

# DETERMINAÇÃO DO GRAU DE QUEIMA EM ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS TIPO PLACA POR MEIO DE ESPECTROMETRIA GAMA

Luís A. A. Terremoto, Carlos A. Zeituni e José A. Perrotta

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN-SP)  
Divisão de Engenharia do Núcleo (REN)  
Caixa Postal 11.049; CEP 05422-970; Pinheiros; São Paulo - SP; Brasil  
E-mail: laaterre@net.ipen.br

## RESUMO

A determinação do grau de queima é parte integrante do processo de qualificação de combustíveis nucleares, servindo para indicar alterações a serem implementadas nos mesmos com a finalidade de otimizar o ciclo do combustível nuclear. Neste trabalho são apresentados os resultados do grau de queima para diversos elementos combustíveis tipo placa irradiados no reator de pesquisa IEA-R1, obtidos a partir do método não destrutivo de espectrometria gama. Estas medidas são efetuadas através da análise de espectros resultantes da colimação e detecção de raios-gama emitidos no decaimento de produtos de fissão radioativos. Uma discussão sobre os resultados experimentais é apresentada, assim como a comparação dos mesmos com valores resultantes de cálculos neutrônicos.

**Palavras-Chave:** combustíveis nucleares, ensaio não destrutivo, espectrometria gama, medida da queima.

## I. INTRODUÇÃO

A espectrometria gama em combustíveis nucleares irradiados é um ensaio não destrutivo, fundamentado no fato de que a distribuição e intensidade da radiação gama emitida nos processos de decaimento dos produtos de fissão radioativos, presentes no combustível irradiado, estão relacionadas à queima, distribuição de potência e condições internas (integridade) ao longo do combustível.

A determinação da queima é importante, pois pode indicar alterações a serem feitas nas especificações de combustíveis nucleares, com a finalidade de obter uma melhor utilização dos mesmos e otimizar o ciclo do combustível nuclear. Esta determinação é efetuada a partir da medida da atividade gama absoluta de um dado produto de fissão, denominado monitor de queima. Consiste num meio de avaliação da validade e confiabilidade da análise teórica, uma vez que os dados experimentais que fornece podem ser diretamente comparados com aqueles obtidos por meio de cálculos neutrônicos.

Através da espectrometria gama, a queima é determinada diretamente a partir de equações<sup>[1]</sup> que a relacionam com a atividade gama absoluta medida, o que exige o conhecimento da eficiência absoluta do aparato experimental e controle rigoroso da geometria do sistema de detecção utilizado.

## II. TÉCNICA EXPERIMENTAL BÁSICA

Uma vez irradiado, o elemento combustível apresenta produtos de fissão que, ao sofrerem decaimento radioativo, emitem raios-gama com energias características.

A montagem de um aparato para efetuar medidas de espectrometria gama em elementos combustíveis irradiados tem como finalidade a obtenção de um espectro gama por meio de colimação e detecção destes raios, armazenando-os para análise posterior.

O aparato experimental para espectrometria gama é constituído pelos seguintes componentes: tubo colimador, fonte de alta voltagem, detector de germânio hiperpuro (HPGe), amplificador, multicanal e microcomputador.

Neste aparato, dois colimadores de chumbo são utilizados entre o elemento combustível e o detector para permitir a determinação da taxa de emissão gama de um volume específico do combustível e para impedir a saturação do sistema no que se refere ao armazenamento de dados. O diâmetro da fenda cilíndrica destes colimadores perfaz 0,455 cm, sendo adequada para medir as variações na distribuição de atividade gama ao longo do combustível nuclear irradiado.

A detecção de raios-gama é efetuada com um detector de germânio hiperpuro (HPGe). A influência da radiação de fundo é diminuída por uma blindagem de chumbo colocada em torno do detector.

O aparato experimental para espectrometria gama, utilizado na determinação não destrutiva da queima

ocorrida em elementos combustíveis irradiados no reator de pesquisa IEA-R1, é mostrado esquematicamente na Fig. 1.

