

ANÁLISE NÃO DESTRUTIVA DA MASSA DE URÂNIO EM ELEMENTO
COMBUSTÍVEL DE REATOR TIPO MTR

PAULO ROGÉRIO PINTO COELHO

E

LAO HOLLAND

CENTRO DE ENGENHARIA NUCLEAR
ÁREA DE FÍSICA DE REATORES
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
SÃO PAULO - SP

RESUMO

Apresentam-se
~~Neste trabalho são apresentados~~ resultados da análise não destrutiva da massa de urânio natural através da técnica de fonte pulsada. O método empregado é o de medida relativa, sendo que a massa de urânio é determinada através da medida da produção de nêutrons atrasados, emitidos após fissões produzidas pela irradiação da amostra com pulsos de nêutrons de energia aproximadamente igual a 14 MeV.

Três tipos de amostras foram analisadas, a saber : discos de urânio metálico, pastilhas sinterizadas de óxido de urânio e placas de liga urânio-alumínio, envoltas por uma camada de alumínio. Essas placas simulam aquelas de elementos combustíveis de reator tipo MTR (Material Testing Reactor).

Os resultados das medidas são reprodutíveis dentro do intervalo de 1,6 a 3,9%. O erro numa medida específica depende da forma, tamanho e massa da amostra. *(autor)*

I. INTRODUÇÃO

O objetivo do presente trabalho foi implantar no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares um sistema de análise não-destrutiva, através da irradiação da amostra com nêutrons, para a determinação quantitativa de urânio em matrizes que contenham associados a materiais não fissionáveis, em várias composições e formas físicas. Em particular, realizaram-se análises utilizando discos de urânio metálico, pastilhas de óxido de urânio e placas de liga urânio-alumínio, tendo em vista a utilização desse sistema para salvaguarda e para controle de qualidade no processo de fabricação de elementos combustíveis de reatores nucleares.

II. DESCRIÇÃO DO MÉTODO

A determinação da quantidade de urânio contida nas amostras é feita pelo método de medida da produção de nêutrons atrasados, emitidos após fissões induzidas nas amostras por pulsos de nêutrons interrogadores (nêutrons da fonte pulsada) de energia aproximadamente igual a 14 MeV.

Os nêutrons interrogadores são gerados por um acelerador Van de Graaff^(*), operado de modo pulsado em 200 kV, através da reação ${}^3\text{H}(d,n){}^4\text{He}$.

É difícil a detecção de nêutrons atrasados na presença de nêutrons prontos e de nêutrons interrogadores. Para contornar esse obstáculo e possibilitar a utilização de equipamentos de contagem simples, é necessário usar uma fonte pulsada de nêutrons interrogadores e contar o número de nêutrons atrasados no intervalo de tempo entre esses pulsos. A medida é feita utilizando-se um detector de nêutrons tipo fatia ("long counter")⁽²⁾, associado a um sistema de análise de altura do pulso. Um detector de nêutrons do acelerador, é utilizado como monitor, para normalizar as contagens de nêutrons atrasados quanto a variações do fluxo de nêutrons do acelerador, durante cada irradiação e entre irradiações de várias amostras.

O método é de medida relativa, ou seja, a determinação da quan

(*) Da High Voltage Engineering Corp., Modelo EN,400, com voltagem máxima de operação igual a 400 kV.

tidade de urânio na amostra a ser analisada é obtida comparando-se as contagens normalizadas de nêutrons atrasados para a amostra desconhecida com as contagens normalizadas obtidas em medidas similares, para uma amostra padrão de massa e composição conhecidas.

A produção de nêutrons atrasados é proporcional ao número de fissões ocorridas que, por sua vez, é proporcional à quantidade de isótopo fissionável presente, desde que a multiplicação e a auto-absorção de nêutrons na amostra sejam insignificantes; assim sendo, a contagem integrada para os vários ciclos de uma medida é proporcional à integral (no tempo) da produção de nêutrons atrasados e à quantidade de material fissionável presente na amostra irradiada com os nêutrons interrogadores.

Na Figura 1 está indicado o intervalo de tempo de contagem de nêutrons atrasados em função dos pulsos de nêutrons interrogadores.

Demonstra-se (1) que o acelerador deve ser modulado com um período menor do que a meia vida de qualquer precursor de nêutrons atrasados e, também que a irradiação deve se prolongar por um tempo muito maior do que a meia vida de qualquer um desses precursores, para que a produção de nêutrons atrasados, resposta aos pulsos do acelerador, alcance um valor de equilíbrio (para intensidade média constante de nêutrons interrogadores). Só após ter sido alcançado esse valor de equilíbrio é que deve ser iniciada a contagem de nêutrons atrasados.

