MEDIDA DE ÍNDICES ESPECTRAIS NO INTERIOR DE VARETAS COMBUSTÍVEIS DO REATOR IPEN/MB-01

Ulysses d'Utra Bitelli, Paulo de Tarso D.Siqueira, Adimir dos Santos, Rogério Jerez, Luis Felipe Liambos Mura, Cesar Luiz Veneziani

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN / CNEN - SP) Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 05508-000 São Paulo, SP ubitelli@ipen.br

RESUMO

Este trabalho relata a medida dos índices espectrais ρ -28 e δ -25 no combustível do Reator IPEN/MB-01. Para tal, são inseridas folhas de urânio em diferentes posições ao longo da região assintótica no interior de varetas combustíveis especiais e estas irradiadas no centro do núcleo do reator IPEN/MB-01. Após a irradiação, as folhas de urânio depletadas e enriquecidas são submetidas a espectrometria gama num sistema de contagem de Germânio hiper-puro, através de uma geometria que utiliza um colimador que amostra apenas a região central da folha de diâmetro inferior a 7,5 mm. Assim, os valores apresentados neste trabalho poderão servir de padrão de comparação com valores calculados, a fim de verificar o nível de precisão dos códigos de Física de Reatores e suas bibliotecas de dados nucleares no tocante aos efeitos de auto-blindagem nas ressonâncias do U-238 e U-235.

1. INTRODUÇÃO

Medidas envolvendo a determinação de taxas de reação nuclear no combustível de um reator são fundamentais no sentido de correlacionar teoria e experimento no que tange a metodologia de cálculo e as suas bibliotecas de dados nucleares associadas. Estes experimentos são normalmente realizados através da irradiação de folhas de urânio nuas e cobertas com cádmio [1, 2], no interior de varetas combustíveis ditas especiais por serem desmontáveis. O cádmio utilizado como um filtro neutrônico, devido a sua alta seção de choque de absorção de nêutrons térmicos, possibilita descriminar da taxa de reação, a parcela de contribuição devida apenas à contribuição de nêutrons epitérmicos.

O parâmetro ²⁸ ρ é um índice espectral que nos fornece a razão entre a taxa de reação nuclear de captura radioativa devido aos nêutrons epitérmicos em relação à taxa de reação nuclear de captura radioativa devido aos nêutrons térmicos. Este parâmetro característico do espectro de energia dos nêutrons no combustível do reator está diretamente correlacionado com a probabilidade de escape dos nêutrons às ressonâncias do U-238 e é importante no sentido de verificar a metodologia de cálculo e suas bibliotecas nucleares quanto à exatidão e precisão nos cálculos envolvendo efeitos de auto-blindagem devido às ressonâncias citadas. O parâmetro ²⁸ ρ pode ser obtido experimentalmente através da irradiação de folhas de urânio depletadas irradiadas com e sem cobertura de cádmio (nuas). As folhas irradiadas neste trabalho apresentam um percentual de 99,96% de U-238 (400 ppm de U-235).

O índice espectral $^{25}\delta$ é um índice espectral que nos fornece a razão entre a taxa de reação nuclear de fissão devido aos nêutrons epitérmicos em relação à taxa de reação nuclear de

fissão devido aos nêutrons térmicos. Este índice espectral tal qual o anterior é importante no sentido de correlacionar experimento e teoria fornecendo informação da exatidão e precisão da metodologia de cálculo e da biblioteca de dados nucleares associadas. As folhas de urânio irradiadas com e sem cobertura de cádmio (nua), apresentam alto grau de enriquecimento (93,18%).

Neste experimento são medidas as taxas de reação nuclear no interior das folhas de urânio para a obtenção dos índices espectrais, como subsídios para verificação da metodologia de cálculo e bibliotecas de dados nucleares [3]. Para tal, utilizou-se durante a espectrometria gama das mesmas um colimador de chumbo de diâmetro menor (7,5 mm) ao da folha de urânio (8,49 mm, mesmo diâmetro das pastilhas combustíveis), com o objetivo de amostrar apenas as taxas de reação nuclear no interior da pastilha combustível (diâmetro < 7,5 mm).

2. DESCRIÇÃO EXPERIMENTAL

O Reator IPEN/MB-01 é um reator de potência zero especialmente projetado para a medida de uma grande variedade de parâmetros de Física de Reatores, objetivando correlacionar teoria ao experimento. Após quase 17 anos de operação e mais de 1700 operações, vários dos experimentos realizados no Reator IPEN/MB-01 se tornaram padrões de comparação internacional [4] ("Benchmark").