Durante as medidas da atividade gama, um elemento combustível irradiado é posicionado horizontalmente a cerca de 2,2 metros abaixo da superfície da piscina de estocagem. O detector, instalado dentro da blindagem, pode se mover tanto na direção paralela quanto na direção normal ao eixo do elemento combustível, através do uso de uma mesa suporte. Um tubo de alumínio preenchido com ar se estende entre a janela do detector e uma posição fixa situada pouco acima (0,5 cm) da superfície do elemento. Os colimadores de chumbo estão fixados nas extremidades do tubo de alumínio, constituindo o tubo colimador. Devido ao fato da eficiência absoluta do sistema ser muito sensível à geometria do conjunto detector (tubo colimador + detector HPGe), a reprodutibilidade no posicionamento do tubo colimador deve apresentar uma acurácia melhor que  $\pm 0,16$  cm<sup>[2]</sup>.

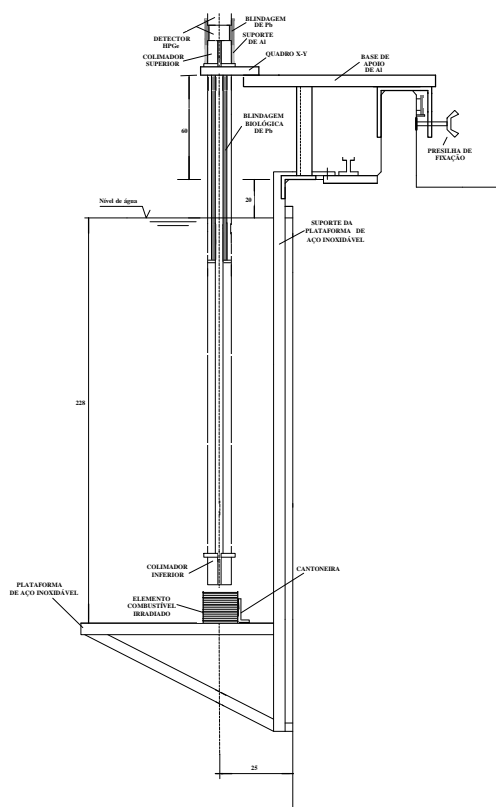


Figura 1. Esquema do Sistema para Espectrometria Gama em Elementos Combustíveis na Piscina do Reator IEA-R1.

Cada elemento combustível medido contém 18 placas planas paralelas que, dependendo do tipo de elemento, possuem diferentes materiais no cerne (liga U-Al, UAl<sub>x</sub> disperso em Al, U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> disperso em Al).

### III. MEDIDA DA EFICIÊNCIA ABSOLUTA

Os espectros gama resultantes das medidas em elementos combustíveis irradiados contém 4096 canais e apresentam o número de contagens nos fotopicos em

função dos canais que os mesmos ocupam, não proporcionando qualquer informação direta sobre qual é a energia do raio-gama que originou um determinado fotopico no espectro obtido. Assim, logo após o encerramento das medidas nos elementos combustíveis, é efetuada a calibração da energia em função do número do canal, para identificar em cada espectro gama os fotopicos correspondentes aos raios-gama emitidos no decaimento dos monitores de queima.

Tal calibração é denominada calibração em energia, tendo sido realizada mediante a retirada do detector HPGe de dentro da blindagem de chumbo e por intermédio do uso das fontes de calibração. Uma vez que a energia dos raios-gama emitidos pelas fontes de calibração mencionadas é perfeitamente conhecida e sabendo-se a posição de cada um dos respectivos fotopicos, ajustou-se aos dados da energia em função do canal um polinômio de segundo grau, empregando o método dos mínimos quadrados.

Após ter sido efetuada, por meio da calibração em energia, a localização e identificação do fotopico correspondente ao raio-gama emitido no decaimento do monitor de queima escolhido, torna-se necessário medir a eficiência absoluta do conjunto detector (tubo colimador + detector HPGe) na geometria fixada e na energia do raio-gama de interesse.

O valor desta eficiência foi determinado medindo-se separadamente o valor da eficiência absoluta intrínseca ( $\epsilon_\gamma$ ) do detector HPGe em função da energia dos raios-gama e a área ( $a_j$ ) definida pelo ângulo sólido de detecção sobre o plano central do cerne da j-ésima placa do elemento combustível.