Por meio de cálculo computacional, foram otimizados os tempos de irradiação e contagem, tendo-se em vista a maior acumulação de contagens, em menor tempo, com a conseqüente minimização de erros estatísticos, obtendo-se os seguintes parâmetros: períodos dos pulsos (t_p) = 120 ms ; largura do pulso de irradiação (t_i) = 60 ms. Os valores de t_c e t_b devem ser determinados experimentalmente,

A razão entre a contagem no detector fatia (C_{DF}) e a contagem no monitor (C_M) não é afetada por variações na intensidade de nêutrons interrogadores. O valor dessa razão (C) é chamado de contagem normalizada.

Em todas as análises realizadas no decorrer deste trabalho, as amostras utilizadas eram constituídas unicamente de urânio natural, como material fissionável; assim sendo, a abundância relativa (f_i) de cada um dos (i) isótopos de urânio é uma constante para todas as amostras, tanto as desconhecidas como a padrão. Esse fato possibilita algumas simplificações em termos de cálculo com a conseqüente obtenção da equação de calibração do sistema que é:

$$m_a = \frac{(C_a - CF)}{(C_p - CF)} m_p \quad (1)$$

Onde o índice a se refere à amostra desconhecida e o índice p à amostra padrão; m é a massa; C é a contagem normalizada e CF é a contagem de fundo definida como toda contagem que não seja devida aos nêutrons atrasados emitidos pelo urânio.

III. ARRANJO EXPERIMENTAL

O esquema simplificado do equipamento eletrônico utilizado está apresentado na Figura 2. O equipamento de controle do acelerador Van de Graaff e a maior parte dos equipamentos eletrônicos associados ao monitor e ao detector fatia estão na sala de controle que dista aproximadamente 30 m da sala do acelerador.

Com o objetivo de obter alta eficiência na detecção dos nêutrons atrasados, foi construído um detector tipo fatia que é similar ao utilizado no programa de salvaguarda do laboratório de Los Álamos.

Três tipos de amostras foram analisadas, a saber: discos de urânio metálico, pastilhas sinterizadas de óxido de urânio, e placas de liga urânio-alumínio (núcleo), envoltas por duas outras placas de alumínio. Essas placas simulam aquelas de elementos combustíveis de reator tipo MTR (Material Testing Reactor).

A massa do núcleo de cada uma das 18 placas usadas é de 60 ± 1g com 17,9 a 18% de urânio em peso e as dimensões da placa são 62,5 x 7,11 x 0,165 cm. Foram usadas até 18 placas de "elementos combustíveis".

As placas dos elementos combustíveis utilizadas no IEA RI têm a região ativa U-Al, com urânio enriquecido a 93% em ²³⁵U, diferindo nessa característica das placas utilizadas para a execução do presente trabalho, que têm urânio natural.

IV. ANÁLISE DOS ERROS

As principais fontes de erro neste método de análise são os erros associados à estatística de contagem, à determinação das massas dos padrões, ao posicionamento da amostra e às variações nos tempos de irradiação e contagem.

O erro total no resultado da análise é dado pela raiz quadrada da soma dos quadrados do erro associado a cada parâmetro da análise, os quais são apresentados na Tabela I.

Os erros associados aos parâmetros da análise, apresentados na Tabela I, foram calculados para as análises em que eles eram maiores; assim sendo, nas outras análises, o erro total é sempre menor do que o aqui apresentado.

V. MEDIDAS E ANÁLISE DOS DADOS

A seguir serão discutidas as medidas mais significativas e mais representativas dentre as que foram realizadas na execução deste trabalho.

1) Investigação do efeito da presença de alumínio na medida de nêutrons atrasados.

Essa investigação foi realizada tendo-se em vista a aplicação desse método de fonte pulsada a elementos combustíveis do reator IEA R1, os quais são constituídos de 19 placas de liga urânio-alumínio, envoltas cada uma delas por uma camada de alumínio.

Nessa investigação utilizaram-se 4 discos de urânio metálico (massa total = $3927,5 \pm 0,05\text{g}$) para os quais os erros devidos a estatísticas de contagem são menores do que para as placas de elemento combustível usadas.

Foi investigado o efeito da colocação de discos de alumínio, do mesmo diâmetro dos discos de urânio metálico, em duas posições: a) entre o alvo do acelerador Van de Graaff e 4 discos de urânio; b) entre 4 discos de urânio e o detector tipo fatia.