O núcleo do Reator IPEN/MB-01 em sua configuração padrão retangular consiste de um arranjo de 28x26 varetas combustíveis, enriquecida a 4,3% com um encamisamento de aço inox (304), inseridas dentro de um tanque moderador de água leve. Uma completa descrição do reator pode ser obtida na literatura [4, 5]. Todas as medidas citadas neste trabalho foram realizadas na chamada região assintótica do reator (livre de perturbações) e as varetas especiais contendo as folhas de urânio irradiadas na posição central do núcleo (Posição M14).

2.1. CONDIÇÕES DE IRRADIAÇÃO

As folhas de urânio são inseridas dentro das varetas combustíveis especiais numa capela de chumbo especialmente projetada para esta finalidade (pressão negativa, vidros plumbíferos, etc.) em posições (cotas da coluna de pastilhas de UO₂) que se suponham ser assintóticas e em alturas ativas de combustíveis que apresentem valores de taxas de reação muito próximas entre si (estimadas por cálculos de monte carlo ou experimentalmente) [6]. Com isso, podese pensar em obter a razão de cádmio R_{Cd} (razão das taxas de reação da folha nua em relação à irradiada com cobertura de cádmio) irradiando-se uma folha nua e uma outra com cádmio, numa única irradiação, pois as mesmas estão inseridas nestas cotas pré-selecionadas assintóticas e com valores de taxas de reação bastante similares entre si. As cotas de irradiação escolhidas foram a de 34,725 cm para a posição superior e de 9,515 cm para a posição inferior, pois entre elas há uma diferença muito pequena no valor da taxa de reação de captura radioativa (apenas 1,02 % calculado pelo código de monte carlo MCNP-4C) correspondente a um maior valor na cota superior. Na prática tais cotas se situam próximas, entre a 33^a/34^a pastilhas e 9^a/10^a pastilhas, respectivamente e a discrepância nos valores de taxas de reação de captura para folhas de urânio depletadas irradiadas nuas nas citadas posições, foram experimentalmente determinadas e são da ordem de 5 %. Este valor é utilizado nas correções das folhas nuas depletadas nos valores das taxas de reação obtidos na cota superior, para compensar o menor valor da mesma em relação ao da cota inferior (fs na Equação 1). As cotas citadas são distâncias ao longo da altura ativa de combustível e se referem do início da mesma na base inferior da vareta (cota zero) até o seu final na base superior (cota 54,84). No total, tal altura ativa é composta de 52 pastilhas combustíveis e seu comprimento é de $(54,84 \pm 0,35)$ cm [4].

As coberturas de cádmio das folhas de urânio nas irradiações são realizadas através de uma luva de cádmio, uma fina lâmina de 0,5 mm de espessura e comprimento 10 cm. O posicionamento da luva se dá ao redor da vareta especial irradiada na cota desejada e ocorre a partir da fixação da mesma numa placa de lucite. O posicionamento da mesma se dá através de sua inserção manual entre as varetas combustíveis. Isso requer o descarregamento das varetas combustíveis, devido à presença da luva de Cd, a fim de não danifica-la, pois o Cd é um material bastante dútil. Acertado o correto posicionamento da placa, as varetas combustíveis voltam a ser carregadas no núcleo (linha central – Face Oeste/Leste) a menos da vareta combustível central do núcleo (Posição M14) substituída pela vareta combustível especial contendo as folhas de urânio em seu interior, nas cotas citadas. Utilizamos duas estratégias de irradiação mostradas nas Figuras 1 e 2 e que foram utilizadas para determinação do índice espectral ${}^{25}\delta e {}^{28}\rho$ respectivamente.

Uma vez na posição de irradiação no núcleo do reator, conforme podemos visualizar na Figura 3, a varetas combustível especial, contendo as duas folhas de urânio, é irradiada durante 1 hora (tempo de irradiação) a potência máxima nominal do Reator IPEN/MB-01 de 100 watts, o que corresponde a valores de fluxo de nêutrons da ordem de 10⁹ n/cm².s. Durante a irradiação as barras de controle do reator são mantidas inseridas aproximadamente iguais (BC1=BC2), a fim de minimizar os efeitos de distorção do fluxo de nêutrons. Na primeira irradiação (Figura 1) com a luva de cádmio posicionada na cota 34,725 cm, tivemos a barra de controle BC1 retirada 60,74%, enquanto BC2 foi retirada 60,80%. Na segunda irradiação, com a luva de cádmio centrada na cota 9,415 cm a barra de controle BC1 foi retirada 60,54% enquanto BC2 é mantida fixa em 60,80%.

Todas as irradiações para medida de taxas de reação são normalizadas entre si, através do registro da contagem do canal 10 do reator durante o tempo de irradiação., Distante 40 cm do núcleo em sua face leste, trata-se de um detector tipo pulso de Boro-10. Com isso qualquer pequena flutuação na potência do reator de uma irradiação para a outra poderá ser corrigida e normalizada.