O valor da eficiência absoluta intrínseca  $\epsilon_\gamma$  é medido posicionando-se o detector HPGe numa dada geometria fixa em relação a diferentes fontes de calibração puntiformes. A partir dos dados experimentais, ajusta-se uma função relacionando a eficiência absoluta intrínseca ( $\epsilon_\gamma$ ) com a energia ( $E_\gamma$ ) e, por fim, o valor desta eficiência nas energias dos raios-gama de interesse.

A medida dos valores das áreas  $a_j$  foi realizada utilizando um arranjo experimental em que o tubo colimador e o detector HPGe eram posicionados horizontalmente em frente a uma fonte de <sup>137</sup>Cs com alta atividade. Esta fonte foi apoiada sobre um carrinho dotado de movimentação (x,y), sendo portanto possível ajustar a distância entre a janela do colimador inferior e a parte frontal da fonte, de maneira a reproduzir o posicionamento relativo entre a janela do colimador inferior e o centro do cerne de cada uma das placas de um dado elemento combustível durante as medidas na piscina de estocagem.

### IV. DETERMINAÇÃO DA MASSA DE <sup>235</sup>U FISSIONADA

Uma vez conhecidos os valores da eficiência absoluta de detecção, é necessário medir o valor do

parâmetro  $\bar{Q}$  para determinar experimentalmente a atividade total do elemento combustível irradiado devida ao monitor de queima e, em seguida, a massa de  $^{235}\text{U}$  fissionada neste elemento.

O valor médio  $\bar{Q}$  para o número total de contagens registrado no detector por unidade de tempo é obtido<sup>[1]</sup> através das medidas efetuadas em diversos pontos situados ao longo do comprimento (eixo x) e da largura (eixo y) do elemento combustível irradiado, definindo-se portanto uma função de duas variáveis.

Após este valor médio ter sido medido, determina-se experimentalmente o valor da atividade total do elemento combustível irradiado e, por extensão, o número total  $N_0$  de átomos do monitor de queima existente no elemento combustível imediatamente após o fim do último período de irradiação, dado por:

$$N_0 = \frac{18.l.w.\bar{Q}}{\lambda.I_\gamma.\epsilon_\gamma.k_1.k_2.k_3.\sum_{j=1}^{18} a_j.K^{18-j}} e^{\lambda.t_c} \quad (1)$$

onde  $l$  é o comprimento ativo de cada placa do elemento combustível,  $w$  é a largura ativa de cada placa do elemento combustível,  $\lambda$  é a constante de decaimento do monitor de queima escolhido,  $I_\gamma$  é a intensidade absoluta de emissão do raio-gama,  $a_j$  é a área definida pelo ângulo sólido de detecção sobre o plano central do cerne da  $j$ -ésima placa,  $\epsilon_\gamma$  é a eficiência absoluta intrínseca do detector HPGe para raios-gama emitidos no decaimento do monitor de queima e  $t_c$  é o tempo decorrido entre o fim do último período de irradiação a que foi submetido o elemento combustível e o início das medidas de espectrometria gama no mesmo. Os parâmetros denotados por  $k_1$ ,  $k_2$ ,  $k_3$  e  $K$  são os índices de correção devidos à atenuação dos raios-gama, calculados em função das características geométricas do elemento combustível, dos materiais que o constituem e do posicionamento deste elemento, dentro da piscina de estocagem, em relação ao tubo colimador. Por sua vez, a massa de  $^{235}\text{U}$  fissionada no elemento combustível inspecionado é dada pela expressão:

$$\Delta U = \frac{N_0.m_0}{y.N_U^0} f \quad (2)$$

onde  $N_U^0$  é o número de átomos de  $^{235}\text{U}$  existente inicialmente no elemento combustível,  $m_0$  é a massa original de  $^{235}\text{U}$  no elemento combustível,  $y$  é o rendimento médio do monitor de queima na fissão do  $^{235}\text{U}$  e  $f$  é um fator de correção<sup>[1]</sup> que leva em conta o decaimento de átomos do monitor de queima ocorrido durante diferentes períodos e potências de irradiação.

