

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**  
**SECRETARIA DA INDÚSTRIA, COMÉRCIO, CIÊNCIA E TECNOLOGIA**  
**AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO**

**DETERMINAÇÃO NÃO DESTRUTIVA DA QUEIMA DOS ELEMENTOS  
COMBUSTÍVEIS DO REATOR IEA-R1 POR ESPECTROMETRIA  
GAMA USANDO DETECTOR GE(LI)**

**TUFIC MADI FILHO**

Dissertação apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares como parte dos requisitos para obtenção do Grau de "Mestre na Área de Concentração em Reactores Nucleares de Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear".

**Orientador: Dr. Leo Holland**

**São Paulo**  
**1982**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES  
SECRETARIA DA INDÚSTRIA, COMÉRCIO, CIÊNCIA E TECNOLOGIA  
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

DETERMINAÇÃO NÃO DESTRUTIVA DA QUEIMA DOS ELEMENTOS  
COMBUSTÍVEIS DO REATOR IEAR-1 POR ESPECTROMETRIA  
GAMA USANDO DETECTOR GE(LI)

Tufic Madi Filho

Dissertação apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares como parte dos requisitos para obtenção do Grau de "Mestre na Área de Concentração em Reatores Nucleares de Potência e Tecnologia do Combustível Nuclear".

Orientador: Dr. Lao Hofland



SÃO PAULO  
1982

A  
Meus Pais,  
Sogra,  
Esposa e  
Filhas

## AGRADECIMENTOS

Expresso aqui a minha gratidão a todas as pessoas que, direta ou indiretamente, contribuíram para a execução deste trabalho, e em particular:

Ao Prof. Dr. Lao Holland, pela orientação;

Ao Engenheiro Francisco Edmundo Sprenger, do CPIO/AO pela confecção de material necessário para o experimento;

Aos colegas do COURP e, em especial, ao José Roberto Berretta e ao Ítalo Salzano Junior, do COURP/AOMRP, pelo auxílio prestado e à M.Sc. Marina Fallone Koskinas, do COURP/AFN pelo empréstimo e calibração das fontes;

Aos colegas José Fregnani e Christovan Romero Romero Filho, do CPRD/ARP em serviço no reator;

Aos colegas do CEN e, em especial, ao Luis Antonio Terribile de Mattos, e ao David Oliveira de Paula.

A Deus por tudo que me Tendes concedido. Pelos problemas e por suas soluções.

"A origem do mundo material deve atribuir-se à inteligência e sabedoria dum poderosíssimo Ser, sempre existente e presente em toda a parte, que domina, consoante a sua vontade, todas as parcelas do universo muito mais eficazmente do que a nossa alma domina pela sua vontade os movimentos do corpo unido a ela" (Isaac Newton)

"Cada descoberta nova da ciência é uma porta nova pela qual encontro mais uma vez Deus, o autor dela" (Albert Einstein)

## NOMENCLATURA

$w$	- integral do fluxo no tempo ou exposição ( $n/cm^2$ )
$Q_{235}(w)$	- consumo de U-235 após uma exposição $w$ (g)
$Q_{238}(w)$	- consumo de U-238 após uma exposição $w$ (g)
$F_{49}(w)$	- formação de Pu-239 após uma exposição $w$ (g)
$Q_{49}(w)$	- consumo de Pu-239 após uma exposição $w$ (g)
$N_{235}(0)$	- densidade inicial de U-235 ( $g/cm^3$ )
$N_{238}(0)$	- densidade inicial de U-238 ( $g/cm^3$ )
$Y$	- taxa de formação do produto de fissão por fissão do isótopo físsil ou fissionável
$\bar{\sigma}_{a25}$	- secção de choque média de absorção do U-235 (barn)
$\bar{\sigma}_{f25}$	- secção de choque média de fissão do U-235 (barn)
$\bar{\sigma}_{a28}$	- secção de choque média de absorção do U-238 (barn)
$\bar{\sigma}_{c28}$	- secção de choque média de captura do U-238 (barn)
$\bar{\sigma}_{f28}$	- secção de choque média de fissão do U-238 (barn)
$\bar{\sigma}_{a49}$	- secção de choque média de absorção do Pu-239 (barn)
$\bar{\sigma}_{f49}$	- secção de choque média de fissão do Pu-239 (barn)
$A$	- atividade ( $\mu Ci$ ou dps)
$C$	- contagem total
$\epsilon$	- fração de emissão gama na energia considerada
$\eta_{ex}$	- eficiência intrínseca do sistema de detecção
$\eta$	- eficiência global do sistema de detecção
$T$	- tempo de contagem (seg)
$t_r$	- tempo de resfriamento da amostra (seg)
$F_{ab}$	- fator de auto-absorção de raios gama (da parte ativa da placa do elemento combustível)
$F_r$	- fator de transmissão de raios gama de uma das faces do revestimento da parte ativa

- $F_T$  - fator de transmissão de raios gama de uma placa do elemento combustível (parte ativa)
- $\lambda$  - constante de decaimento ( $s^{-1}$ )
- $R$  - densidade do produto de fissão
- $R_0$  - densidade do produto de fissão na retirada do elemento combustível do caroço do reator ( $g/cm^3$ )
- $N_x$  - densidade do produto de fissão sem considerar decaimento ( $g/cm^3$ )
- $f_c$  - fator de correção para o decaimento do produto de fissão
- $z$  - espessura de uma placa do elemento combustível (cm)
- $a_i$  - área da i-ésima placa, definida pelo ângulo sólido de detecção ( $cm^2$ )
- $d$  - coeficiente de detecção
- $S$  - fator de similaridade entre as medidas nos SI e SII.

# DETERMINAÇÃO NÃO DESTRUTIVA DA QUEIMA DOS ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS DO REATOR IEA-R1 POR ESPECTROMETRIA GAMA USANDO DETECTOR Ge(Li)

TUFIC MADI FILHO

## RESUMO

Foram feitas determinações de queima por espectrometria gama não destrutiva de elementos usados de baixa (IEA-14) e alta (IEA-80) atividade do reator IEA-R1 usando o Cs-137 como monitor de queima. Para medir a distribuição de Cs-137 nos elementos combustíveis foi usado um detector Ge(Li), volume =  $73,7\text{cm}^3$ , em dois sistemas, S.I e S.II, com geometrias bem definidas com boa colimação.

O IEA-14 retirado do caroço do reator há aproximadamente 20 anos apresenta um espectro gama essencialmente devido ao Cs-137. O IEA-80, com tempo de resfriamento de aproximadamente 5 anos, mostra um espectro gama mais complexo devido a um maior número de produtos de fissão ainda presentes.

No S.I, projetado para medidas fora da piscina do reator de elementos de baixa intensidade, foram feitas medidas detalhadas com fontes calibradas puntiformes (Cs-137 e Co-60) e em forma de disco (Ag-110m), com a finalidade de avaliar os vários parâmetros necessários para calcular a queima. Medidas detalhadas da transmissão gama no IEA-14 usando fonte de Cs-137 demonstraram a alta homogeneidade das placas combustíveis.

O S.II foi projetado para medidas, dentro da piscina do reator de elementos de alta atividade. Nesse sistema o detector foi colocado sobre a ponte móvel da piscina do reator e o elemento medido foi posicionado a 2,17m abaixo da superfície desta. Esse sistema foi calibrado usando o IEA-14.

Os valores da queima dos elementos IEA-14 e IEA-80 obtidos neste trabalho são  $3,22 \cdot 10^{-3}$  gramas e 24,44 gramas respectivamente. Os valores relativos calculados pelo método de energia térmica são  $2,65 \cdot 10^{-3}$  gramas e 61,11 gramas. Os desvios nos cálculos da queima do U-235 são 7,4% (IEA-14) e 10,1% (IEA-80). É apresentada uma análise detalhada dos erros associados aos resultados obtidos.

# NON DESTRUCTIVE BURN UP DETERMINATION OF IEA-R1 REACTOR FUEL ELEMENTS BY GAMMA-RAY SPECTROMETRY USING A Ge(Li) DETECTOR

TUFIC MADI FILHO

## ABSTRACT

A non destructive determination of burn up of low (IEA-14) and high(IEA-80) activity fuel elements used in the IEA-R1 pool reactor was made from the measured distribution of the Cs-137 gamma-ray activity in these elements. For both series of measurements a 73,7 c.c. Ge(Li) detector was used in "well collimated" geometry. Where as IEA-14, removed from the reactor some 20 years, showed a gamma-ray spectrum essentially due to Cs-137, IEA-80, with a cooling time of 5 years, showed a more complex spectrum due to the greater number of fission products remaining.

The S.I out-of-pool assembly was calibrated using Cs-137 and Co-60 point and Ag-110m plane sources. These measurements provided the necessary constants used to calculate fuel burn-up from measured relative activity distributions of fuel elements. Detailed fuel plate transmission measurements made with the Cs-137 source showed the plates to be highly homogenous.

High activity fuel elements were measured in the S.II in-pool assembly in which the detector was locate on the moveable pool bridge and the test element was positioned immediately below the detector 2.17m below the pool surface. Measurements made in the S.II assembly were normalised with respect to the measured activity of the IEA-14 element.

The measured burn up of the IEA-14 and IEA-80 elements obtained in this work is  $3.22 \cdot 10^{-3}$ gms and 24.44gms. These values may be compared with respective values of  $2.63 \cdot 10^{-3}$ gms and 61.11gms given by 'total reactor energy/flux distribution' calculations. Calculated errors for the U-235 burn up are 7.4%(IEA-14) and 10.1%(IEA-80). A detailed evaluation of the errors associated with both sets of measurements is given.

# ÍNDICE

	<u>Página</u>
I.	INTRODUÇÃO ..... 1
	I.1- Métodos de Determinação de Queima ..... 2
	I.2- Objetivo ..... 2
II.	TEORIA ..... 4
	II.1- Considerações Sobre Métodos Não Destrutivos de Espectrometria Gama ..... 4
	II.1.1- Atividade gama absoluta ..... 9
	Zr-95 - Nb-95 ..... 9
	Ru-106 - Rh-106 ..... 9
	Cs-137 ..... 10
	Cs-144 - Pr-144 ..... 10
	Ba-140 - La-140 ..... 11
	II.1.2- Razão de atividades ..... 11
	II.2- Escolha do Nuclídeo Radioativo Para Monitor de Fissão ..... 12
	Detectores NaI(Tl) e Ge(Li) ..... 18
	II.3- Equações para Cálculo do Consumo de Combustível ..... 18
	II.4- Cálculo de $\omega$ ..... 20
III.	PARTE EXPERIMENTAL ..... 24
	III.1- Descrição dos Elementos Combustíveis Utilizados ..... 24
	III.2- Sistemas Utilizados ..... 24
	III.3- Medidas ..... 36
	III.3.1- Medidas realizadas no S.I ..... 36
	Calibração ..... 37
	Fator de transmissão ( $F_T$ ) ..... 37
	Fator de autoabsorção ( $F_{ab}$ ) ..... 38
	Eficiência intrínseca do S.I ( $\eta_{ex}$ ) .. 41
	Eficiência global do S.I ( $\eta$ ) ..... 41
	Densidade de Cs-137 ..... 41
	Fator de similaridade(S) ..... 44