A partir das medidas realizadas, concluiu-se que a influência do alumínio é explicável em termos da atenuação da intensidade dos pulsos de nêutrons ou dos nêutrons atrasados.

2) Estudo da influência da distribuição lateral do urânio

Como amostras foram utilizados 5 conjuntos de 53 pastilhas de U_3O_8 com uma massa de aproximadamente 780 g em cada conjunto, colocadas em 5 posições laterais, cada vez em uma delas e, posteriormente, em todas simultaneamente (nas respectivas posições).

Das medidas realizadas verificou-se que a resposta do sistema de análise é simétrica em relação à posição central e, também, que a interferência da presença de um conjunto de pastilhas de U_3O_8 em outro con-

junto igual, colocado ao lado do primeiro, é menor do que se pode detectar com o sistema de análise.

3) Estudo com Placas de Elemento Combustível

Foram feitas medidas para verificar a linearidade da resposta do sistema com o aumento do número de placas de "elemento combustível".

Nestas medidas foram utilizadas massas de urânio entre 10 a 184g (1 a 17 placas). As medidas foram feitas com as placas encostadas uma à outra (face a face), vide Figura 3. Para aumentar a razão de contagem, a separação entre o alvo e a placa mais próxima foi reduzida a 12,5 cm.

Na Figura 3, tem-se a curva de resposta do sistema como função do número de placas de urânio que são irradiadas.

Apesar da baixa estatística de contagem, observa-se que a contagem normalizada varia linearmente com o número de placas analisadas.

Usando como amostra 17 placas de "elemento combustível", nas condições da experiência anterior, foram realizadas 4 análises descritas a seguir:

- a) Amostra na posição $X=60\text{cm}$ e $Y=12,5\text{cm}$, com o centro das placas alinhado com o centro do alvo e o centro do detector fatia.
- b) Amostra na posição anterior, sofrendo um deslocamento lateral de 1cm para direita de quem olha do alvo para o detector fatia.
- c) Amostra na condição anterior, girando-se no plano horizontal, no sentido anti-horário de quem olha de cima para baixo, de modo a se ter um deslocamento de 1 cm nos extremos da placa, mas, mantendo-se a posição central da mesma.
- d) Amostra na posição da análise a, girando de 90° no plano vertical.

Os dados obtidos nessas análises encontram-se na Tabela II.

Da análise dos dados obtidos nas experiências a, b e c, conclui-se que o erro devido aos posicionamentos das placas de "elemento combustível" é menor do que o erro de aproximadamente 3% associado à estatística de contagem.

Comparando os resultados das análises a e d, conclui-se que

o sistema de análise fornece resposta idêntica (dentro do erro estatístico), estando as placas de "elemento combustível" na horizontal ou na vertical.

VI. CONCLUSÕES E SUGESTÕES

O sistema de análise implantado fornece resultados reproduzíveis, dentro do erro de análise que variou de 1,6 a 3,9%, dependendo da forma física e da massa de urânio presente na amostra.

Na análise de um conjunto de 17 placas que simulam as placas de elemento combustível de reator tipo MTR, obteve-se um erro de análise de 2%. Como esse erro é principalmente devido à estatística de contagem, espera-se que o erro na determinação da massa de urânio num elemento combustível (MTR) seja da ordem da metade desse valor, devido ao fato de que essa massa é 4 vezes maior do que nas 17 placas utilizadas.

Para o controle de qualidade na fabricação de elementos combustíveis de reator tipo MTR, a massa total de urânio por placa deve ser conhecida com a precisão de 2,5%⁽³⁾. Para as análises realizadas com simulações dessas placas, obteve-se um erro de análise de 5,2%, em análises com 1000 s de duração. Com a modificação sugerida a seguir, espera-se reduzir o erro nessa análise para menos do que 2,5%. Da mesma forma, a modificação sugerida propiciará uma redução no erro das análises que vierem a ser executadas com esse sistema.

Pretende-se aumentar a intensidade da fonte de nêutrons. Um problema significativo desse sistema de análise foi a necessidade de utilizar apenas 20% da intensidade máxima de nêutrons da fonte $^3\text{H}(d,n)^4\text{He}$. Com intensidades maiores, o pré-amplificador associado ao detector saturava. Esse problema será eliminado com a utilização de um pré-amplificador, que está sendo construído, tipo "gated" similar ao utilizado em Los Alamos⁽⁴⁾. Usando maior intensidade de nêutrons interrogadores haverá maior produção de nêutrons atrasados e, conseqüentemente, melhoria na estatística de contagem. Assim sendo, com o uso desse pré-amplificador espera-se reduzir de 5,2% para aproximadamente 2,3% o erro nas análises de uma placa de "elemento combustível".