A utilização do método de espectrometria gama requer em geral registros detalhados e precisos do tempo e potência de irradiação a que foi submetido o combustível nuclear a ser examinado, sendo o fator  $f$  calculado a partir

destes registros. No entanto, por apresentar meia-vida longa em relação à duração de cada período de irradiação, o  $^{137}\text{Cs}$  e o  $^{144}\text{Ce}/^{144}\text{Pr}$  permitem a determinação satisfatória da queima do combustível nuclear através de espectrometria gama mesmo no caso em que o conhecimento do histórico de potência e dos dados de irradiação for limitado.

## V. MEDIDAS NOS ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS

As medidas de espectrometria gama em elementos combustíveis tipo placa irradiados constituem a fase final do experimento, realizada na área da piscina de estocagem do reator IEA-R1.

Para a realização das medidas, um elemento combustível irradiado, após ter sido retirado do rack de estocagem localizado no fundo da própria piscina, é posicionado horizontalmente sobre a plataforma com as placas paralelas à base da mesma, sendo então encostada na cantoneira ali soldada. Desta forma, garante-se a reprodutibilidade no posicionamento do elemento combustível.

Após posicionado o elemento combustível irradiado, são efetuadas cinco medidas ao longo do comprimento ativo e três medidas ao longo da largura ativa do mesmo, obtendo-se um espectro gama como resultado de cada medida.

A aquisição e armazenamento dos espectros gama resultantes de cada medida é efetuada utilizando-se o programa MAESTRO II, da EG&G ORTEC, enquanto a análise dos mesmos é feita com o uso do programa IDEFIX<sup>[3]</sup>.

O programa IDEFIX fornece a área e a posição do fotopico correspondente ao raio-gama do monitor de queima, ajustando ao fotopico uma função gaussiana e descontando o fundo contínuo, descrito por uma curva parabólica. Estes valores da área e seu respectivo erro são inseridos numa planilha do Microsoft EXCEL<sup>[4]</sup> previamente programada para efetuar todos os cálculos que fornecem como resultado o grau de queima do elemento combustível irradiado, a massa de  $^{235}\text{U}$  fissionada, a atividade total proveniente do monitor de queima e o número de átomos deste monitor.

Antes de iniciar as medidas de espectrometria gama nos elementos combustíveis irradiados, deve-se estudar a procedência de todos os fotopicos que podem ser encontrados em espectros gama resultantes daquelas medidas.

Para tanto, posicionou-se na plataforma da piscina de estocagem do reator IEA-R1 um elemento combustível recém retirado do núcleo, realizando-se em seguida uma medida preliminar no ponto central do mesmo, que nos permitiu distinguir três grupos de fotopicos.

O primeiro grupo exibiu fotopicos originados por raios-gama emitidos no decaimento de produtos de fissão contidos no cerne das placas combustíveis. O segundo foi constituído por fotopicos mais proeminentes do fundo natural<sup>[5]</sup>. O terceiro grupo mostrou fotopicos originados por raios-gama emitidos no decaimento de produtos de

ativação, entre os quais se destacam: a)  $^{24}\text{Na}$  - produzido a partir da reação  $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ , que ocorre principalmente no revestimento dos elementos combustíveis e refletores durante a irradiação. Este radionuclídeo se dilui na água da piscina do reator<sup>[6]</sup>. b)  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  - originado essencialmente através da captura radiativa de nêutrons pelo isótopo  $^{109}\text{Ag}$ , que constitui 48,17 % da prata natural, metal que por sua vez totaliza 80 % em massa da liga utilizada nas barras de controle do reator. Este radionuclídeo deposita-se sobre superfícies metálicas por meio de reações químicas de deslocamento<sup>[6]</sup>. c)  $^{58}\text{Co}$  e  $^{60}\text{Co}$  - formados principalmente pelas reações  $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Ni}(n,p)^{60}\text{Co}$  e  $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$ . Os isótopos de níquel e cobalto são provenientes de estruturas de aço inoxidável existentes na piscina do reator. d)  $^{65}\text{Zn}$  - formado pela reação  $^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$ , sendo o zinco resultante da oxidação nos trocadores de calor do circuito primário.

