

# DETERMINAÇÃO DA QUEIMA EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES IRRADIADOS POR MEIO DA MEDIDA DO PRODUTO DE FISSÃO $^{137}\text{Cs}$

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

A queima de um combustível nuclear pode ser definida de diferentes maneiras. Entretanto , em linhas gerais , pode-se dizer que a queima representa o grau de utilização do combustível nos reatores. Dessa forma o seu conhecimento preciso é de grande importância quer sob aspectos econômicos quer sob aspectos de segurança quer sob o ponto de vista de contabilidade do material nuclear . Neste trabalho será discutida a determinação da queima em combustíveis nucleares irradiados pelo método destrutivo baseado na medida da concentração do produto de fissão  $^{137}\text{Cs}$  . As amostras utilizadas foram provenientes do reator PWR da Central Nuclear de Obrigheim , Alemanha Ocidental e apresentaram uma queima na faixa de 15,6 a 31,8 gwd/t . O resultados serão comparados com aqueles obtidos por meio da técnica de espectrometria de massas baseado na medida do produto estável de fissão  $^{148}\text{Nd}$ .

## INTRODUÇÃO

O termo queima, *burnup* , é utilizado genericamente para expressar o número de fissões que ocorrem em um combustível durante seu período de utilização no reator nuclear expressando o grau de consumo do mesmo devido ao processo de fissão.

A queima do combustível nuclear irradiado pode ser definida de diversas maneiras dependendo do método utilizado na sua determinação e do parâmetro cuja variação com a queima está sendo estudado.

Na indústria nuclear a queima é normalmente expressa em termos da quantidade de energia térmica produzida por tonelada métrica de átomos pesados inicialmente presentes no combustível (massa molecular > 232); em metalurgia define-se como a densidade de fissão e em economia utiliza-se o termo rendimento em energia. Neste trabalho, assim como na maioria das atividades de pesquisa e desenvolvimento a queima será expressa em função da percentagem de átomos fissionados, ou seja, o número de fissões ocorridas por cem átomos pesados inicialmente presentes no combustível.

A determinação da queima em combustíveis nucleares irradiados pode ser obtida por meio de métodos destrutivos, não destrutivos, por correlações isotópicas e através de códigos computacionais . Um levantamento destes métodos pode ser encontrado em trabalhos publicados por Cunha [ 1 ] , Stover [ 2 ] , Sarkis [ 3 ] .

Os métodos não destrutivos , em geral , fazem uso de propriedades nucleares específicas ( emissão de raios

gama , nêutrons atrasados , calor de decaimento etc.) de produtos de fissão selecionados ou átomos pesados residuais .

Os métodos destrutivos envolvem a dissolução da amostra após a retirada do combustível do reator seguida de análises químicas e isotópicas de elementos pesados e produtos de fissão .

## MÉTODOS DESTRUTIVOS PARA DETERMINAÇÃO DA QUEIMA

Os principais métodos destrutivos para a determinação da queima baseiam-se nas técnicas de espectrometria de massa , método do  $^{148}\text{Nd}$  , e espectrometria gama , método do  $^{137}\text{Cs}$  .

Em ambos os casos o número de fissões é calculado dividindo-se a concentração do produto de fissão selecionado pelo seu rendimento de fissão relativo ao principal, ou principais, isótopos físeis presentes no combustível [ 4 ] .

**Método do  $^{137}\text{Cs}$ .** O método radioquímico baseado na medida da atividade gama do nuclídeo  $^{137}\text{Cs}$  é um dos métodos mais empregados no controle de processos em instalações nucleares principalmente para combustíveis nucleares de baixo enriquecimento em  $^{235}\text{U}$  submetidos a longos períodos de irradiação. A utilização deste nuclídeo como monitor da queima traz as seguintes vantagens [5] :

- alto rendimento de fissão conhecido com grande precisão ;
- possui uma cadeia de decaimento bem conhecida ;
- meia vida suficientemente grande ;
- baixa seção de choque de absorção de nêutrons para todos os nuclídeos de número de massa 136 pertencentes a cadeia de formação ;
- pouco sensível a variações de energia do espectro de nêutrons ;
- membro de maior meia vida na cadeia de formação ;
- energia gama suficientemente alta ;

As principais desvantagens consistem na migração que este nuclídeo sofre em combustíveis sob altas taxas de queima e a necessidade de um conhecimento preciso do histórico de irradiação .