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS :

1. COELHO, P.R.P. Análise não destrutiva da massa de urânio natural atra

vés da medida de nêutrons atrasados com o uso da técnica de fonte pulsada de nêutrons rápidos. São Paulo, EPUSP, 1979. (Dissertação de Mestrado).

2. EAST, L. V. & WALTON, R. B. Polyethylene moderated ^3He nêutron detectors. Nucl. Instrum. Meth., 72: 161-6, 1969.
3. KHOURI, M. T. F. C. Ensaio em material combustível para reatores utilizando técnicas nucleares. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, 1977. (Tese de doutoramento).

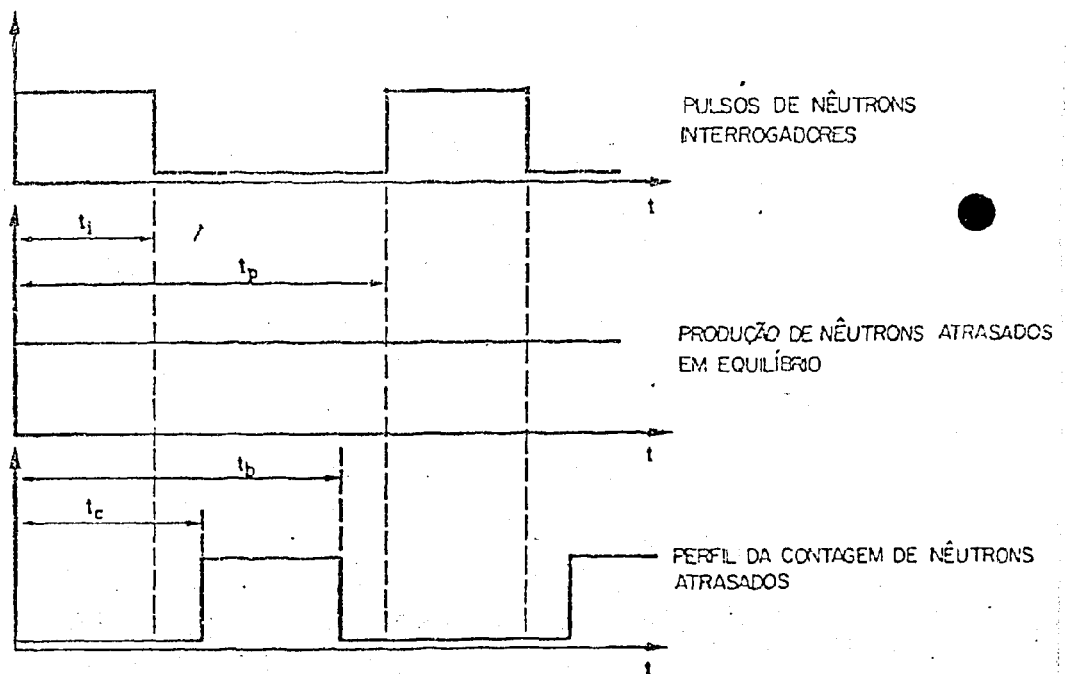


Fig. 1 - Tempos envolvidos no ciclo de irradiação e contagem.