	<u>Página</u>
III.3.2- Medidas realizadas no S.II .....	44
Fator de Similaridade (S) .....	44
Densidade de Cs-137 .....	45
Espectro dos raios gama emitidos pelo elemento IEA-89 .....	45
IV. ANÁLISE DOS RESULTADOS DAS MEDIDAS .....	46
IV.1- Espectros dos Raios Gama das Fontes Radio ativas e dos Elementos Combustíveis .....	46
IV.2- Parâmetros Calculados .....	55
Fator de Transmissão ( $F_T$ ) .....	55
Eficiência Intrínseca ( $\eta_{ex}$ ) .....	56
Eficiência Global ( $\eta$ ) .....	57
Fator de Similaridade Entre os Sistemas I e II. (S) .....	60
Fator de Correção para o Decaimento do Cs-137 Durante o Período de Irradiação( $f_c$ )..	60
Fator de Transmissão do Filtro de Chumbo ( $F_{pb}$ ) .....	61
Secções de Choque .....	61
IV.3- Cálculo da Densidade de Cs-137 nos Elemen- tos Combustíveis .....	62
Cálculo do Número de Átomos de Cs-137 no IEA-14 .....	63
Cálculo de $N_x$ para o IEA-14 .....	64
Cálculo do Número de Átomos de Cs-137 no IEA-80 .....	65
Cálculo de $N_x$ para o IEA-80 .....	66
Cálculo da Integral do Fluxo no Tempo( $\omega$ ), para os Elementos Combustíveis Analisados ..	66
Cálculo do Consumo de U-235, U-238. Forma ção e Consumo de Pu-239 nos Elementos Com bustíveis Analisados .....	67
V. ANÁLISE E DISCUSSÃO DOS ERROS .....	69
Desvio em C .....	69

	<u>Página</u>
Desvio em $F_T$ .....	69
Desvio em $\omega$ .....	71
Desvio no Consumo de U-235, U-238 e na Formação e no Consumo de Pu-239 .....	72
VI. CONCLUSÃO .....	74
APÊNDICE I .....	75
I.1- Método de Cálculo dos Parâmetros Utilizados na Obtenção da Densidade de Cs-137 nos Ele- mentos Estudados .....	75
Cálculo do Fator de Transmissão por Placa ( $F_T$ ) .....	75
Cálculo da Eficiência Intrínseca do S.I( $n_{ex}$ )..	77
Cálculo da Eficiência Global do S.I( $n$ ) .....	77
Cálculo do Fator de Similaridade (S) .....	78
Cálculo do Fator de Transmissão do Revestimen- to de uma Face da Parte Ativa de uma Placa, para Raios Gama do Cs-137( $F_T$ ) .....	78
Cálculo do Fator de Autoabsorção da Parte Ati- va de uma Placa para os Raios Gama do Cs-137 ( $F_{ab}$ ) .....	79
Cálculo do Fator de Transmissão para o Filtro de Chumbo para os Raios Gama do Cs-137( $F_{pb}$ )...	80
Cálculo do Fator de Correção para o Decaimen- to do Cs-137 Durante o Período de Irradiação ( $f_c$ ) .....	81
I.2- Cálculo das Secções de Choque do U-235, U-238 e Pu-239 .....	82
I.3- Medidas Realizadas para Verificar a Homogenei- dade da Fonte de Ag-110m de 25,4mm de Diâme- tro .....	86
APÊNDICE II .....	87
Testes Realizados para Verificar o Funcionamento dos Sistemas de Medidas .....	87
Teorema do Limite Central (T.L.C.) .....	87

	<u>Página</u>
Teste do $\chi^2$ .....	88
REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	89

## ÍNDICE DE TABELAS

Página

Tabela I.1-	Sumário de Técnicas de Análise Não Destr <u>u</u> tiva de Combustível Irrradiado .....	3
Tabela II.1-	Resultados Quantitativos de Análise Gama Não Destrutiva e Radioquímica de Três Sec <u>ç</u> ões (de 12mm de comprimento e 6mm de diâ metro) de um Elemento Combustível de Car <u>u</u> beto (U, Pu).....	6
Tabela II.2-	Isótopos Radioativos Produtos de Fissão para Monitoração de Queima de Combustível Nuclear .....	14
Tabela II.3-	Isótopos Radioativos Produtos de Fissão Usados como Monitores de Fissão, em Função do Período de Irradiação e Decaimento .....	16
Tabela III.1-	Dados de Fabricação e Utilização dos Elemen <u>u</u> tos Estudados .....	27
Tabela III.2-	Fontes Usadas neste Trabalho .....	36
Tabela III.3-	Dados de Calibração do Sistema de Detecção de Raios Gama .....	37
Tabela IV.1-	Valor Médio do Fator de Transmissão por Pla <u>u</u> ca do Elemento IEA-14 para Várias Posições da Fonte .....	55
Tabela IV.2-	Valor Médio do Fator de Transmissão por Pla <u>u</u> ca do Elemento IEA-14 para a Fonte sob as 19 Placas .....	56
Tabela IV.3-	Valor Médio da Eficiência Intrínseca do S. I para Quatro Distâncias Fonte-Detector ....	57
Tabela IV.4-	Comparação da Eficiência Intrínseca de Sis <u>u</u> temas de Medidas Usando Detectores Ge(Li) e NaI(Tl) .....	57
Tabela IV.5-	Eficiência Global do S.I, para Várias Ener <u>u</u> gias de Decaimento da Ag-110m .....	59
Tabela IV.6-	Fator de Similaridade entre S.I e S.II, pa <u>u</u> ra Três Pontos ao Longo do IEA-14 .....	60

	<u>Páginas</u>
Tabela IV.7-	Secções de Choque Médias para o IEA-14 .... 62
Tabela IV.8-	Secções de Choque Médias para o IEA-80 .... 62
Tabela IV.9-	Taxa de Formação por Fissão ..... 67
Tabela IV.10-	Valores Calculados para a Integral do Fluxo no Tempo de Irradiação ..... 67
Tabela IV.11-	Valores de Queima Obtidos pelo Método Não Destrutivo de Espectrometria Gama ..... 68
Tabela V.1-	Desvio nos Parâmetros Usados no Cálculo da Queima dos Elementos IEA-14 e IEA-80 ... 70
Tabela V.2-	Desvio de $\omega$ e dos Parâmetros A e B Usados no seu Cálculo ..... 72
Tabela V.3-	Desvios Calculados para os Consumos de U-235, U-238, Pu-239 e para a Formação de Pu-239 ..... 73
Tabela VI.1-	Comparação dos Valores de Queima dos Elementos Combustíveis IEA-14 e IEA-80 ..... 74
Tabela A.1-	Comparação dos Valores Calculados para $F_T$ ..... 76
Tabela A.2-	Dados Relativos aos Elementos Combustíveis para Cálculo das Secções de Choque-... 83
Tabela A.3-	Grupos de Energia Definidos para as Secções de Choque pelo Hammer ..... 84
Tabela A.4-	Valores das Secções de Choque e dos Fluxos Relativos Calculados pelo Hammer e Valores Médios Ponderados ..... 85

## ÍNDICE DE FIGURAS

	<u>Página</u>	
Figura II.1-	Espectro dos Produtos de Fissão de uma Amostra de U-235, com Queima de 50% e 250 dias de resfriamento.....	7
Figura II.2-	Espectro Gama de Elementos Combustíveis Usados do MTR, em Função do Tempo de Resfriamento.....	8
Figura II.3-	Temperaturas Máximas na Superfície das Placas dos Elementos Combustíveis do Reator IEA-R1 em Função da Vazão do Refrigerante e da Potência de Operação.....	17
Figura II.4-	Espectros de uma Única Fonte (Co-60) Mostrando a Alta Resolução do Ge(Li) em Comparação com o NaI(Tl).....	19
Figura II.5-	Espectros de uma Única Fonte (Ta-182) Mostrando a Alta Resolução do Ge(Li) em Comparação com o NaI(Tl).....	19
Figura III.1-	Elemento Combustível Padrão de Placas Curvas do Tipo M.T.R. ....	25
Figura III.2-	Elemento Combustível Padrão de Placas Planas do Tipo M.T.R. ....	26
Figura III.3-	Sistema I e Elemento Combustível IEA-14 .....	30
Figura III.4-	Detalhes da Montagem Mecânica do S.I. Detector Ge(Li) e Elemento Combustível IEA-14 .....	31
Figura III.5-	Montagem Mecânica do S.II e Detector Ge(Li).....	32
Figura III.6-	Montagem Mecânica do S.I .....	33
Figura III.7-	Montagem Mecânica do S.II .....	34
Figura III.8-	Esquema do Detector Ge(Li) com Equipamento Eletrônico Associado .....	35
Figura III.9-	Esquema das Medidas Realizadas com as Fontes de Cs-137 e o Elemento IEA-14 .....	39
Figura III.10-	Esquema das Medidas Realizadas com as Fontes de Cs-137 sobre o Suporte de Lucite .....	40

	<u>Página</u>
Figura III.11-	Esquema de Medidas Realizadas com o Elemento IEA-14 e com a Fonte de Ag-110m ..... 42
Figura III.12-	Esquema das Medidas Realizadas com os Elementos Combustíveis IEA-14 e IEA-80..... 43
Figura IV.1-	a) Espectro do Elemento Combustível IEA-14 ..... 47 b) Espectro de uma Fonte de Cs-137 ..... 47
Figura IV.2-	Espectro dos Raios Gama Emitidos pela Ag-110m ..... 48
Figura IV.3-	Distribuição de Cs-137 nas Placas do IEA-14 ..... 48
Figura IV.4-	Espectro dos Raios Gama Obtido para o Elemento Combustível IEA-80 ..... 49
Figura IV.5-	Espectro dos Raios Gama do Elemento Combustível IEA-80 ..... 50
Figura IV.6-	Comparação da Distribuição da Atividade de Cs-137, em Função da Contagem Total Obtida, nos Elementos IEA-14 e IEA-80 ..... 52
Figura IV.7-	Concentração de Cs-137 na Posição Central dos Elementos Combustíveis, nas Três Linhas Medidas ..... 53
Figura IV.8-	Posições Ocupadas pelos Elementos Combustíveis Analisados no Caroço do Reator IEA-R1 ..... 54
Figura IV.9-	Variação da Eficiência Global ( $\eta$ ) com a Energia ... 58
Figura IV.10-	Fator de Correção para o Decaimento para Ciclos de Operação de 1 semana ..... 61
Figura A.1-	Posição das Medidas para Verificar a Homogeneidade da Fonte de Ag-110m ..... 86

## I. INTRODUÇÃO

A determinação da queima, ou número total de eventos de fissão ocorridos durante a irradiação de um elemento combustível nuclear, pode ser realizada por vários métodos já estabelecidos. A escolha do método a ser utilizado depende de fatores tais como:

- a) a precisão requerida;
- b) a natureza química do elemento;
- c) os tempos de irradiação e decaimento <sup>(13)</sup>
- d) a possibilidade ou não de dissolução do elemento combustível.

Existe no elemento combustível irradiado, na forma de produtos de fissão, um registro da densidade de fissão. Alguns desses produtos podem ser determinados, de maneira destrutiva ou não destrutiva, por espectrometria gama <sup>(14)</sup>. O método não destrutivo de espectrometria gama, usado neste trabalho, é baseado no fato de que a atividade gama, proveniente do processo de decaimento de certos produtos de fissão, pode ser relacionada com a queima sofrida pelo elemento combustível.

Neste trabalho são apresentados os resultados dos cálculos de queima de dois elementos combustíveis do reator IEA-R1 (elementos IEA-14 e IEA-80). As medidas para determinar a densidade do produto de fissão, usado como monitor de fissão, existente nesses elementos, foram feitas usando-se um detector de Ge(Li). As medidas com esses elementos foram feitas respectivamente nos S.I e S.II (sistemas de medidas utilizados).

O trabalho realizado com o S.I foi semelhante ao trabalho realizado por Soares, A.J. <sup>(30)</sup> usando um detector de NaI(Tl) para medida de queima de elementos de baixa atividade.