Por meio deste método a queima sofrida pelo combustível (PF%) pode ser relacionada com a atividade gama do nuclídeo  $^{137}\text{Cs}$  através da seguinte fórmula[6] .

$$\text{PF}\% = \frac{(K \cdot R_{\text{Cs/U}}) / E_{37}}{1 + R_{\text{Pu/U}} + (K \cdot R_{\text{Cs/U}}) / E_{37}} \quad (1)$$

onde:

$R_{\text{Cs/U}}$  = razão atômica entre  $^{137}\text{Cs}/\text{U}$ ;

$R_{\text{Pu/U}}$  = razão atômica entre  $\text{Pu}/\text{U}$  ;

$E_{37}$  = rendimento de fissão do nuclídeo  $^{137}\text{Cs}$  para o nuclídeo  $^{235}\text{U} = 0,06376$

$K$  = fator de correção da concentração do nuclídeo para o decaimento radioativo durante o período de irradiação e resfriamento dado por :

$$K = \frac{e^{-LT} * (1 - e^{-Lt})}{e^{-Lt}} \quad (2)$$

onde:

$L$  = constante de decaimento do nuclídeo

$^{137}\text{Cs} = 7,32 * 10^{-10} \text{ (s}^{-1}\text{)}$ ,

$T$  = tempo de irradiação em segundos ; ,

$t$  = tempo de resfriamento em segundos.

Segundo Barbero [ 6 ] para o reator de Obrigheim tem-se :  $\text{Pu/U} = 8,38 * 10^{-3}$  e  $[\text{U}] = 880000\text{gr/t}$  de combustível .

## OBJETIVO DESTA TRABALHO

Este trabalho tem como objetivo demonstrar o potencial do método radioquímico para a determinação da queima em combustíveis nucleares irradiados baseado na medida do produto de fissão  $^{137}\text{Cs}$  .

## PARTE EXPERIMENTAL

A parte experimental deste trabalho foi desenvolvida junto ao grupo de radioquímica e análise isotópica do Institut für Transuraniu Elements , localizado no Kernforschungszentrum Karlsruhe, KFK, na cidade de Karlsruhe, Alemanha Ocidental .

As amostras analisadas pertenciam a planta nuclear de Obrigheim operada pela Kernkraftwerk Obrigheim e equipada com um reator a água pressurizada, PWR , com 350 MWe de potência [ 7 ] .

Para o estudo desenvolvido neste trabalho foram selecionadas 4 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  $^{235}\text{U}$  de 3% e 2,83% ,respectivamente.

A determinação da atividade gama do nuclídeo  $^{137}\text{Cs}$  baseou-se na medida das contagens líquidas sob os picos nas regiões de interesse e comparação dos valores encontrados com aqueles obtidos quando da análise de padrões, com a mesma geometria, de massa e atividades bem definidas [5] .

O nuclídeo  $^{137}\text{Cs}$  foi analisado pelos raios gama na região de 662 keV correspondente a transição isomérica de seu filho meta estável  $^{137}\text{Ba}$  cuja meia-vida é de 2,6 minutos.

Assim sendo, cerca de 1,5 gramas de solução amostra, sem qualquer tratamento químico prévio, foram pesadas em um papel de filtro preso a um disco de aço inoxidável adaptado a um suporte de acrílico conforme desenho esquematizado na Figura 1 .