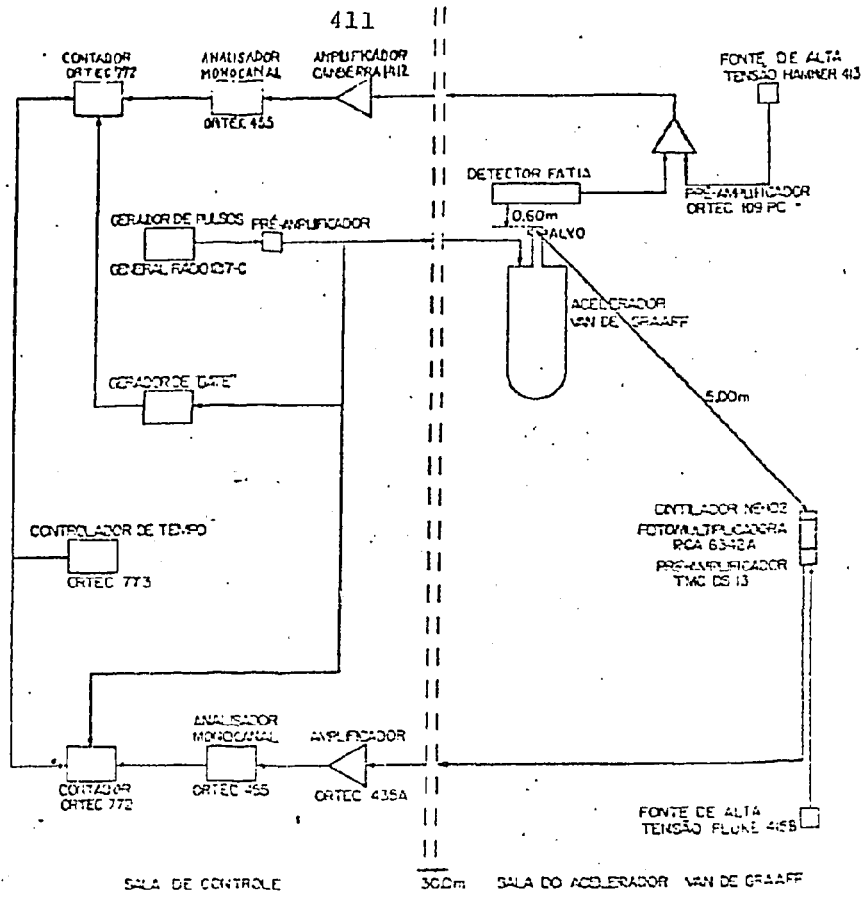


FIG. 2. ESQUEMA DO EQUIPAMENTO ELETRÔNICO UTILIZADO

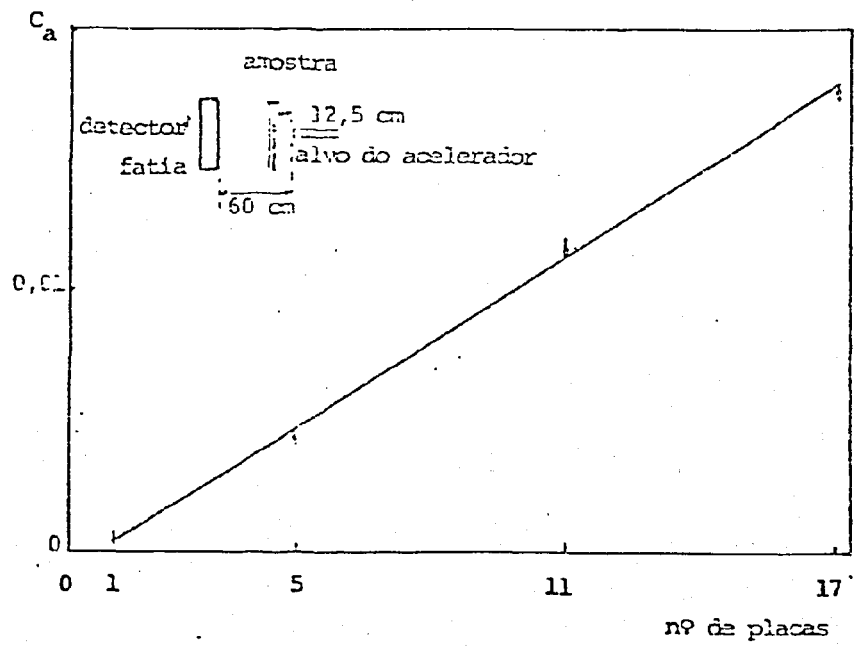


Figura 3 - Resposta do sistema de análise ao aumento de placas de "elementos combustíveis"

TABELA I

Resumo das Fontes de Erros na determinação da Massa de Urânio

Parâmetro	ERRO PERCENTUAL	
	11 Placas de Combustível	4 Discos de Urânio
Estatística de contagem	3,3	1,6
Determinação da massa padrão	1,7	0,0013
Posicionamento da amostra	1,2	0,1
Não simultaneidade do início do tempo de análise com o início do pulso de nêutrons interrogadores	0,12	0,12
Flutuação nos tempos de irradiação e contagem	<< 0,67	<< 0,67
Erro total na análise (raiz quadrada da soma dos quadrados)	3,9	1,6

TABELA II

Resultados de Medidas para Determinação da Influência do Posicionamento das Placas de "Elemento Combustível" nos Resultados das Análises

Análise	Contagem no Monitor	Contagem no Detector Fatia	Contagem Normalizada
a	82063	1837	0,0160 ± 0,0005
b	82151	1857	0,0162 ± 0,0005
c	84430	1936	0,0165 ± 0,0005
d	82807	1894	0,0165 ± 0,0005