A implantação do S.II, para medidas de queima de elementos combustíveis, de alta atividade é uma complementação do trabalho desenvolvido por Soares.

## I.1- MÉTODOS DE DETERMINAÇÃO DE QUEIMA

Os métodos usados para a determinação da queima podem ser classificados como:

- a) métodos não destrutivos físicos ou computacionais;
- b) métodos químicos que requerem a dissolução da amostra.

Para cálculos de queima por métodos não destrutivos são usados parâmetros físicos, tais como: valores de secções de choque nuclear, distribuição da taxa de fluxo de nêutrons no caroço do reator, níveis de potência e do fluxo de nêutrons do reator, cálculos da carga do combustível do reator e medidas do calor produzido. Os métodos químicos utilizam a medida da alteração da composição isotópica, dos elementos pesados, do elemento combustível durante a irradiação, ou a determinação da quantidade formada de um ou mais produtos de fissão, radioativos ou estáveis. A espectrometria gama (análise gama) destrutiva ou não destrutiva, na qual a radioatividade de um ou mais nuclídeos produtos de fissão emissor gama é medida, é uma técnica útil para a medida da distribuição de queima em um elemento combustível.

A Tabela I.1, tirada da publicação de S.T. Hsue<sup>(16)</sup> apresenta um sumário de técnicas de análise não destrutiva de combustível irradiado. Nessa publicação S.T. Hsue comentou com detalhes cada uma dessas técnicas.

## I.2- OBJETIVO

O objetivo deste trabalho é implantar no IPEN um sistema de medidas para determinar a queima de elementos combustíveis, de alta atividade, do reator IEA-R1, pelo método não destrutivo de espectrometria gama.

Atualmente o consumo desses elementos combustíveis é calculado pelo método indireto de energia térmica. O trabalho de implantação do sistema de medidas permitirá comparar os valores de consumo obtidos pelos dois métodos, tendo por finalidade otimizar o uso desses elementos.

Essa implantação, objetiva ainda, a familiarização com a técnica não destrutiva visando sua aplicação em reatores de potência.

Técnica	Fonte Gama ou Fonte de Nêutrons	Tipo do Combustível ou Gasto	Precisão Apresentada	Observação
Atividade Gama Absoluta	Cs-137	Barra LWR Elemento LWR	1 - 4% 1 - 6%	A precisão citada pode ser obtida somente se a atenuação no elemento puder ser calculada com alta precisão
Razão de Atividades Gama	Cs-137/Cs-134	Elemento MTR Barra LWR Elemento LWR	1% 3 - 8% 1 - 4%	
Absorção de Raios Gama	Raios Gama de 145 keV	Elemento MTR Elemento MTR	5 - 9% 2%	
Contagem de Nêutron Passivo		Barra LWR	-	Necessita de estudos experimentais adicionais
Análise com Fonte Isotópica de Nêutrons	Cf-252, Sb-Be, Rh-D Ra-Be Su-Be	Elemento LWR Vários elementos combustíveis Combustível de RTGR	- 2% 4%	Somente estudos propostos Sistemas extensivamente testado Sistema testado
Análise com Aceleradores	Van de Graaff (Nêutrons de 200-500 keV) Cockcroft-Walton (Nêutrons de 14 MeV) Tubo selado (Nêutrons de 14 MeV)	Elemento LWR Elemento MTR Elemento MTR	- 2% 4%	Somente estudos propostos Sistema testado Sistema testado
Espectrômetro de Nêutrons Moderados	Tubo selado (Nêutrons 14 MeV)	Barra LWR	-	Estudo proposto. Uma razão de discriminação Pu-239/U-235 tem sido obtida com um fator de 4 para combustível novo
Absorção de Nêutrons de Ressonância	Fluxo de Nêutrons Epitérmicos (Reator)	Pó para combustível LWR	9%	Pode determinar o conteúdo isotópico. Provavelmente aplicável ao elemento do LWR
Reatividade	Sistema crítico	Barra FBR Barra ( $^{233}\text{UO}_2\text{-ThO}_2$ )	2% 0,5%	São necessários estudos para aplicar este método em barras ou elemento do LWR
Calorimetria		Placas do combustível MTR	1 - 3%	Requer cuidadosa correção de irradiação e resfriamento

Tabela I.1- Sumário de Técnicas de Análise Não Destrutiva de Combustível Irradiado (16).

## II. TEORIA

A determinação da distribuição da queima dos elementos combustíveis é necessária para a operação do reator e otimização do ciclo do combustível nuclear. Erros nos valores de queima introduzem erros nos cálculos de utilização do combustível, enriquecimento, equipamento de transporte, blindagem requerida e reprocessamento do combustível. Todos estes fatores afetam o custo da geração da energia<sup>(12,33)</sup>.

Para o cálculo dessa distribuição de queima por métodos não destrutivos, é necessário conhecer a distribuição do fluxo de nêutrons no reator. Na medida desse fluxo podem ser usados vários tipos de detectores. Mas, de modo geral, o próprio detector provoca uma distorção no fluxo que está sendo medido. Temos, então, frequentemente erros nos cálculos da queima.

A espectrometria gama não destrutiva é um método importante para a medida de queima dos elementos combustíveis irradiados. A análise da intensidade e distribuição da radiação gama emitida pelos produtos de fissão contidos no elemento combustível, fornece o valor da fração de combustível consumida durante o período de irradiação<sup>(8)</sup>. Isso porque esses produtos de fissão funcionam como monitores de fissão. E para monitores com meia vida longa em comparação com o tempo de irradiação, é possível calcular a queima sem necessidade de conhecimento da distribuição do fluxo de nêutrons.

### II.1- CONSIDERAÇÕES SOBRE MÉTODOS NÃO DESTRUTIVOS DE ESPECTROMETRIA GAMA

Das técnicas de análise não destrutiva de combustível nuclear irradiado, apresentadas na Tabela I.1, as que nos interessam, no momento, são as de atividade gama absoluta e de razões entre atividades gama de diferentes energias.

Os métodos não destrutivos de espectrometria gama, empregam

um ou mais produtos de fissão radioativos como monitores de fissão. Esses métodos têm sido dos mais usados apesar de suas limitações. O uso do detector de Ge(Li) por ter alta resolução (o detector usado neste trabalho tem  $\frac{\text{FWHM}}{\text{Energia do pico}}$  igual a 1,3% a 122 keV, 0,3% a 661,6 keV e 0,1% a 2614 keV), tem facilitado a medida da atividade de gama de um nuclídeo produto de fissão específico em presença de um complexo espectro gama, Figura II.1. Esse fato tem aumentado a atratividade do método de espectrometria gama para a determinação de queima. São apresentadas mais adiante algumas considerações sobre os detectores NaI(Tl) e Ge(Li).

As principais desvantagens do uso dos métodos que empregam produtos de fissão radioativos como monitores de queima são:

- a) para a maioria dos monitores, o método é muito dependente dos dados de tempo de irradiação e decaimento, Figura II.2;
- b) para a irradiação em reatores de potência as flutuações da potência são variáveis importantes que necessitam ser conhecidas para obtenção de maior precisão;
- c) a baixa precisão dos dados nucleares apresenta um erro significativo nesse método de análise<sup>(11)</sup>;

Há contudo, vários argumentos para o uso desses métodos para a determinação da queima.

- a) não exigem a destruição do elemento combustível<sup>(3)</sup>;
- b) as medidas são rápidas em comparação com medidas que exigem análises químicas<sup>(3)</sup>;
- c) são úteis para a operação econômica de reatores de potência<sup>(14)</sup>;
- d) possibilitam o cálculo de elementos pesados contidos no elemento combustível e especificamente a diminuição do U-235 e formação do Pu-239<sup>(1)</sup>;
- e) permitem determinar a distribuição do fluxo de nêutrons no reator<sup>(13)</sup>;
- f) é um método que apresenta baixo custo de utilização, desde que já se possua os equipamentos necessários, que são os usados em métodos químicos de análise gama<sup>(1)</sup>;

- g) para elementos de curto tempo de resfriamento, a técnica permite obter valores da queima com o mínimo risco de exposição à radiação gama para o operador durante a análise <sup>(11)</sup>;
- h) em comparação com os métodos químicos considerados os mais precisos, esse método fornece resultados com boa precisão <sup>(11)</sup>.

A Tabela II.1 apresenta uma comparação entre os valores de queima obtidos pelos métodos radioquímico e não destrutivo de espectrometria gama

Isótopo	Análise Gama Não Destrutiva (a,b) (átomos)	Análise Radioquímica (a) (átomos)	Desvio(%) (C)
$^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$	$1,74 \pm 0,04 \times 10^{18}$	$1,80 \pm 0,05 \times 10^{18}$	3,1
	$2,08 \pm 0,04 \times 10^{18}$	$2,13 \pm 0,04 \times 10^{18}$	2,6
	$1,69 \pm 0,03 \times 10^{18}$	$1,76 \pm 0,06 \times 10^{18}$	3,6
			média 3,1
$^{137}\text{Cs}$	$5,27 \pm 0,06 \times 10^{19}$	$5,40 \pm 0,06 \times 10^{19}$	2,5
	$6,12 \pm 0,06 \times 10^{19}$	$5,80 \pm 0,06 \times 10^{19}$	5,5
	$4,89 \pm 0,06 \times 10^{19}$	$4,97 \pm 0,06 \times 10^{19}$	1,6
			média 3,2
$^{144}\text{Ce}-^{144}\text{Pr}$	$4,66 \pm 0,08 \times 10^{18}$	$4,78 \pm 0,09 \times 10^{18}$	2,5
	$5,76 \pm 0,08 \times 10^{18}$	$5,45 \pm 0,08 \times 10^{18}$	5,8
	$4,58 \pm 0,08 \times 10^{18}$	$4,58 \pm 0,08 \times 10^{18}$	0,0
			média 2,8

Tabela II.1- Resultados Quantitativos de Análise Gama Não Destrutiva e Radioquímica de Três Secções (de 12mm de comprimento e 6mm de diâmetro) de um Elemento Combustível de Carbetto de (U,Pu) <sup>(27)</sup>.

- a) os valores com os sinais  $\pm$  associados a cada medida representam o desvio devido somente a estatística de contagem;
- b) foram feitas 25 medidas, de cada secção, para obter os valores médios de análise gama não destrutiva;
- c) o desvio é calculado comprando os resultados obtidos pela análise gama com os obtidos pela análise radioquímica.