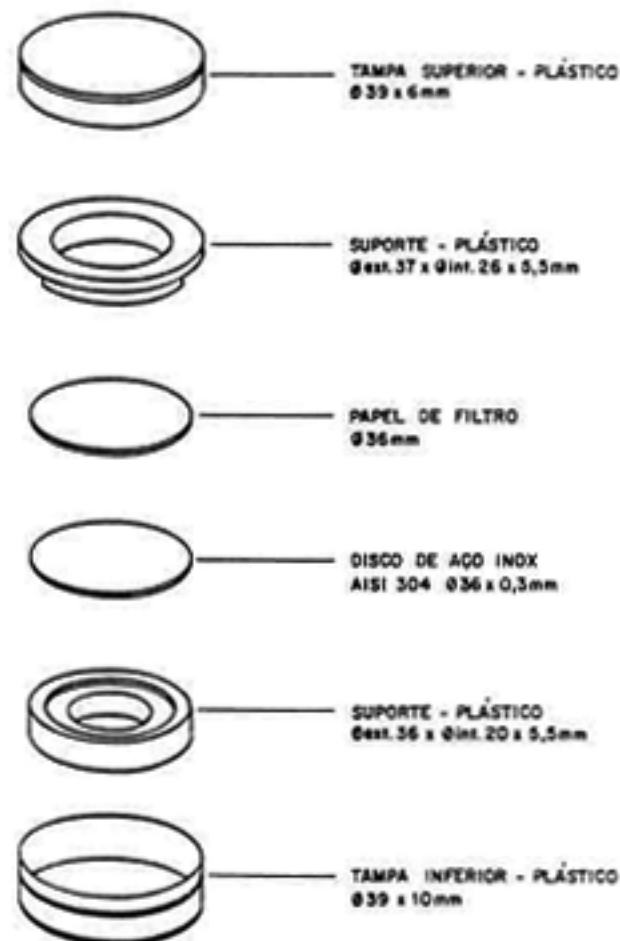


Figura 1-. Suporte Para Análise das Amostras Para Espectrometria Gama

Para análise do nuclídeo  $^{137}\text{Cs}$  utilizou-se um espectrômetro gama constituído de um detetor para um Ge(Li) coaxial Ortec modelo n 58 19011-10195-5 com resolução de 1,75 keV para energia de 1330 keV, blindado contra radiação de fundo com uma folha de chumbo com cerca de 15 mm de espessura, analisador multicanal Ortec modelo 6240B, sistema de aquisição de dados, teletipo e eletrônica associada.

Um porta-amostra confeccionado em acrílico foi fixado na base do detetor de modo a permitir variações na distância entre os detetores e a amostra de acordo com a atividade da mesma.

O sistema analisador de dados calcula e corrige, para o dia da análise, a atividade dos nuclídeos de interesse nos padrões e amostras assim como contribuições da radiação de fundo.

Cada amostra e padrão foram medidos até que a contagem líquida na área definida sob os picos dos nuclídeos de interesse espectrometria gama, fosse de cerca de  $10^{25}$  contagens. Este procedimento foi realizado por três vezes para cada amostra e padrão.

A concentração do nuclídeo de interesse nas amostras foi então calculada pela simples relação:

$$CA = \frac{CP * AA}{M * AP} \quad (3)$$

onde:

CA, CP = número de átomos dos nuclídeos de interesse na amostra e no padrão, respectivamente;

AA, AP = atividade dos nuclídeos de interesse na amostra e padrão;

M = massa da solução amostra.

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

Na Tabela 1 são apresentados os valores de concentração isotópica obtidos para o nuclídeo  $^{137}\text{Cs}$  na data da medida. A precisão para todas as análises foi de cerca de 1%. O valor de "K" representa a correção da concentração deste nuclídeo para o decaimento radioativo durante e após a irradiação conforme descrito na seção II.1 deste trabalho. A concentração deste nuclídeo no dia da parada do reator foi obtida multiplicando-se a concentração isotópica medida pelo fator K.

De modo a podermos avaliar a eficácia da técnica, na Tabela 2 os resultados são comparados com aqueles obtidos por meio do método de espectrometria de massa baseado na medida do produto de fissão  $^{148}\text{Nd}$  [8].