Como resultado desta medida preliminar, foi observado que os raios-gama emitidos por produtos de ativação, em especial os dois raios-gama de alta energia emitidos no decaimento do  $^{24}\text{Na}$  (1368,5 keV e 2754,1 keV) contido na água da piscina de estocagem do reator, poderiam alterar os resultados obtidos com a espectrometria gama. Assim, levando-se em conta que a meia-vida deste radionuclídeo é de 15,02 horas<sup>[1]</sup>, todas as medidas em elementos combustíveis foram realizadas somente durante períodos de paralisação prolongada na operação do reator IEA-R1.

De fato, o espectro de fundo (BG), obtido em medida realizada na piscina de estocagem com o reator desligado há uma semana, revelou a ausência total de produtos de fissão e uma redução drástica da atividade de  $^{24}\text{Na}$  na água.

O critério de escolha utilizado para determinar se um elemento combustível irradiado seria ou não medido foi o teste de inspeção visual, realizado na piscina de estocagem do reator IEA-R1. Alguns poucos elementos combustíveis que lá se encontram armazenados apresentam pequenos pites de corrosão ou leves sinais de amassaduras em algumas placas combustíveis<sup>[6]</sup>. Diante destas evidências, foram selecionados para medidas de espectrometria gama apenas os elementos combustíveis nos quais não ficou constatado qualquer indício destas imperfeições.

Os elementos combustíveis a serem inspecionados foram separados em dois grandes grupos: os que foram retirados em definitivo do núcleo há mais de dois anos (para os quais se utilizou o  $^{137}\text{Cs}$  como monitor de queima) e os que têm tempo de estocagem menor que dois anos (neste caso, foi utilizado o  $^{144}\text{Ce}$  /  $^{144}\text{Pr}$ ). Esta distinção é necessária porque a energia do raio-gama emitido no decaimento do  $^{137}\text{Cs}$  perfaz 661,6 keV, sendo o fotopico correspondente encoberto total ou parcialmente pela região de espalhamento Compton de raios-gama com energia mais elevada emitidos por produtos de fissão radioativos com meia-vida mais curta.

Nos espectros gama resultantes de medidas efetuadas nos elementos combustíveis retirados do núcleo

há mais de dois anos, nota-se que os produtos de fissão com meia-vida mais curta já decaíram e que o fotopico correspondente ao raio-gama de 661,6 keV, emitido no decaimento do monitor de queima  $^{137}\text{Cs}$ , aparece de modo bastante destacado, sendo o mais proeminente de todo o espectro, conforme mostra a Fig. 2. A duração de cada uma das medidas nas quais estes espectros foram obtidos totalizou 600 segundos de tempo vivo.

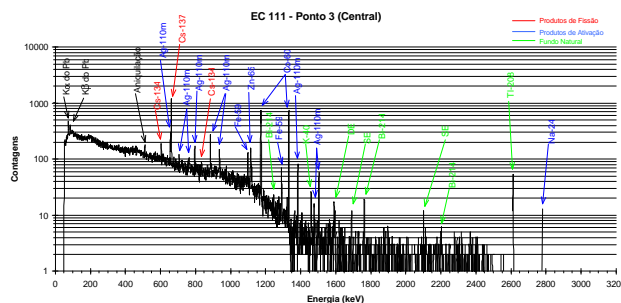


Figura 2. Espectro gama resultante de medida efetuada no ponto 3 (central) do elemento combustível 111, com duração de 600 segundos de tempo vivo.

Observa-se nos espectros que este fotopico é sempre precedido por um outro, bem menor e muito próximo, identificado como sendo correspondente ao raio-gama mais intenso emitido no decaimento do produto de ativação  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  ( $E_\gamma = 657,7$  keV;  $I_\gamma = 0,947$ ). Nestas circunstâncias, tornou-se necessário ajustar com o programa IDEFIX<sup>[3]</sup> uma função gaussiana a cada um dos fotopicos de um duplete, para desta maneira discriminar corretamente as duas áreas, conforme mostra a Fig. 3.