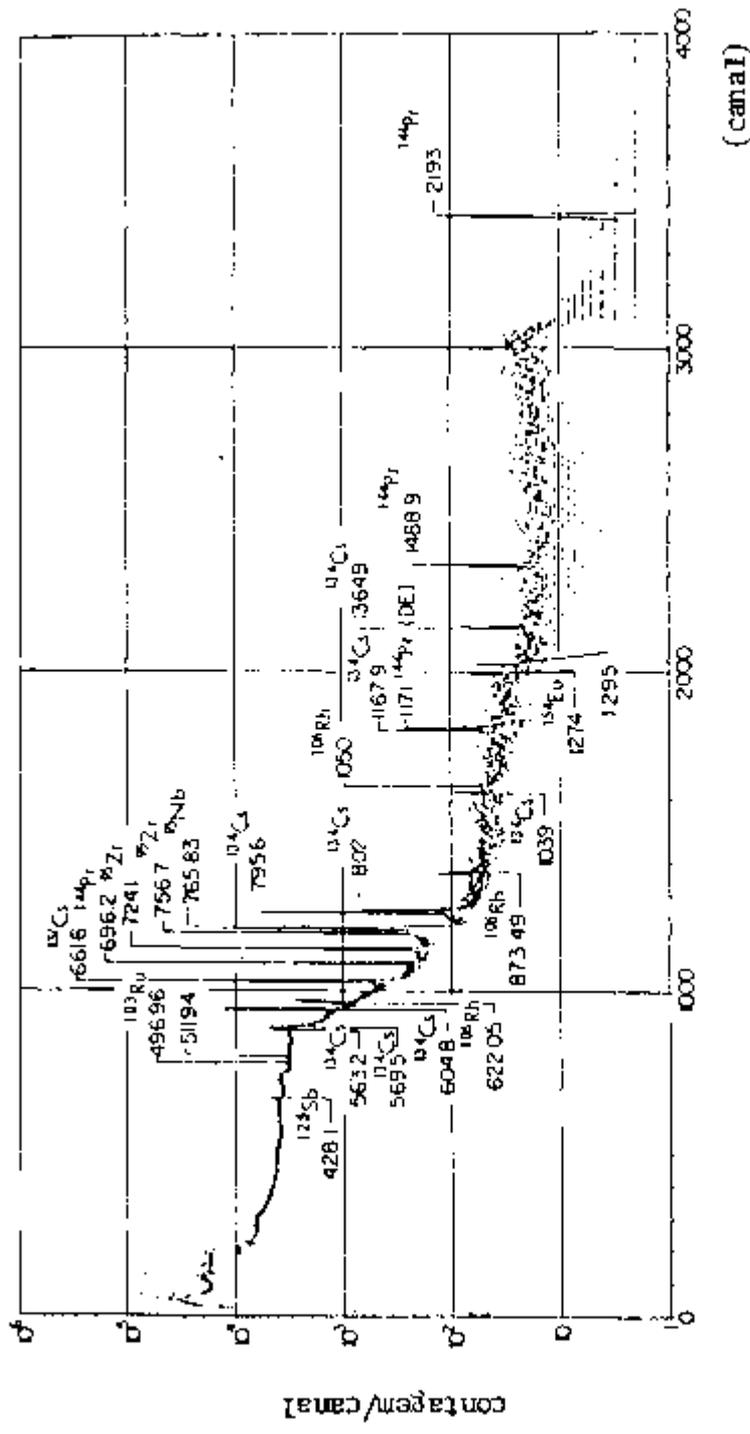


Figura II.1- Espectro dos produtos de fissão de uma amostra de U-235, com queima de 50% e 250 dias de resfriamento (9).



## II.1.1- ATIVIDADE GAMA ABSOLUTA

Essa técnica relaciona o valor da atividade gama absoluta de um ou mais produtos de fissão usados como monitores com a queima sofrida por um combustível nuclear irradiado.

A seguir é apresentado um estudo de alguns produtos de fissão que podem ser usados como monitores de queima de combustível nuclear irradiado.

### Zr-95 - Nb-95

A formação do Zr-95 é relativamente constante para a fissão do urânio e do plutônio (Tabela II.2), a secção de choque de absorção de nêutron é baixa e aparentemente não migra. Contudo, sua meia vida relativamente baixa, 65,5 dias, limita seu uso como monitor de queima para tempos de irradiação e decaimento relativamente curtos.

### Ru-106 - Rh-106

A baixa secção de choque de absorção de nêutrons e a meia vida de um ano torna o Rh-106 adequado para monitor de queima. Contudo determinou-se que o par Ru-106 - Rh-106 sofre migração. E a produção por fissão térmica do Pu-239 é aproximadamente onze vezes a produção por fissão térmica do U-235 (Tabela II.2). Essa grande diferença na produção por fissão tem sido explorada por Forsyth e Blackadder <sup>(16)</sup>, para determinar os eventos de fissão relativos ao U-235 e ao Pu-239.

Para combustíveis usados, com tempo de irradiação relativamente longo (aproximadamente três anos), a incerteza causada pela história de irradiação e correções de decaimento pode ser substancial. Em estudos realizados verificou-se uma diferença de 7,7% entre determinações não destrutivas e destrutivas, na quantidade de Rh-106 no combustível do reator Trino e de 14,9% em combustível do reator Dodewaard <sup>(16)</sup>.

Cs-137

O Cs-137 é considerado o mais adequado produto de fissão para monitor de queima, isso porque, tem meia vida relativamente longa (30,12 anos) tem aproximadamente a mesma formação por fissão para o urânio e para o plutônio (Tabela II.2) e sua secção de choque de absorção de nêutron e de seus precursores é insignificante. Os 30 anos de meia vida torna desnecessária correção relativa a história da potência.

O maior obstáculo para o uso do Cs-137 como monitor de queima, em reatores de potência, é sua migração com temperaturas acima de 700°C. Portanto, para que ele possa ser usado como monitor, deve ser feita correção para a migração. A migração do Cs-137 pode ser verificada, por exemplo, comparando-o com outro elemento que não migra, como o zircônio e o praseodímio. No caso de falha no encaminhamento o Cs-137 não pode ser usado como monitor de queima, porque pelo fato dele sofrer migração, pode haver vasamento consequentemente uma diminuição de sua densidade no local da falha.

Nos estudos feitos com barras ou conjunto de combustíveis irradiados, usando o Cs-137 como monitor, a precisão no cálculo de queima está dentro de 1 a 6% (Tabela I.1).

Ce-144 - Pr-144

O Pr-144 tem vantagem no uso como monitor, pois, nem ele nem seu precursor migram. E ainda emite raios gama de 2,18 MeV, tornando pouco importante o fator de correção da autoabsorção. Por essas razões a análise não destrutiva fornece quase o mesmo resultado da quantidade de Pr-144 que a análise destrutiva (com diferença de 1,7% para o combustível do reator Trino). Essas vantagens devem ser consideradas apesar dos obstáculos, meia vida relativamente curta, 284 dias, e produção por fissão do U-235 diferente da produção por fissão do Pu-239 (Tabela II.2). Esses dois obstáculos necessitam de cuidadosa correção baseada na história da potência.

Em estudos com o par Ce-144 - Pr-144 como monitor de queima de combustíveis do reator Candu, Chen et al,<sup>(16)</sup> acharam que a incerteza na determinação da queima pode ser de +30% a -20% para valo

res calculados para um período de irradiação de 500 dias. A incerteza diminui para +15 a -12% para um período de irradiação menor (menos que 300 dias).

#### BA-140 - La-140

O La-140 apesar de apresentar raios gama de energias 2520 keV e 1596 keV, que torna a correção de autoabsorção pouco importante, não é normalmente usado como monitor de fissão. Isso porque, tem meia vida muito curta, 12,8 dias<sup>(8)</sup>, assim logo atinge a saturação (taxa de formação igual a de decaimento). Por essa razão não é possível uma relação direta entre sua formação e queima do elemento. Mas, por exemplo, no caso de um rearranjo no caroço do reator, onde muitas vezes não se pode esperar um tempo de resfriamento suficiente para definir as linhas gama de outros núclídeos, o La-140 por apresentar linhas bem definidas, Figura II.2, as vezes pode ser usado como monitor. Mas uma rigorosa correção baseada na história da irradiação deve ser feita.

### II.1.2- RAZÃO DE ATIVIDADES

A medida de razão de atividades vem sendo sugerida para uso como monitor de queima. Vários experimentos foram feitos desde 1971, e o método tem sofrido um desenvolvimento contínuo. São usados como monitores de fissão razões de atividades tais como Cs-137/Cs-134, Ca-137/Eu-154.

Na medida de atividade absoluta é necessário conhecer a eficiência absoluta do sistema de detecção e a medida deve ser realizada sob uma geometria rigorosamente controlada. Por outro lado, a medida da razão de atividades é menos sensível ao arranjo geométrico e requer somente o conhecimento da eficiência relativa. Correlações entre a queima ou razão das massas Pu/U e razão de atividades Cs-137/Cs-134 tem sido observadas<sup>(16)</sup>

Em seu trabalho, I.Ursu et al<sup>(34)</sup>, concluíram que o uso da razão de atividades Cs-137/Cs-134, que tem sido o método de uso mais comum nos últimos anos, para a determinação da queima, tem a

desvantagem de ser muito dependente da história da irradiação. Mas, em compensação, o uso da razão de atividades Cs-137(661,6 keV)/Cs-134(604,7 keV) acoplado com a razão de atividades Cs-137(661,6 keV)/Pr-144(696,5 keV) oferece a possibilidade de determinação dos valores do fluxo de nêutrons e tempo de irradiação, então, com esses valores se pode calcular a queima dos elementos combustíveis irradiados com reduzida dependência da história da irradiação. Por causa do Ce-144(isótopo pai do Pr-144) ter uma meia vida relativamente curta (284,2 dias) esse método é limitado para períodos de resfriamento de aproximadamente 4 anos. Para períodos de resfriamento maiores do que 4 anos I.Ursu et al, usaram a razão de atividades Cs-137(661,6 keV)/Eu-154(723,3 keV) pelo fato do Eu-154 ter uma meia vida maior (8,5 anos). É importante notar que, por causa de condições experimentais, não se pode resolver a linha gama de 723,3 keV do Eu-154 da linha gama de 724,4 keV do Zr-95. Portanto, a razão de atividades Cs-137(661,6 keV)/Eu-154(723,3 keV) só pode ser usada após dois anos de resfriamento, tempo necessário para o Zr-95( $T_{1/2} = 65,5$  dias) decair.

Em face do exposto, considerando que a história de irradiação dos elementos combustíveis do reator IEA-R1 é bastante irregular, e que os elementos combustíveis usados têm tempos de resfriamento de alguns meses a vários anos, nós optamos pelo uso da medida de atividade absoluta. Assim evitamos uma série de correções a serem feitas com o uso da razão de atividades. E como mostra a Tabela I.1 a precisão desses dois métodos, atividade absoluta e razão de atividades, são praticamente iguais.

Devemos agora escolher um nuclídeo produto de fissão para monitor de fissão.

## II.2- ESCOLHA DO NUCLÍDEO RADIOATIVO PARA MONITOR DE FISSÃO

A concentração de um determinado nuclídeo radioativo produto de fissão em um elemento combustível nuclear irradiado pode ser usada, dentro de certos limites, como monitor do número total de eventos de fissão que ocorreram no combustível durante a irradiação. Em geral a concentração desse monitor é medida em presença

de um complexo espectro gama emitido por produtos de fissão de um elemento combustível irradiado, Figura 1.1. As características de um monitor ideal são:

- a) ter aproximadamente a mesma produção por fissão, para todos os elementos pesados de interesse que sofrem fissão, e essa produção por fissão não deve variar com a energia do nêutron<sup>(13,12,11,9,8,6)</sup>, para que haja uma constância da produção do monitor com o nível de queima;
- b) crescer linearmente com o número de fissões e, portanto, tanto ele como seus precursores devem ter baixa secção de choque de captura de nêutron<sup>(16,13,12,11,9)</sup>, para que a razão dos átomos produtos de fissão produzidos por fissão seja independente da queima;
- c) ter dados nucleares bem estabelecidos para que no reator e fora dele correções de decaimento possam ser calculadas adequadamente<sup>(12,11)</sup>;
- d) ter uma meia vida longa, comparada com o tempo de irradiação<sup>(16,13,12,11,9,8)</sup>, isso porque, se o tempo de irradiação for significativamente menor do que a meia vida do produto de fissão, o número determinado de átomos ou núcleos do monitor é proporcional ao número de fissões. Contudo, se o tempo de irradiação exceder a meia vida, essa proporcionalidade não será totalmente válida;
- e) que seja fácil de ser detectado, e que sua concentração possa ser determinada com precisão<sup>(13,12,11)</sup> para que, conseqüentemente, tenhamos um valor preciso da queima;
- f) ter pouco ou nenhum efeito de difusão, inclusive seus precursores, em função da temperatura<sup>(16,13,9)</sup>. Isso porque se os nuclídeos e seus precursores são voláteis, eles sofrem migração relativa a sua posição de formação. Essa migração causa uma depleção local do nuclídeo que está sendo analisado deturpando assim o valor da queima obtido.