TABELA 1. Concentração do Nuclídeo  $^{137}\text{Cs}$  nas Amostras Em Estudo

Tempo			Fator K	Concentração $^{137}\text{Cs}$ g/ton de combustível
amostra	Irradiação	Resfriamento		
744	886	3510	1,2839	441,0
741	886	3510	1,2839	489,7
745	886	3510	1,2839	715,0
743	886	3510	1,3052	721,8
739	886	3770	1,2839	784,3
740	886	3510	1,3052	818,4
742	886	3770	1,2839	864,9
747	916	3510	1,2841	944,3

TABELA 2. Comparação Entre os Valores de Queima das Amostras Obtidos por Meio dos Métodos do  $^{148}\text{Nd}$  e  $^{137}\text{Cs}$

Amostra	Queima em % Átomos Fissionados		Diferença Percentual Relativa
	$^{148}\text{Nd}$	$^{137}\text{Cs}$	
744	1,66	1,75	-5,42
741	2,26	1,98	12,38
745	2,65	2,85	-7,55
743	2,74	2,89	-5,47
739	3,79	3,12	17,68
740	3,29	3,32	-0,91
742	3,31	3,47	-4,83
747	3,50	3,80	-8,60

Para as amostras 740, 742, 743, 744 e 745 do elemento combustível BE-124 a diferença média absoluta percentual relativa ao método  $^{148}\text{Nd}$  foi de 4,83% e máxima de 7,55%. Para a amostra 747 do elemento combustível BE-120 foi de 8,6%. Estes resultados estão de acordo com aqueles encontrados na literatura internacional para diferentes tipos de reatores PWR [9, 10, 11], podendo ser usados em processos considerando-se que para fins de reprocessamento, por exemplo, as exigências de precisão e exatidão para os valores de queima são de 5% e 10%, respectivamente [12].

Os valores de queima obtidos por meio do método do  $^{137}\text{Cs}$  foi, para todas as amostras, superior aqueles encontrados pelo método do  $^{148}\text{Nd}$ . Como esta diferença foi praticamente constante em toda extensão do intervalo de queima atribuiu-se a isto as incertezas nos dados nucleares e no histórico de irradiação não havendo elementos, neste trabalho, para que se possa atribuí-las a migração do cézio dentro das varetas do elemento combustível.

As amostras 739 e 741 apresentam um desvio acima da média. Sarkis [ 13 ] observa , para estas mesmas amostras , que os valores de abundância isotópica para o nuclídeo  $^{150}\text{Nd}$  estão acima dos valores médios encontrados para as demais amostras. A razão deste desvio atribuiu-se à contaminação das amostras pela solução traçadora enriquecida neste nuclídeo já que durante as análises isotópicas não foram observados presença substancial do nuclídeo  $^{142}\text{Nd}$ , o que elimina a possibilidade de contaminação de neodímio natural, nem tão pouco a presença do nuclídeo  $^{147}\text{Sm}$ , eliminando a possibilidade de contaminação por erros nos procedimentos de separação química.

## CONCLUSÕES

Embora menos preciso do que o método do  $^{148}\text{Nd}$  o método do  $^{137}\text{Cs}$  possui a vantagem de ser rápido e não exigir procedimentos de separação química complexos para a sua execução. Assim sendo, será adotado neste trabalho, para as amostras 739 e 741, os valores de queima obtidos por meio do método do produto de fissão  $^{137}\text{Cs}$ .

O método do  $^{148}\text{Nd}$  é o mais preciso e tradicionalmente empregado método para determinação da queima em combustíveis nucleares irradiados . Entretanto , sua utilização envolve procedimentos de separação química complexos e demorados o que, além de elevar os custos das análises, aumenta a possibilidade de contaminação das amostras . Conseqüentemente , não é um método adequado para análises de rotina .

O método destrutivo por espectrometria gama, embora menos preciso possui a vantagem de ser mais rápido, não exigindo procedimentos de separação química específicos e envolve uma quantidade limitada de amostra sendo, portanto, utilizado principalmente em análises de rotina. Por outro lado sua utilização exige um conhecimento preciso do tempo de resfriamento da amostra.