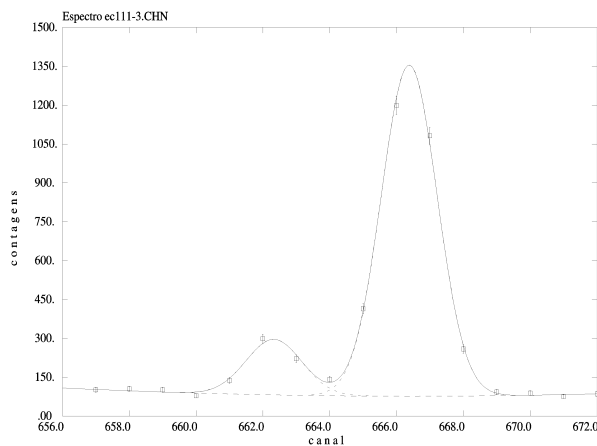


Figura 3. Gaussianas ajustadas com o uso do programa IDEFIX<sup>[3]</sup> a cada um dos fotopicos que constituem o duplete com energias de 657,7 keV ( $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ) e 661,6 keV ( $^{137}\text{Cs}$ ), permitindo discriminá-las corretamente no espectro gama resultante de medida efetuada no ponto 3 (central) do elemento combustível 111.

Os valores das áreas do fotopico correspondente ao raio-gama de 661,6 keV, apresentados em função do comprimento e da largura ativos, constituem os chamados

perfis de queima para um dado elemento combustível irradiado.

A Fig. 4 mostra os perfis de queima para o elemento combustível 111.

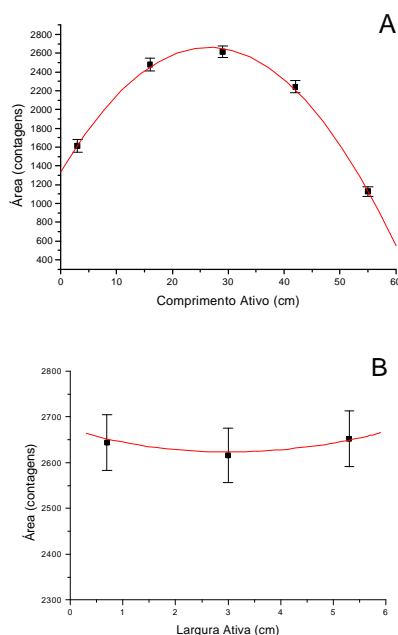


Figura 4. Perfis de queima obtidos experimentalmente para o elemento combustível 111: A) perfil de queima ao longo do comprimento ativo; B) perfil de queima ao longo da largura ativa.

Os elementos combustíveis retirados do núcleo há menos de dois anos foram monitorados com  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$ . Observa-se nos espectros resultantes de medidas nestes elementos a presença de outros produtos de fissão com meia-vida curta:  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{103}\text{Ru}$  e  $^{106}\text{Rh}$ . Ao empregar  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$  como monitor de queima, utiliza-se o fotopico correspondente ao raio-gama de 2185,7 keV, que apesar de ter uma intensidade absoluta de emissão muito pequena, está numa região em que pode ser observado com boa resolução, conforme mostra a Fig. 5. Como o fotopico selecionado tem uma baixa intensidade absoluta de emissão, utilizou-se 3600 segundos de tempo vivo para cada medida.

Analogamente ao que foi efetuado no caso do  $^{137}\text{Cs}$ , determinou-se as áreas do fotopico de interesse (2185,7 keV do monitor  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$ ) ao longo do comprimento e da largura ativa de cada elemento combustível, traçando os perfis de queima.

As medidas do grau de queima, efetuadas em todos os elementos combustíveis tipo placa irradiados que foram previamente escolhidos, forneceram os resultados apresentados na Tab. 1.

A incerteza experimental relativa média para as medidas efetuadas com  $^{137}\text{Cs}$  perfaz 7,53 %, enquanto que para as medidas efetuadas com  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$  esta incerteza totaliza 16,33 %.

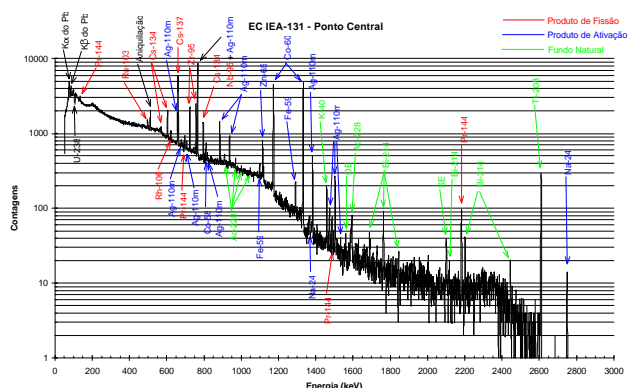


Figura 5. Espectro gama resultante de medida efetuada no ponto 3 (central) do elemento combustível IEA-131, com duração de 3600 segundos de tempo vivo.