Nenhum produto de fissão satisfaz todas essas condições. Os produtos de fissão que melhor satisfazem uma ou mais dessas condições estão sumarizados na Tabela II.2.

Isótopos	Meia Vida (a)	Formação por fissão térmica/%		Formação por fissão rápida/%		Energia (keV)	Fração de Emissão (%)
		U-235	Pu-239	U-235	Pu-239		
Zr-95	65,5d	6,50 6,2	5,01(b) 5,8	-	-	724,18 756,72	44,4 54,6
Ru-106	369d	0,39 0,38	4,48(b) 4,57	6,8	5,3	511,85 621,87 1050,39 1128,07	20,6 9,8 1,5 0,4
Cs-134	2,06a	6,75 (formado do Cs-133)	7,42(b)	-	-	569,35 604,73 795,84 801,94 1365,00	15,4 97,6 85,4 8,7 3,3
Cs-137	30,12a	6,26 6,15	6,65(b) 6,63	-	-	-	-
Ce-144	284,4d	5,39 6,0	3,80(b) 3,79	6,2	5,8	661,64 696,49 1489,15 2185,70	85,0 1,5 0,29 0,74
Eu-154	8,6a	0,164 (formado do Eu-153)	0,285(b)	-	-	591,78 723,31 873,25 996,37 1274,50	4,9 19,7 11,7 10,1 34,7

- a) Meia vida dos isótopos ENDF/B-IV Fission Product Files as reported in Los Alamos Scientific Laboratory Report La-6116-MS (1975)
- b) Produção por fissão térmica - Atomic Energy of Canada Limited Report AECL-4704 (February 1974)
- c) Produção por fissão térmica e por fissão rápida. A Review of Recent Studies of Nondestructive Assay Methods for Irradiated Nuclear Fuels - Nuclear Applications vol. 4 April 1965
- d) Energia Gama e Fração de Emissão - Nuclear Data Sheets, Oak Ridge National Laboratory.

Tabela II.2- Isótopos Radioativos Produtos de Fissão para Monitoração de Queima de Combustível Nuclear (16)

Para um determinado caso, a escolha do elemento ou dos elementos dependerá do período de irradiação e decaimento e da temperatura do combustível durante a irradiação. A Tabela II.3 apresenta uma seleção baseada no tempo de irradiação e decaimento. Da Figura II.3 temos o valor da temperatura da superfície de uma placa de um elemento combustível em função da vazão do refrigerante e da potência de operação do reator IEA-R1. A temperatura de nosso interesse é a temperatura máxima no interior da placa. Considerando a placa plana e que a transmissão de calor ocorre apenas nas faces da placa, podemos calcular a temperatura máxima no interior da placa pela equação:

$$T_{\max} = T_s + \frac{q''}{k_{Al}}(x_{Al}) + \frac{q'''}{k_{liga}}(x_{liga})^2$$

onde:

$T_{\max}$  = temperatura máxima no interior da placa

$T_s$  = temperatura na superfície da placa

$k_{Al}$  = condutividade térmica do alumínio

$k_{liga}$  = condutividade térmica da liga

$q''$  = fluxo térmico por unidade de área

$\left( \frac{\text{Potência máxima de operação}}{2 \text{ número de placas} \times \text{área de cada face}} \right) (\text{w/cm}^2)$

$q'''$  = fluxo térmico por unidade de volume

$\left( \frac{\text{Potência máxima de operação}}{\text{número de placas} \times \text{volume da liga por placa}} \right) (\text{w/cm}^3)$

A potência máxima de operação atualmente é 2MW, com vazão de refrigerante de 3600 galões por minuto (g.p.m.), portanto, da Figura II.3 temos que para essas condições a temperatura máxima na superfície da placa é aproximadamente igual a 70°C, donde temos:

$$T_{\max} = 70,2^\circ\text{C}$$

Baseado nos estudos feitos, para o nosso trabalho, foi escolhido o Cs-137 como monitor de fissão. Ele tem vantagens sobre os elementos usados como monitor. Isso porque:

- a) tem uma meia vida relativamente longa (30 anos), o que permite uma relação direta entre sua densidade e a queima sofrida pelo elemento;

Período de irradiação da Amostra	Período de decaimento da Amostra	Nuclídeo	Energia do gama medido
até 100 dias	até 150 dias	Zr-95	724 keV
até 400 dias	até 500 dias	Ce-144	154;695 ou 2180 keV
até 1800 dias	até 4000 dias	Cs-137	662 keV

Tabela II.3- Isótopos Radioativos Produtos de Fissão Usados como Monitores de Fissão, em Função do Período de Irradiação e Decaimento (II).

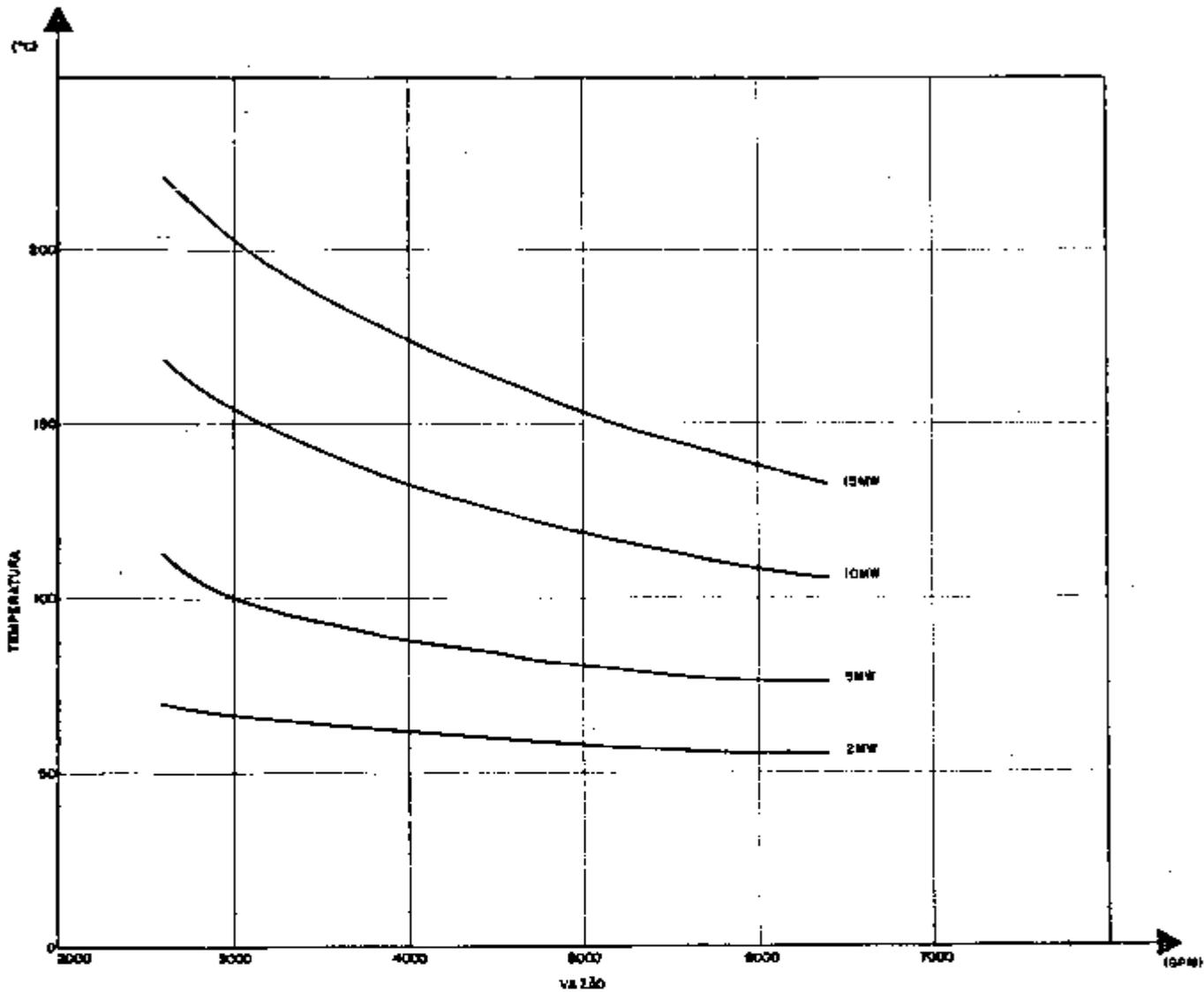


Figura II.3- Temperaturas Máximas na Superfície das Placas dos Elementos Combustíveis do Reator IEA-RI em Função da Vazão do Refrigerante e da Potência de Operação<sup>(17)</sup>.

- b) tem baixa secção de choque de absorção de nêutron, o que torna negligenciável a correção de perda por absorção, e a razão do número de átomos produzidos por fissão é independente da queima;
- c) tem aproximadamente a mesma produção por fissão do urânio e do plutônio, e essa produção quase não sofre variação com a energia do nêutron, havendo assim, uma constância entre sua produção e o nível de queima;

d) apresenta uma linha gama bem resolvida, necessitando para isso, apenas esperar um tempo de resfriamento (aproximadamente 20 dias).

E os dois inconvenientes para o uso do Cs-137 não nos causa problemas. Isso porque, os compostos de Césio sofrem migração para temperaturas acima de  $700^{\circ}\text{C}$ , e, no nosso caso, a temperatura no interior da placa combustível está bem abaixo desse valor. E a auto absorção dos raios gama de energia 661,6 keV é corrigida utilizando-se um fator de correção ( $F_{ab}$ ) calculado com boa precisão (0,05%).

#### - Detectores NaI(Tl) e Ge(Li)

Com o uso comum de detectores de Ge(Li) por volta de 1965, a importância do detector NaI(Tl) para medida de espectros de raios gama foi significativamente reduzida. O principal fator que limita o uso do detector NaI(Tl) é a baixa resolução para raios gama com energias próximas, provocando um empilhamento de pulsos e consequentemente a distorção do espectro, Figura II.4. Esse problema pode ser evitado em grande parte com o uso do detector de cristal de germânio-lítio difundido, Ge(Li), operado em temperatura do nitrogênio líquido. Esse detector é menos eficiente do que o NaI(Tl), mas tem maior poder de resolução (por exemplo da Figura II.3 temos que para a energia de 1333keV  $\frac{\text{FWHM}}{\text{Energia do Pico}}$  para o NaI(Tl) é de 6% e para o Ge(Li) é de 0,35% .

Essa alta resolução os detectores Ge(Li) possibilita resolver o complexo espectro gama dos produtos de fissão e assim identificar um nuclídeo específico, Figura II.1.

As Figuras II.3 e II.4 apresentam uma comparação de espectros obtidos com um detector NaI(Tl) de 7 x 7cm e com um Ge(Li) de 3,5mm de espessura.