Sua importância como método de controle nos processos de avaliação de amostras irradiadas pode ser exemplificado neste trabalho para o caso das amostras 739 e 741 .

## REFERÊNCIAS

[ 1 ] CUNHA, I.L.L. **Aplicação do Método Radioquímico de Espectrometria de Raios Gama Direto para Determinação da Queima do Óxido de Urânio Irradiado.** São Paulo, 1979 (Dissertação de mestrado, Instituto de Química, Universidade de São Paulo).

[ 2 ] STOVER, R.L. & MOELLER, G.K. **Methods for Determining Fuel Burnup.** Oak Ridge, Massachusetts Inst. of Tech., July 1961 (MIT-OR-6) .

[ 3 ] SARKIS , JORGE EDUARDO E S. - **Determinação da Queima em Combustíveis Nucleares Irrradiados pelo Método do Produto Estaável de Fissão  $^{148}\text{Nd}$  .** São Paulo , 1982 ( Dissertação de Mestrado , Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares ).

[ 4 ] LISMAN, F.L.; MAECK, W.J.; REIN, J.E. **Determination of Nuclear Fuel Burnup from Fission Product Analysis.** Nucl. Sci.Eng., 42:215-7, 1970.

[ 5 ] RIDER, B.F.; RUSSEL JR., J.C.; HARRIS, D.W.; PETERSON JR., J.P. **The Determination of Uranium Burnup in MWD/Ton.** San Jose, Ca., General Electric Co., Mar. 1960 (GEAP-3373).

[ 6 ] AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. **Standard Test Method for Cesium-137 in Irradiated Nuclear Fuels by High-Resolution Gamma-ray Spectra Analysis.** 1979. (ASTM-E-692-79). In: 1983 ANNUAL book of ASTM standards, section 12: Nuclear, solar and geothermal energy. v. 12.02, p.398-401.

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

[ 8 ] SARKIS , JORGE EDUARDO DE S. ; RODRIGUES , C. **Determinação da Queima em Combustíveis Nucleares Irradiados Pelo Método do Produto Estável de Fissão  $^{148}\text{Nd}$  .** Anais do IV Congresso Geral de Energia Nuclear , Rio de Janeiro , 5 a 9 de Julho de 1992 , Vol 1. pp. 171 - 175 .

[ 9 ] BARBERO, P.; BIDOGLIO, G.; BRESESTI, M.; CALDIROLI, A.; DANIELE, F. **Post Irradiation Analysis of the Gundremmingen BWR Spent Fuel.** Ispra, Commission of the European Communities, 1979. (EUR 6301).

[ 10 ] 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).

[ 11 ] BARBERO, P.; BIDOGLIO, G.; CALDIROLI, A.; DANIELE, F.; DE MEESTER, R. **Post Irradiation Analysis of the Obrigheim PWR Spent Fuel.** Eur. Appl. Res. Rep. Nucl. Sci. Technol. Sect., 2 (1):129-77, 1980.

[ 12 ] FUDGE, A.J. & FOSTER, E. **Procedures for the Determination of Burnup by Chemical Methods and Nuclear Data Requirements in Burnup Calculations.** In: HURRELL, M.L. ed. **Chemical Nuclear Data. Measurements and applications: International conference on held in Canterbury, 20-22 September,**

1971. London, Institution of Civil Engineers, 1971, p.65-74.

- [ 13 ] SARKIS , JORGE EDUARDO DE S. - **Aplicação da Técnica de Correlação Isotópica para a Determinação da Concentração dos Nuclídeos  $^{241}\text{Am}$  e  $^{243}\text{Am}$  em Combustíveis Nucleares Irrradiados** . São Paulo , 1990 ( Tese de Doutorado , Instituto de pesquisas Energéticas e Nucleares ).

#### ABSTRACT

This paper describes the radiochemical method for burnup determination based on the destructive gamma analysis of the fission product  $^{137}\text{Cs}$  . Seven samples , from the Obrigheim Nuclear Power Plant , in a wide range of burnup values were analysed . The results were compared with the ones obtained by using the mass spectrometric method -  $^{148}\text{Nd}$  .