9,539	9,633	4,352	65,40	33,36
D	-0,68	0,07	1,62	-3,71	1,38	42,6	10,64	-24,42
745E	1,074	98,54	60,43	12,21	9,024	4,267	44,18	55,82
O	1,102	98,54	60,71	11,97	9,731	4,516	45,86	53,17
D	-2,61	0,00	-0,46	1,99	-7,83	-5,83	-3,79	4,72
743E	1,049	98,57	60,05	12,27	9,054	4,258	46,74	53,27
O	1,050	98,59	59,75	12,22	9,745	4,535	43,09	55,99
D	0,010	-0,02	0,50	0,41	-7,63	-6,60	16,31	-12,67
739E	0,882	98,71	57,00	12,52	10,62	8,798	38,13	61,87
O	0,950	98,67	57,93	12,53	9,773	4,586	37,87	61,31
D	-7,71	0,41	-1,65	-1,72	7,97	47,87	0,68	0,91
740E	0,803	98,79	54,80	13,29	9,150	4,320	20,17	69,28
O	0,812	98,79	55,47	13,36	9,816	4,656	30,82	68,48
D	0,98	0,00	-1,22	-0,53	-7,27	-7,78	-0,35	1,16
742E	0,800	98,78	54,91	13,20	9,017	4,250	37,96	62,04
O	0,815	98,79	55,53	13,34	9,815	4,654	30,98	68,32
D	-1,88	-0,01	-1,12	-1,06	-8,85	-9,51	18,39	10,13
747E	0,530	99,05	50,68	13,66	9,241	4,420	30,88	69,12
O	0,533	99,06	51,05	14,51	10,01	4,886	18,58	80,97
D	-5,47	-0,08	0,74	-6,21	-8,32	-10,5	39,83	-17,14

Nas Tabela 3 são apresentados os valores de concentração isotópica dos nuclídeos de interesse em gramas por tonelada de combustível.

Assim como no caso anterior os valores teóricos e experimentais de concentração isotópica estão em boa concordância entre si. Para o caso dos isótopos de urânio e plutônio os valores encontrados estão de acordo com aqueles obtidos por Croff [12] quando da análise de amostras pertencentes aos reatores Turkey, Point Unit H.B. Robinson Unit 2 e Barberoe colaboradores [13] quando da análise de amostras pertencentes ao reator Trinno Vercellese.

Para o caso dos isótopos de amerício com utilização da técnica de diluição isotópica aplicada a espectrometria de massa, os desvios percentuais relativos aos dados experimentais foram de cerca de 5,5% para nuclídeo ^{241}Am e cerca de 8% para o nuclídeo ^{243}Am , para as amostras pertencentes ao elemento combustível BE-120. Para o

elemento combustível BE-124 esta diferença foi de cerca de 11% e 28% para os nuclídeos ^{242}Am e ^{243}Am , respectivamente.

Para o nuclídeo ^{241}Am o desvio médio percentual relativo aumenta para cerca de 17% a 41%, para as amostras BE-120 e BE-124, respectivamente, quando da correção da concentração isotópica para a data de parada do reator. Estes valores demonstram claramente a influência da concentração do nuclídeo ^{241}Pu e dos dados nucleares no cálculo teórico da formação do nuclídeo ^{241}Am .

TABELA 3 - Concentração. Isotópica dos elementos ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu , ^{148}Nd , ^{150}Nd , ^{241}Am , ^{243}Am .

Nº	^{235}U $\times 10^3$	^{238}U $\times 10^5$	^{239}Pu $\times 10^2$	^{241}Pu $\times 10^2$	^{148}Nd $\times 10^2$	^{150}Nd $\times 10^2$	^{241}Am $\times 10^2$	^{243}Am $\times 10^2$
744E	13,94	8,484	34,70	4,078	1,529	0,714	0,193	0,052
O	14,22	8,456	36,97	4,414	1,523	0,689	0,160	0,054
D(%)	-2,01	0,33	-6,54	-8,24	0,39	3,50	17,1	-3,85
741E	12,47	8,310	38,51	5,094	1,774	1,648	0,256	0,092
O	12,60	8,438	39,23	5,561	1,797	0,823	0,202	0,104
D(%)	-1,03	-1,54	-1,86	-9,16	-1,13	50,1	21,1	-13,0
745E	9,119	8,378	43,38	8,834	2,450	1,174	0,365	0,369
O	9,271	8,392	42,35	8,423	2,456	1,155	0,282	0,329
D(%)	-1,67	-0,17	2,37	4,65	-0,24	1,62	22,7	10,8
743E	8,859	8,343	44,62	9,195	2,543	1,212	0,355	0,421
O	8,817	8,385	42,67	8,800	2,558	1,207	0,293	0,379
D(%)	0,47	-0,50	4,37	4,30	-6,60	-0,4	17,5	9,98
739E	7,487	8,413	40,47	9,068	2,773	3,161	0,340	0,516
O	7,954	8,370	43,20	9,572	2,763	1,314	0,304	0,496
D(%)	-6,23	0,51	-6,76	-7,54	0,36	58,4	10,6	3,87
740E	6,676	8,229	42,80	10,32	3,031	1,451	0,360	0,707
O	6,771	8,346	43,84	10,65	3,075	1,478	0,319	0,715
D(%)	-1,42	-1,42	-2,43	-3,18	-1,45	-1,86	11,4	-1,13
742E	6,637	8,310	43,96	10,67	3,052	1,458	0,465	0,778
O	6,798	8,347	43,83	10,62	3,068	1,474	0,319	0,709
D(%)	-2,43	-0,45	0,30	-0,45	-0,52	-1,10	31,4	8,87
747E	4,422	8,271	39,38	10,74	3,647	1,768	0,540	1,088
O	4,414	8,306	44,55	12,77	3,663	1,811	0,317	1,391
D(%)	0,18	-0,42	-13,2	-18,9	-0,44	-2,43	41,3	-27,8