### II.3- EQUAÇÕES PARA CÁLCULO DO CONSUMO DE COMBUSTÍVEL

O cálculo do consumo é significativamente simplificado, usando a variável  $w$  denominada integral do fluxo no tempo ou exposição, definida por:

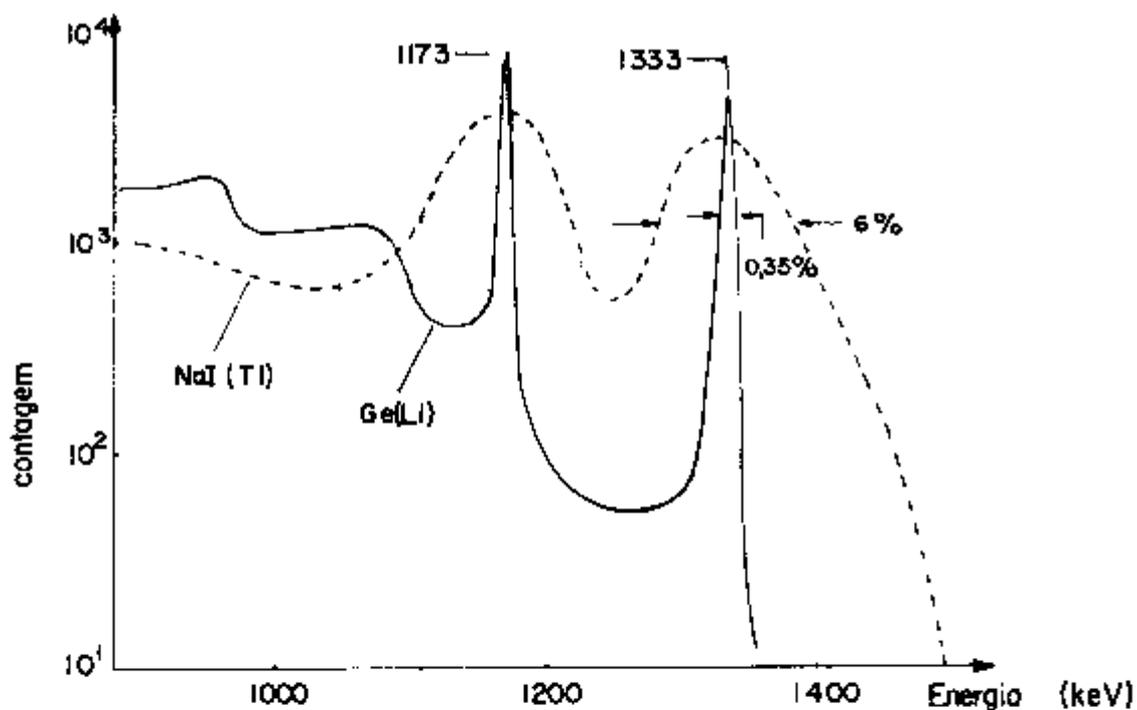


Figura II.4- Espectros de uma Única Fonte (Co-60) Mostrando a Alta Resolução do Ge(Li) em Comparação com o NaI(Tl) <sup>(29)</sup>.

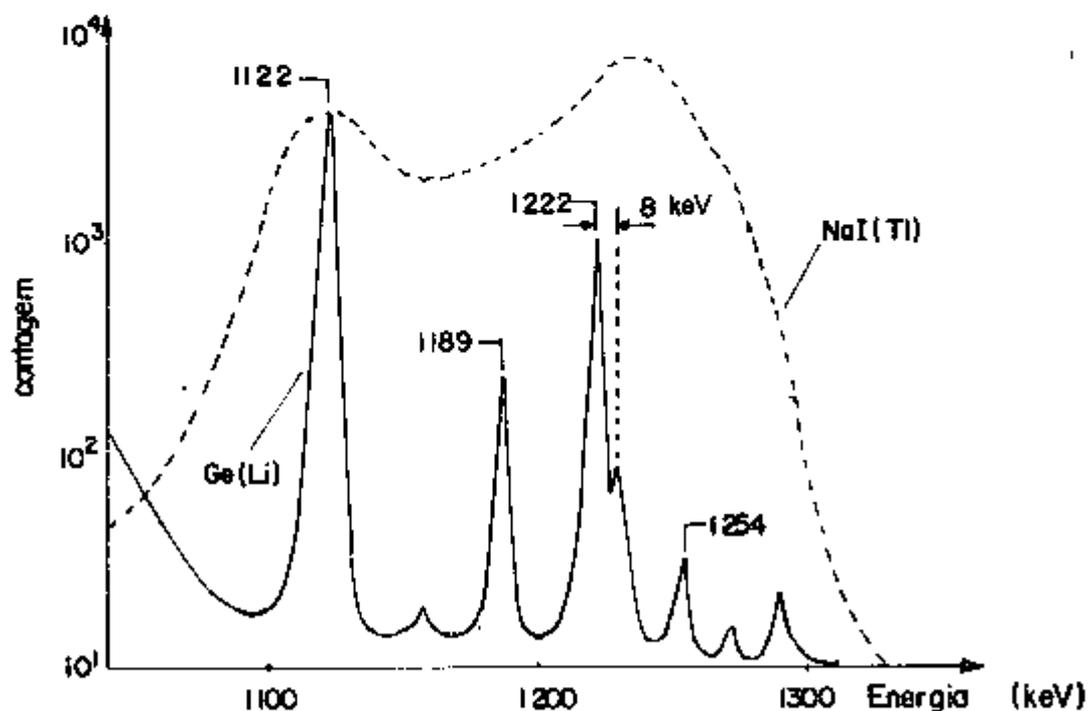


Figura II.5- Espectros de uma Única Fonte (Ta-182) Mostrando a Alta Resolução do Ge(Li) em Comparação com o NaI(Tl) <sup>(29)</sup>.

$$\omega = \int_0^t \phi(t') dt' \quad (32,30) \quad (II.1)$$

Desse modo, no lugar de escrevermos as equações de consumo de U-235, U-238, formação e consumo de Pu-239 em função do tempo, as escrevemos em função de  $\omega$ , conforme demonstrado por Soares, A. J. (30).

$$Q_{25}(\omega) = N_{25}^{(0)} \left[ 1 - e^{-\bar{\sigma}_{a25}\omega} \right] \quad (II.2)$$

$$Q_{28}(\omega) = N_{28}^{(0)} \left[ 1 - e^{-\bar{\sigma}_{a28}\omega} \right] \quad (II.3)$$

$$F_{49}(\omega) = N_{28}^{(0)} \frac{\bar{\sigma}_{c28}}{\bar{\sigma}_{a28}} \left[ 1 - e^{-\bar{\sigma}_{a28}\omega} \right] \quad (II.4)$$

$$Q_{49}(\omega) = N_{28}^{(0)} \frac{\bar{\sigma}_{c28} \bar{\sigma}_{a49}}{\bar{\sigma}_{a49} - \bar{\sigma}_{a28}} \left[ \frac{1 - e^{-\bar{\sigma}_{a28}\omega}}{\bar{\sigma}_{a28}} - \frac{1 - e^{-\bar{\sigma}_{a49}\omega}}{\bar{\sigma}_{a49}} \right] \quad (II.5)$$

II.4 - CÁLCULO DE  $\omega$

Seja x um nuclídeo produto de fissão radioativo usado como monitor de fissão, que tenha taxas de formação por fissão do U-235, Pu-239 e U-238 conhecidas, que serão representadas por  $Y_1, Y_2$  e  $Y_3$  respectivamente. Admitindo inicialmente que não há decaimento nem consumo do nuclídeo x durante a permanência do elemento combustível no caroço do reator, a densidade atômica ( $N_x$ ) desse nuclídeo no instante da retirada do elemento combustível do caroço do reator, após um período de irradiação  $t'$ , pode ser calculada pela equação:

$$N_x(\omega) = N_{25}^{(0)} \frac{\bar{\sigma}_{f25}}{\bar{\sigma}_{a25}} Y_1 \left[ 1 - e^{-\bar{\sigma}_{a25}\omega} \right] + N_{28}^{(0)} \frac{\bar{\sigma}_{c28} \bar{\sigma}_{f49}}{\bar{\sigma}_{a49} - \bar{\sigma}_{a28}} Y_2 \left[ \frac{1 - e^{-\bar{\sigma}_{a28}\omega}}{\bar{\sigma}_{a28}} - \frac{1 - e^{-\bar{\sigma}_{a49}\omega}}{\bar{\sigma}_{a49}} \right] + N_{28}^{(0)} \frac{\bar{\sigma}_{f28}}{\bar{\sigma}_{a28}} Y_3 \left[ 1 - e^{-\bar{\sigma}_{a28}\omega} \right] \quad (II.6)$$

O elemento combustível do reator IEA-R1 é constituído de  $M$  placas formadas por uma liga de urânio e alumínio, revestida de alumínio (ítem III.1). Submetendo esse elemento a um fluxo de nêutrons durante um intervalo de tempo  $t'$ , de modo que:

$$\int_0^t \phi(t') dt' = \omega$$

depois de ser retirado do caroço, cada nuclídeo produto de fissão formado apresentará uma atividade  $A$  dada por:

$$A = A_0 e^{-\lambda t_r} \quad (II.7)$$

onde:

$\lambda$  é a constante de decaimento e  
 $t_r$  é o tempo de resfriamento.

Essa atividade,  $A$ , pode ser determinada em relação ao número de contagens,  $C$ , obtida no sistema de detecção:

$$C = d.A \quad (II.8)$$

O fator de proporcionalidade  $d$  é chamado coeficiente de detecção. A atividade,  $A$ , medida pode ser substituída pela densidade atômica,  $R$ , do elemento detectado:

onde

$$A = \lambda R \quad (II.9)$$

então das equações II.8 e II.9, temos:

$$C = d\lambda R \quad (II.10)$$

sendo

$$R = R_0 e^{-\lambda t_r} \quad (II.11)$$

das equações II.10 e II.11 temos:

$$C = d\lambda R_0 e^{-\lambda t_r} \quad (II.12)$$

O valor de  $\underline{d}$  é dependente do tipo do sistema de detecção e da eficiência desse sistema, e pode variar de uma substância radioativa para outra<sup>(19)</sup>.

Neste trabalho admitiu-se inicialmente, como constantes em todas as placas a densidade atômica inicial,  $R_0$ , do produto de fissão escolhido como monitor e o fator de transmissão ( $F_T$ ) de uma placa do elemento combustível. Assim  $\underline{d}$  pode ser escrito como:

$$d = \lambda \epsilon F_{ab} F_R \sum_{i=1}^M (F_T)^{i-1} \cdot \eta_i \cdot a_i \quad (II.13)$$

onde:

- $\lambda$  = espessura de uma placa do elemento combustível
- $\epsilon$  = fração de emissão gama na energia considerada
- $F_{ab}$  = fator de autoabsorção de raios gama (para parte ativa da placa)
- $F_R$  = fator de transmissão de raios gama, de uma das faces do revestimento da parte ativa
- $\eta_i$  = eficiência global do sistema de detecção para a  $i$ -ésima placa
- $a_i$  = área, da  $i$ -ésima placa, definida pelo ângulo sólido de detecção
- $(F_T)^{i-1}$  = fator de transmissão de raios gama para a  $i$ -ésima placa, pelo fato de haver  $i-1$  placas sobre ela

então das equações II.12 e II.13, temos que a contagem,  $C$ , obtida durante um tempo  $T$  (desprezível em relação à meia vida do produto de fissão) é dada por:

$$C = \lambda R_0 e^{-\lambda t} T \lambda \epsilon F_{ab} F_R \sum_{i=1}^M (F_T)^{i-1} \eta_i a_i \quad (II.14)$$

portanto, a densidade atômica,  $R_0$ , do nuclídeo produto de fissão no instante da retirada do elemento combustível do caroço é calculada por:

$$R_0 = \frac{C}{\lambda e^{-\lambda t} T \lambda \epsilon F_{ab} F_R \sum_{i=1}^M (F_T)^{i-1} \eta_i a_i} \quad (II.15)$$

Convém frisar que, no valor da densidade atômica do produto de fissão escolhido,  $R_0$ , está implícita a depleção desse nuclídeo por decaimento e absorção de nêutrons, durante a permanência do elemento combustível no caroço. É que no cálculo de  $N_x$  dado na equação II.6 consideramos que não havia decaimento nem consumo do nuclídeo escolhido durante a permanência do elemento combustível no caroço do reator.