Elemento Combustível	Material do Cerne	Retirada do Núcleo	Monitor de Queima	Cálculo Neutrônico (%)	Espectrometria Gama (%)
84	U-Al	10/06/96	$^{137}\text{Cs}$	46,92	45,24 ± 3,81
86	U-Al	05/05/97	$^{144}\text{Ce}/\text{Pr}$	48,40	50,17 ± 9,93
93	U-Al	09/07/92	$^{137}\text{Cs}$	39,93	35,31 ± 3,13
96	U-Al	09/07/92	$^{137}\text{Cs}$	40,51	40,25 ± 3,38
98	U-Al	19/12/94	$^{137}\text{Cs}$	48,28	45,98 ± 3,13
101	U-Al	30/06/89	$^{137}\text{Cs}$	39,08	35,91 ± 3,18
107	U-Al	17/09/94	$^{137}\text{Cs}$	48,30	44,77 ± 3,15
108	U-Al	27/09/93	$^{137}\text{Cs}$	46,15	40,58 ± 2,89
111	U-Al	04/09/95	$^{137}\text{Cs}$	47,37	46,43 ± 3,03
112	U-Al	04/09/95	$^{137}\text{Cs}$	46,31	44,47 ± 3,04
IEA-123	UAl <sub>x</sub> -Al	16/10/95	$^{137}\text{Cs}$	45,93	46,56 ± 3,36
IEA-124	UAl <sub>x</sub> -Al	16/10/95	$^{137}\text{Cs}$	45,61	47,95 ± 3,51
IEA-126	UAl <sub>x</sub> -Al	10/06/96	$^{137}\text{Cs}$	46,17	47,66 ± 3,34
IEA-130	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> -Al	09/09/97	$^{144}\text{Ce}/\text{Pr}$	36,10	36,77 ± 5,13
IEA-131	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> -Al	09/09/97	$^{144}\text{Ce}/\text{Pr}$	31,46	28,92 ± 4,67
IEA-132	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> -Al	09/07/97	$^{144}\text{Ce}/\text{Pr}$	27,34	30,88 ± 4,77

Tabela 1. Comparação entre valores do grau de queima obtidos através das medidas de espectrometria gama e por meio de cálculos neutrônicos.

A perda de precisão verificada em medidas nas quais  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$  é usado como monitor de queima decorre principalmente da baixa intensidade absoluta de emissão do raio-gama analisado ( $E_\gamma = 2185,7$  keV;  $I_\gamma = 0,007$ ), característica que contribui para aumentar a incerteza na área do fotopico correspondente, pois o número de raios-gama detectados e, portanto, de contagens registradas, tende a ser baixo nesta energia. Incertezas experimentais relativas de até 30 % foram obtidas medindo-se com  $^{144}\text{Ce} / ^{144}\text{Pr}$  o grau de queima de combustíveis nucleares irradiados em reatores de potência<sup>[7]</sup>.

Desde o início de operação do reator IEA-R1, o grau de queima dos elementos combustíveis irradiados é determinado a partir de cálculos neutrônicos efetuados com base em medidas do fluxo médio de nêutrons em cada configuração do núcleo do reator IEA-R1. Entretanto,

devido ao fato do fluxo médio de nêutrons não ter sido medido para a maioria das configurações, as medidas de espectrometria gama constituem um teste para avaliar a metodologia atualmente usada nos cálculos neutrônicos. A Fig. 6 apresenta a razão espectrometria gama / cálculo neutrônico para cada elemento combustível irradiado medido, calculada com os dados mostrados na Tab. 1. Para a maioria dos elementos combustíveis irradiados, os valores obtidos para o grau de queima, tanto através de espectrometria gama quanto por meio de cálculos neutrônicos, coincidem dentro da margem de erro inerente ao método experimental utilizado.