2.2. ESPECTROMETRIA GAMA DAS FOLHAS DE URÂNIO

Após a irradiação das folhas na vareta combustível especial, a vareta retirada do núcleo e transportada mediante autorização e monitoração da proteção radiológica a capela de chumbo para desmontagem e retirada das folhas de urânio. Estas folhas são levadas ao laboratório, para através da espectrometria gama das mesmas, determinar-se a taxa de contagem ao término da irradiação, parâmetro diretamente proporcional a atividade da folha neste mesmo período de tempo.Para tal, utiliza-se um sistema de contagem cujo detector de estado sólido é um germânio hiper-puro (HPGe) de eficiência intrínseca de 40%. As folhas de urânio são medidas na posição mais afastada do detector (7ª Gaveta, ou seja, a aproximadamente 7 cm do detetor), a fim de minimizar problemas de tempo morto elevado durante as contagens.

Para determinação do índice espectral $^{28}\rho$ se faz necessário acompanhar o decaimento do radionuclídeo Np-239 em cujo espectro de emissão gama centramos nosso interesse na

energia de 276,6 keV que apresenta uma probabilidade de emissão gama de 14,28%. O Np-239 forma-se a partir do decaimento radioativo do U-239, radionuclídeo obtido a partir da absorção do nêutron pelo átomo de U-238. O U-239 de meia-vida muita pequena (~23 minutos) dificulta a sua medição razão pelo qual se trabalha com o Np-239 que possui uma meia-vida bem mais longa (56,52 horas). No caso do Índice espectral ²⁵ δ o decaimento do radionuclídeo formado se faz através do decaimento de um produto de fissão o radionuclídeo Ce-143 centrado a energia de 293,3 keV. Este radionuclídeo apresenta a vantagem de ter um rendimento de fissão nuclear razoável (~6%), uma probabilidade de emissão gama de 42,8%, além de uma meia-vida de 33 horas. As Figuras 4 e 5 mostram respectivamente a curva de decaimento das folhas de urânio depletadas e enriquecidas irradiadas no interior da luva de cádmio, conforme o arranjo apresentado nas Figuras 1 e 2. Nelas visualiza-se o ajuste por mínimos quadrados através do ajuste de uma função exponencial do tipo y = A₀ + exp(B.x), onde A₀ fornece a taxa de contagem da folha ao término da irradiação, enquanto o coeficiente B é a constante de decaimento do radionuclídeo medido.



Figura.3 - Núcleo do reator e a posição de irradiação da vareta especial.







Figura. 5- Curva de Decaimento de Folha de U Enriquecido/ Cd (\$\$\phi\$<7,5 mm)

3. ANÁLISE DOS RESULTADOS

Conhecida a taxa de contagem das folhas de urânio, determina-se a Rcd para as cotas da vareta combustível anteriormente citadas, Isto pode ser visualizado através das equações (1) e (2), respectivamente para a determinação dos índices espectrais ${}^{28}\rho e {}^{25}\delta$,

$${}^{28}R_{cd} = \frac{A_0(nua)}{A_0(Cd)} \cdot \frac{f_{1nua}}{f_{1Cd}} \cdot \frac{f_{2Cd}}{f_{2nua}} \cdot f_S \qquad (1)$$

Os parâmetros f_1 e f_2 da expressão (1) se referem a fatores de correção devido a rampa de subida de potência, durante a irradiação das folhas e ao fator de normalização monitorado pelo canal 10 da instrumentação nuclear para monitorar pequenas diferenças de potências entre irradiações distintas, respectivamente. Os sub-índices Cd e Nua se referem respectivamente, as folhas irradiadas com e sem cobertura de cádmio. O fator f_s leva em conta a diferença nos valores das taxas de reação epi-cádmia e/ou sub-cádmio da cota superior para a cota inferior. Para a expressão 2 temos os parâmetros Y_{cd} e Y_{nua} , respectivamente os rendimentos de fissão do Ce-143, para as folhas de urânio enriquecido irradiadas nuas e com cobertura de cádmio, ou seja, dentro da luva de 10 cm de comprimento e 0,5 mm de espessura,

$${}^{25}R_{cd} = \frac{A_0(nua)}{A_0(Cd)} \cdot \frac{Y_{Cd}}{Y_{nua}} \frac{f_{1nua}}{f_{1Cd}} \cdot \frac{f_{2Cd}}{f_{2nua}} \cdot f_S \quad .$$
(2)

Obtidas as razões de cádmio, determinam-se os valores dos índices espectrais pelas expressões (3) e (4).