Dependendo do período de irradiação, e do produto de fissão escolhido, podemos desprezar seu consumo durante a irradiação<sup>(30)</sup> e relacionar  $R_0$  com  $N_x$ , segundo a expressão:

$$N_x = f_c R_0 \quad (\text{II.16})$$

Onde  $f_c$  é um fator de correção para o decaimento, do produto de fissão, ocorrido durante a irradiação. Essa afirmação é válida para este trabalho, pois o produto de fissão escolhido como monitor de queima foi o Cs-137 e sua secção de choque de absorção de nêutrons é desprezível ( $\sigma_a(2200\text{m/s}) = 0,11 \pm 0,03$  barns e  $RI(\text{integral de ressonância}) = 0,3 \pm 0,3$  barns<sup>(18)</sup>).

Em resumo, para obter o valor de  $\omega$ , as etapas são as seguintes:

- 1) determinar o valor dos parâmetros que influem no cálculo de  $R_0$ ;
- 2) calcular  $R_0$ ;
- 3) determinar  $f_c$  e então calcular  $N_x$ ;
- 4) com o valor de  $N_x$ , calcular  $\omega$ .

E finalmente com o valor de  $\omega$ , calcular a queima dos elementos combustíveis estudados.

O valor de  $\omega$  é usado como artifício para calcular a queima porque o valor da queima não é devido apenas à fissão, mas também à transformação do urânio em plutônio por absorção de nêutrons. Além disso o Cs-137 produzido é devido a fissão do U-235, U-238 e Pu-239.

### III. PARTE EXPERIMENTAL

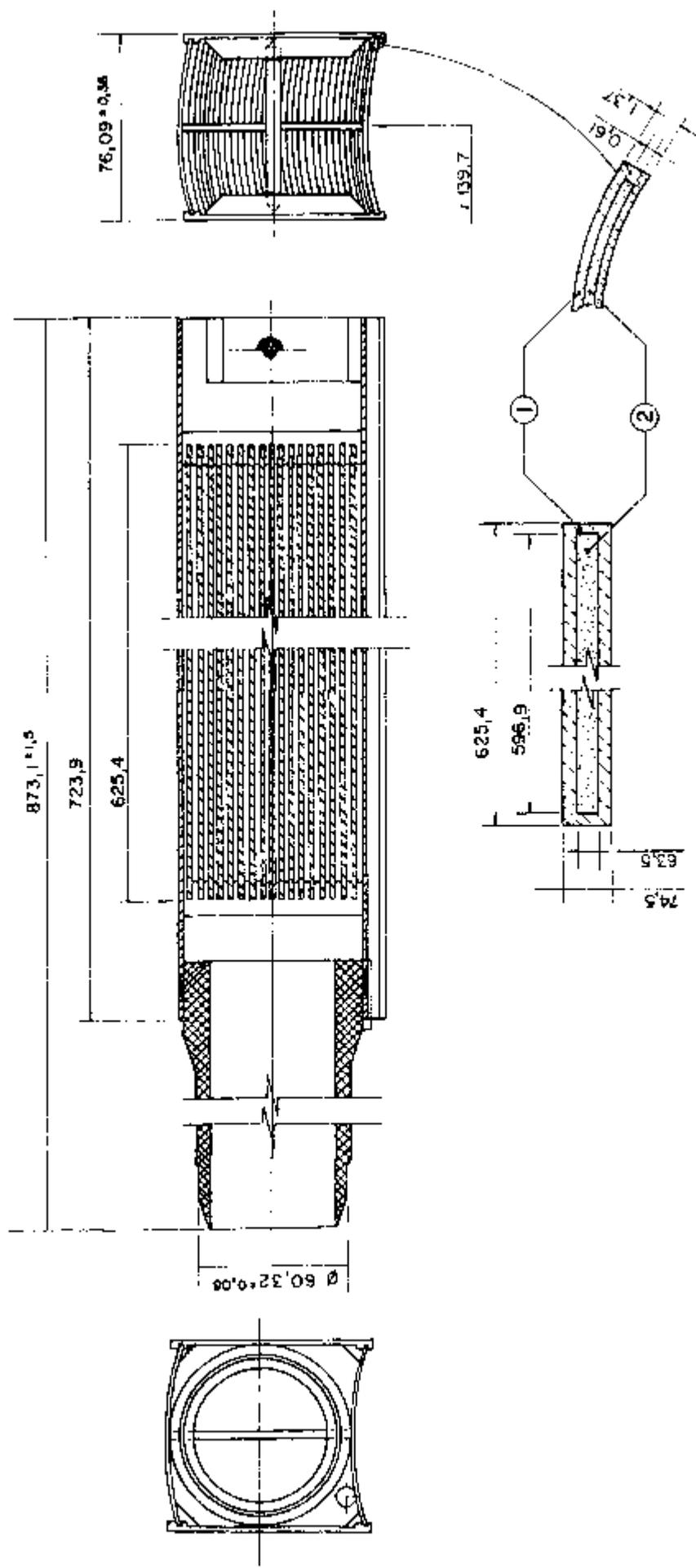
#### III.1- DESCRIÇÃO DOS ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS UTILIZADOS

Neste trabalho foram utilizados três elementos combustíveis usados do reator IEA-R1: IEA-14, 80 e 89. Esses elementos são do tipo M.T.R. (Material Testing Reactor), têm placas do tipo sanduíche, nas quais a liga urânio-alumínio é encamisada por duas placas de alumínio. O elemento combustível IEA-14 (Figura III.1) possui 19 placas curvas, e os outros dois elementos possuem, cada um, 18 placas planas e paralelas (Figura III.2). Na Tabela III.1 são apresentados dados de fabricação e utilização desses elementos.

#### III.2- SISTEMAS UTILIZADOS

Na realização deste trabalho foram utilizados dois sistemas de medidas: sistema I(S.I) e sistema II(S.II). O S.I foi montado para medida de elementos combustíveis que apresentam baixa atividade, de tal modo que permitam seu manuseio sem necessidade de blindagem para fins de proteção radiológica. O S.II. foi montado para medida de elementos que apresentam uma atividade tal que não permite que sejam manipulados fora da piscina sem blindagem para fins de proteção radiológica. Por essa razão os elementos medidos em S.II. não foram tirados da piscina do reator, tendo que ficar, no mínimo, a 1,5 metro abaixo da superfície da água.

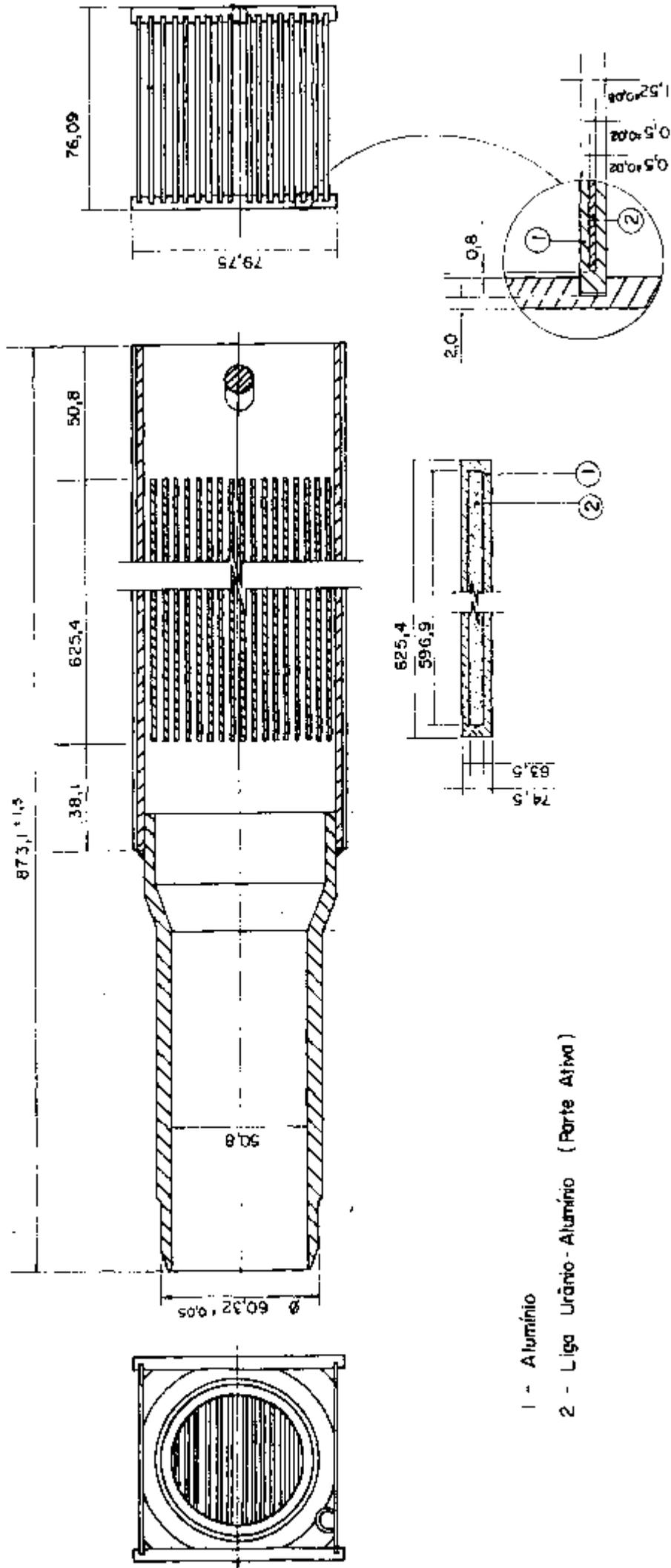
Os dois sistemas são compostos de uma montagem mecânica e de um detector Ge(Li) com o equipamento eletrônico associado. O detector Ge(Li) e o equipamento eletrônico são comuns aos dois sistemas. A Figura III.3 apresenta uma foto do S.I; a figura III.4 apresenta uma foto com detalhes da montagem mecânica do S.I e a Figura III.5 apresenta uma foto da montagem mecânica do S.II. As Figuras III.6, III.7 e III.8 apresentam os esquemas das montagens mecânicas dos S.I e S.II e do equipamento eletrônico associado, respectivamente.



1 - Alumínio

2 - Liga Urânio-Alumínio (Parte Ativa)

Figura III.1.1- Elemento Combustível Padrão de Placas Curvas do Tipo M.T.R.  
Dimensões em mm



- 1 - Alumínio
- 2 - Liga Urânio-Alumínio (Parte Ativa)

Figura III.2- Elemento Combustível Padrão de Placas Planas do Tipo M.T.R.  
 Dimensões em mm

Elemento	DADOS DE FABRICAÇÃO			DADOS DE UTILIZAÇÃO			
	Enriquecimento	Massa Inicial de U-235 (g)	Massa Inicial Total de U(g)	Data de Entrada no Carço	Data de Saída do Carço	Massa Final de U-235 (g) (**)	Massa Final Total de U(g) (**)
EA-14	20 %	157,38	804,27	28/08/1958	19/12/1958	157,37	804,26
EA-80	93 %	187,28	201,05	08/10/1968	17/01/1977	126,17	149,23
EA-89	93 %	187,04	200,79	11/11/1969	07/07/1980	123,40	146,87

Tabela III.1 - Dados de Fabricação e Utilização dos Elementos Estudados(\*).