CONCLUSÕES

Verificou-se neste trabalho que mesmo na ausência de dados mais precisos sobre o histórico de irradiação das amostras em estudo a utilização do código computacional **ORIGEN2** apresentou resultados satisfatórios, quando comparados aos dados experimentais, na avaliação da composição e concentração isotópica principalmente para os isótopos majoritários de urânio, plutônio, amerício e neodímio o que comprova a utilidade destes códigos na avaliação da queima e inventário isotópico em combustíveis nucleares irradiados.

REFERÊNCIAS

[1] CROFF, A.G. **ORIGEN2 - a revised and update version of the Oak Ridge isotope generation and**

depletion code. Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., July, 1980 (ORNL-5621).

[2] BELL, M.J. **Origem - The ORNL isotope generation and depletion code.** Oak Ridge National Lab., May, 1973 (ORNL-4628).

[3] ENDF/B - V Library tapes 514-521 and 522, available from the national neutron cross section center. Upton, Brookhaven National Lab., July 1979 apud CROFF, A.G. **ORIGEN2: a revised and update version of origem.** Trans.Am. Nuclear Soc., 34: 349-50, 1980

[4] ENDF/B - IV Library tapes 401-411 and 414-419, available from the national neutron cross section center. Upton, Brookhaven National Lab., Dec. 1974 apud CROFF, A.G. **ORIGEN2: a revised and update version of origem.** Trans.Am. Nuclear Soc., 34:349-50, 1980.

[5] GREENE, N.M.; LUCIUS, J.L.; PETRIE, L.M.; FORD III, W.E.; WHITE, J.E.; WRIGHT, R.Q. **AMPX: a modular code system for generating complete multigroup neutro-gamma libraries from ENDF/B.** Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., Mar 1976 [ORNL/TM-3706] apud CROFF, A.G. **ORIGEN2: a revised and update version of origem.** Trans.Am.Nucle.Soc., 34:349-50, 1980.

[6] FOWLER, T.B.; VONDY, D.R.; CUNNINGHAM, G.W. **Nuclear reactor core analysis code: citation.** Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., July 1971 (ORNL/TM-2496 REV.2) apud CROFF, A.G. **ORIGEN2: a revised and update version of origem.** Trans.Am.Nucl.Soc., 34:349-50, 1980.

[7] CROFF, A.G. **ORIGEN2: a versatile computer code for calculating the nuclide compositions and characteristics of nuclear materials.** Nucl. Technol., 62(9):335-52, 1983.

[8] KOMMISSION DER EUROPAISCHEN GEMEINSCHAFTEN. **Kernkraftwerk Obrigheim: jahresbericht 1973.** Brussels, Dec. 1974 (EUR-5315d).

[9] SARKIS, JORGE EDUARDO DE S.; RODRIGUES C. **Determinação da Queima em Combustíveis Nucleares Irradiados por meio da Medida do Produto DE Fissão ^{137}Cs .** Neste congresso

[10], W.B.; LABAUVE, R.J.; ENGLAND, T.R. **Calculations of spent thermal reactor fuel nuclide inventories and comparisons with measurements.** Palo Alto, Electric Power Research Inst., 1983 (EPRI-N-28885).

[11] CROFF, A.G. **Comparison of experimentally determined spent fuel compositions with ORIGEN2 calculations.** Trans.Am.Nucl. Soc., 39:215-17, 1981.

[13] BARBERO, P.; BIDOGLIO, G.; BRESESTI, M.; CHEVALIER, R.; D'ADAMO, D. **Post irradiation of the fuel discharged from the Trino Vercellese reactor after the 2nd irradiation cycle.** Ispra, Commission of the European Communities, Mar. 1977. (EUR 5605).

ABSTRACT

The ORIGEN2 computer code is widely used for calculating nuclide depletion and production during the irradiation of nuclear fuels . In the present work it will be presented a comparison between the evaluation of the isotope content in eight nuclear irradiated samples obtained by ORIGEN2 code against spent-fuel radiochemistry measurements .