$${}^{28}\rho = \left({}^{28}R_{Cd} - 1\right)^{-1} \tag{3}$$

$${}^{25}\delta = \left({}^{25}R_{Cd} - 1\right)^{-1} \tag{4}$$

O Arranjo dado na Figura 1 foi utilizado para a determinação do índice espectral ²⁵ δ , enquanto na determinação do índice espectral ²⁸ ρ utilizou-se a geometria dada pelo arranjo da Figura 2. Os resultados obtidos podem são apresentados a seguir e se referem aos índices espectrais perturbados (luva de cádmio de 10 cm de comprimento e 0,5 mm de espessura, folhas "catcher" de alumínio de 0,5 mm de espessura inserida entre as pastilhas combustíveis para evitar a transferência de produtos de fissão às folhas de urânio, diferença entre o U metálico das folhas e o cerâmico do combustível de UO₂, etc) ²⁸ ρ * e ²⁵ δ *, amostrado pelas folhas de urânio em seu diâmetro interior de 7,5 mm. Assim,

$$^{28}\rho^* = 2,64 \pm 0,02$$
 e $^{25}\delta^* = 0,1404 \pm 0,0002$.

Os valores obtidos podem ser corrigidos a partir dos valores calculados pelo programa de monte carlo MCNP-4 C para os sistemas perturbados (experimento) e não perturbado (combustível, sem folhas de U e Al e luva de cádmio). Neste caso, temos ²⁸FC=0,837 e ²⁵FC= 0,956,obtidos a partir da simulação dos sistemas perturbados (folha de urânio, alumínio e luva de cádmio) e não perturbado (pastilha de UO₂), respectivamente os fatores de correção (FC) dos índices espectrais ²⁸ ρ * e ²⁵ δ *. Tais valores foram obtidos a partir da biblioteca de dados nucleares ENDF/BVI.8 [3]. Assim, os índices espectrais ²⁸ ρ e ²⁵ δ corrigidos quanto à perturbação do arranjo experimental, são

$$^{28}\rho = 2,21 \pm 0,02$$
 e $^{25}\delta = 0,1342 \pm 0,0001$.

4. CONCLUSÃO

Para efeito de validação da metodologia de cálculo e suas bibliotecas associadas, os valores perturbados obtidos experimentalmente (${}^{28}\rho^* e {}^{25}\delta^*$) podem ser comparados diretamente com a metodologia de cálculo do programa MCNP-4C (monte carlo), utilizada para simular o experimento. Assim trabalhos anteriores com luvas de cádmio de comprimento 5 cm [2], mostram que para sistemas não perturbados (índices espectrais calculados da pastilha combustível), dependendo da biblioteca de dados nucleares utilizada, têm-se razões C/E que variam de 1,5 a 3 % para o caso do índice espectral ${}^{28}\rho$ e de 2,9 a 3,6 % para o ${}^{25}\delta$. Estas novas medidas com luva de cádmio de 10 cm, fornecem novos dados experimentais para se continuar testando as diversas bibliotecas de dados nucleares e a metodologia de cálculo no que tange a exatidão e precisão com que resolvem problemas decorrentes de sistemas fortemente afetados pela auto-blindagem nas ressonâncias do urânio.

Os índices espectrais obtidos neste trabalho são mais perturbados, por conter mais cádmio, que medidas anteriormente realizadas [1,2]. A discrepância encontrada entre os valores calculados e os medidos do índice espectral ²⁸ ρ *, C/E = 0,928, como esperado, é maior do que para sistemas menos perturbados, C/E = 0,981, respectivamente obtidos para as luvas de cádmio de comprimento 10 cm e 5 cm, ambas luvas com espessuras de 0,5 mm.

REFERÊNCIAS

- 1. Bitelli, U. d'U. Medida de Parâmetros Integrais no Reator IPEN/MB-01. Tese de Doutorado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2001.
- Bitelli, U. d'U.; Santos, A.; Jerez, R.; Fanaro, L. C. C. B. and Cacure, R. R., "The Experimental Determination of the Spectral Indices ²⁸ρ and ²⁵δ Inside of the Fuel Pellet of the IPEN/MB-01 Reactor", Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, ND2004, Santa Fe, USA, Sept. 2004.
- 3. Siqueira, P. de T. D. et alli. Numerical Analysis of Spectral Índices Experiments Performed in IPEN/MB-01 Reactor. INAC2005, Santos, Brazil, 2005.
- 4. Santos, A. et alli. Critical Loading Configurations of the IPEN/MB-01 Reactor. Nea/NSC/DOC (95) 03/IV, Leu-COMP-Therm-077, 2004.
- Bitelli, U. d'U.; Santos, A.; Jerez, R. at all. Experimental Utilization of the IPEN/MB-01 Reactor. 9TH Meeting of the International Group on Research Reactor (9Th IGORR), Sydney, Australia, 2003.
- 6. Briesmeister, J. F. "MCNP A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C", LA-13709-MK-1693, March 1967.