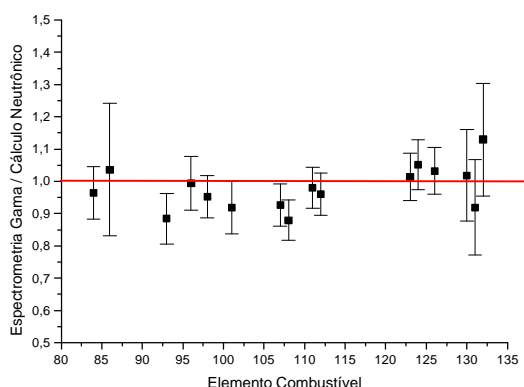


Figura 6. Valores da razão espectrometria gama / cálculo neutrônico para cada elemento combustível irradiado medido.

## VI. CONCLUSÃO

O grau de queima em elementos combustíveis tipo placa, irradiados no reator nuclear de pesquisa IEA-R1, foi determinado por medidas de espectrometria gama. O aparato experimental que possibilitou a realização das medidas foi instalado na área da piscina de estocagem do reator.

Nestas medidas, efetuadas em pontos selecionados ao longo do comprimento e da largura ativos de cada elemento combustível irradiado, os raios-gama emitidos no decaimento dos produtos de fissão radioativos foram colimados e detectados, gerando espectros armazenados e analisados com o uso de recursos computacionais.

Com a finalidade de obter resultados absolutos para o grau de queima, o conjunto detector formado pelo tubo colimador e o detector HPGe (principais componentes do aparato experimental), foi previamente calibrado em energia e eficiência.

Uma comparação efetuada entre os resultados obtidos neste experimento para o grau de queima e seus correspondentes fornecidos por meio de cálculos neutrônicos mostrou boa concordância dentro da margem de erro inerente ao método experimental adotado.

O aparato experimental desenvolvido para espectrometria gama, além de apresentar características funcionais bastante favoráveis (instalação, operação e

remoção do aparato são feitas de maneira simples e segura), permite realizar medidas cujo resultado pode ser comparado diretamente com cálculos neutrônicos.

## REFERÊNCIAS

- [1] Terremoto, L. A. A., Zeituni, C. A. e Perrotta, J. A., **Espectrometria Gama em Elementos Combustíveis Tipo Placa Irradiados**, XI ENFIR / IV ENAN - Joint Nuclear Conferences - Proceedings, p. 734-739, Poços de Caldas, 1997.
- [2] Rasmussen, N. C., Sovka, J. A. and Mayman, S. A., **The Non-Destructive Measurement of Burn-up by Gamma-Ray Spectroscopy**, Nuclear Materials Management, IAEA, p. 829-849, Vienna, 1966.
- [3] Gouffon, P., **IDEFIX - Manual do Usuário**, Laboratório do Acelerador Linear / Instituto de Física da Universidade de São Paulo (LAL/IFUSP), São Paulo, 1983.
- [4] Microsoft EXCEL, Versão 5.0 ou posterior, Microsoft Corporation, 1985-1994.
- [5] Ejnisman, R. e Pascholati, P. R., **Gamma-ray Background Survey**, Revista de Física Aplicada e Instrumentação, vol. 9, p. 139-146, 1994.
- [6] Perrotta, J. A., Terremoto, L. A. A. and Zeituni, C. A., **Experience on Wet Storage Spent Fuel Sipping at IEA-R1 Brazilian Research Reactor**, Annals of Nuclear Energy, vol. 25, p. 237-258, 1998.
- [7] Chen, J. D., Boase, D. G. and Lypka, R. B., **Non-Destructive Determination of Burn-Up by Gamma-Scanning: an Assessment of <sup>144</sup>Ce/Pr as a Fission Monitor in CANDU Fuels**, Rep. AECL-5236, Atomic Energy of Canada Limited / Chalk River Nuclear Laboratories, Chalk River, 1976.

## ABSTRACT

This work describes absolute burnup measurements on spent MTR fuel elements by means of non-destructive gamma-ray spectroscopy, which correlates activities of radioactive fission products with the fissioned mass of <sup>235</sup>U. Experiments based on such method were performed at the storage pool area of the IEA-R1 research reactor. The obtained results were compared with calculational ones based on neutronics.