\* - os dados de fabricação e utilização dos elementos combustíveis estudados foram fornecidos pelo COURP/ADMRP(Centro de Operação e Utilização do Reator de Pesquisa - Área de Operação e Manutenção do Reator de Pesquisa).

\*\* - calculados pelo método indireto de energia térmica, pelo COURP/ADMRP.

A montagem mecânica, do S.I., utilizado no primeiro andar do prédio do reator IEA-R1, possui:

- blindagem de chumbo, para evitar que o operador fique sujeito à radiação;
- um carrinho que pode deslocar-se longitudinal e transversalmente;
- um colimador que é constituído de anéis sobrepostos (Figura III.6), para minimizar a detecção de radiação espalhada e assim definir uma boa geometria de detecção;
- escalas, que foram fixadas usando o centro da placa do elemento combustível como referência para as posições das medidas.

Para a fixação das escalas teve-se o seguinte procedimento: marcou-se no carrinho a posição do centro da placa do elemento combustível e traçou-se, passando por esse ponto, uma linha correspondente à linha central da placa. Passou-se através do colimador uma barra circular de alumínio, fazendo-a incidir sobre o ponto marcado. O zero das escalas tem como referência esse ponto que dá a posição central da placa. Depois deslocou-se o carrinho longitudinalmente, verificando se a barra de alumínio incidia sobre a linha traçada, confirmando assim o alinhamento ao locomover o carrinho.

O sistema de detecção é fixo, movimentando-se apenas o carrinho que transporta o elemento. Ele é colocado sobre uma placa de lucite para evitar atrito com o carrinho e possível contaminação.

O S.II. foi usado na sala do reator no terceiro andar do prédio. A sua montagem mecânica e o detector  $\text{Ce}(\text{Li})$  foram colocados na ponte móvel da piscina do reator e as unidades eletrônicas associadas foram colocadas ao lado da piscina. A montagem mecânica possui:

- um suporte de alumínio fixado a 2,17 metros abaixo da ponte;
- uma bandeja de alumínio, que é colocada sobre o suporte fixo. O elemento combustível é colocado sobre ela de modo a efetuar movimentos ao longo do suporte fixo;

- um carrinho colocado sobre a ponte da piscina. Sobre ele é colocado o detector Ge(Li) e fixado o colimador. Ele pode efetuar movimentos transversais em relação ao suporte fixo;
- um colimador composto de um tubo de alumínio de 2,09 metros de comprimento e 15,4 milímetros de diâmetro interno, com um cilindro de chumbo de 130 milímetros de diâmetro por 100 milímetros de altura na base, e com um cilindro de chumbo de 100 milímetros de diâmetro por 50 milímetros de altura no topo. O tubo é vedado na base com lucite para impedir a entrada de água;
- escalas, fixas com o zero referente ao centro da placa do elemento combustível.

Para a fixação das escalas teve-se o seguinte procedimento: para evitar atrito do elemento combustível com a bandeja de alumínio e para facilitar seu uso, o elemento foi colocado numa caixa de alumínio com o mesmo formato e tamanho de sua seção reta (Figura III.7). Na parte central dessa caixa foi colocada uma plaqueta de alumínio com três furos alinhados. Um furo central correspondente à posição do centro da placa do elemento e os outros dois, equidistantes 25 milímetros do furo central, correspondendo à posição de cada uma das outras duas linhas a serem medidas. A caixa foi colocada na bandeja de alumínio que se encontrava sobre o trilho fixo. Passou-se através do colimador ainda aberto, uma barra circular de alumínio, fazendo-a insidir sobre o furo central da plaqueta. As escalas foram fixadas, com os seus zeros tendo como referência essa posição central, e o carrinho, no qual é fixo o colimador, foi deslocado de 25 milímetros para a esquerda e para a direita da posição central. Para cada uma dessas posições verificou-se que a barra de alumínio se encaixava no furo correspondente da plaqueta. Finalmente a plaqueta de alumínio foi retirada e o tubo do colimador foi vedado na base.

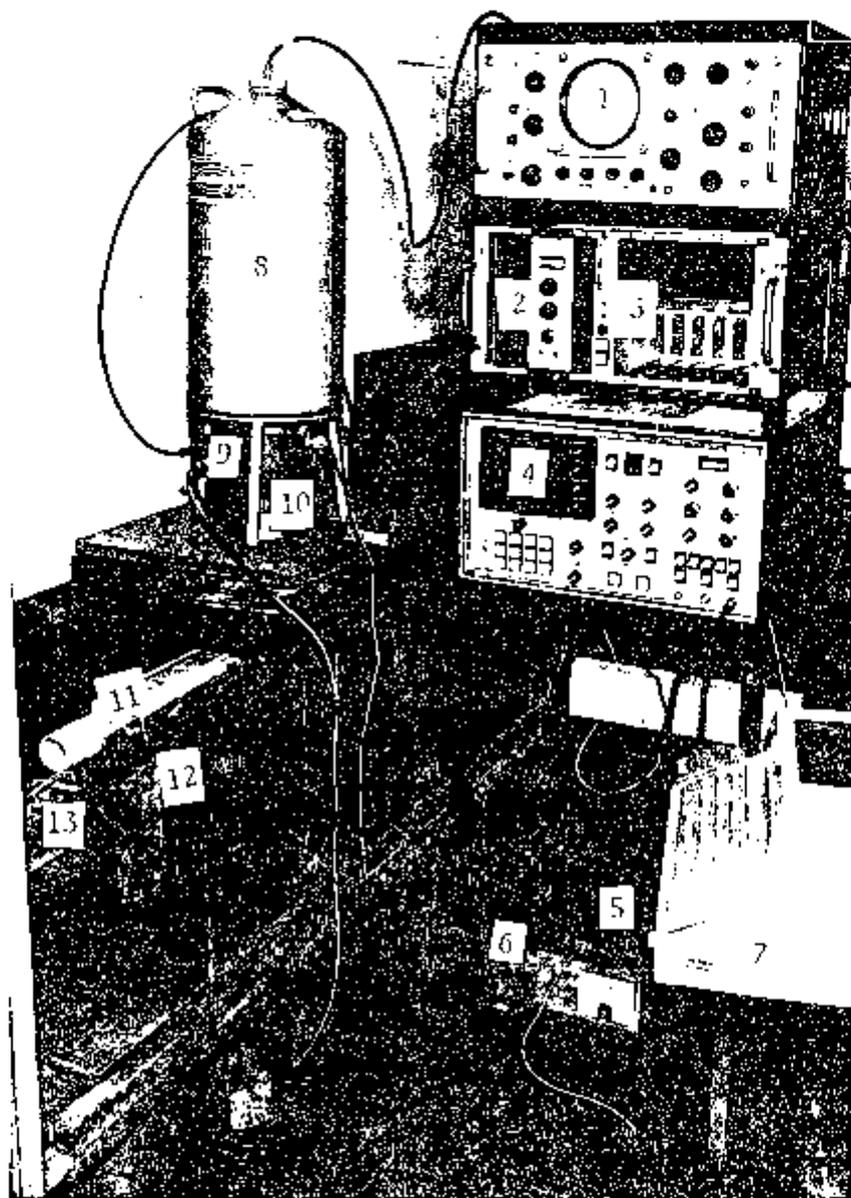


Figura III.3- Sistema 1 e Elemento Combustível IEA-14.

- 1 - Osciloscópio;
- 2 - Fonte de Alta Tensão;
- 3 - Alarme de Nível de  $N_2$  Líquido e de Vácuo no Cilindro de  $N_2$  do Conjunto do Detector  $Ge(Li)$ ;
- 4 - Analisador Multicanais;
- 5 - Fonte de Alimentação de 14V para o Prê-Amplificador;
- 6 - Protetor de Sub-Sobre Tensão;
- 7 - Teletipo;
- 8 - Conjunto: Detector  $Ge(Li)$  e Cilindro para Nitrogênio Líquido;
- 9 - Prê-Amplificador;
- 10 - Blindagem para o Detector;
- 11 - Elemento Combustível IEA-14;
- 12 - Blindagem do S.i.;
- 13 - Carrinho.

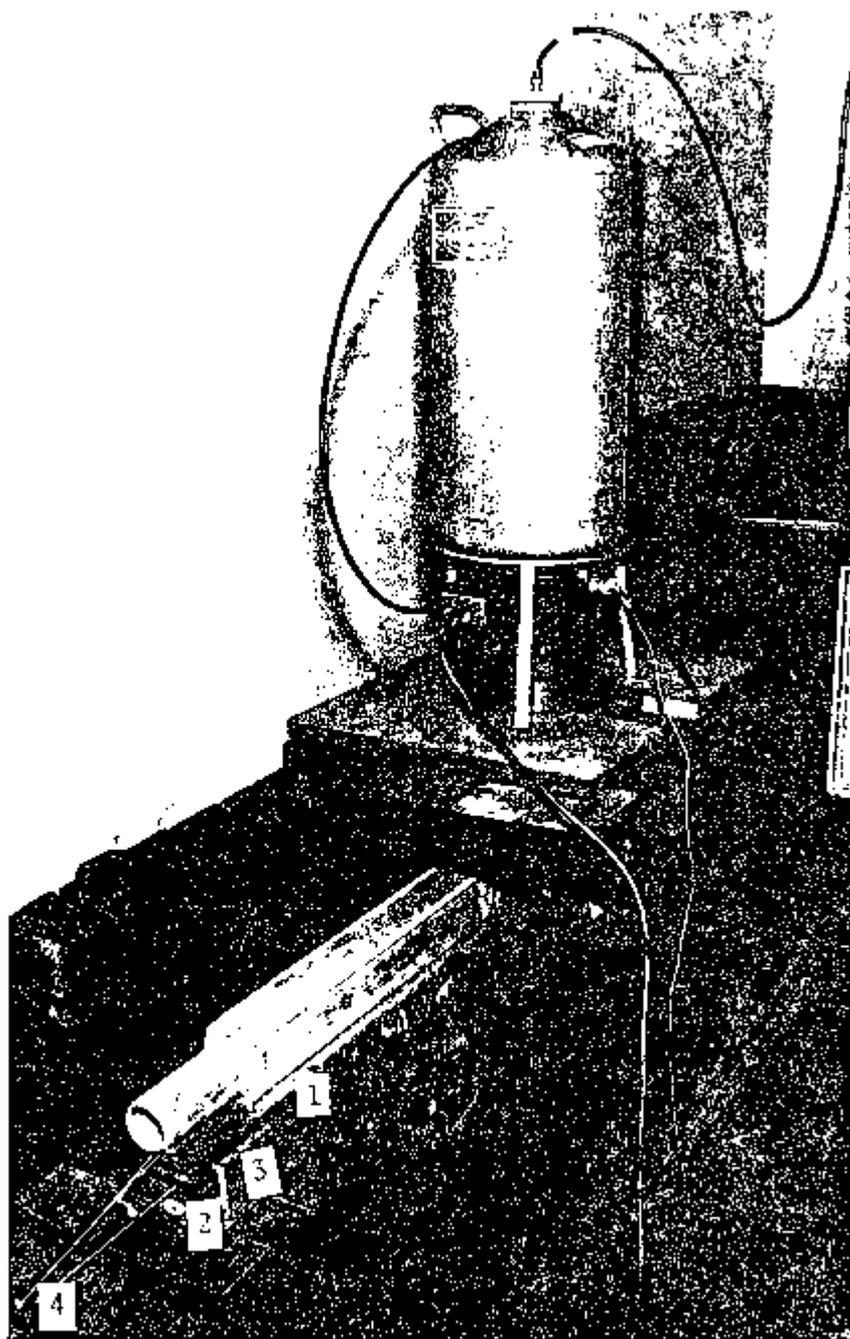


Figura III.4- Detalhes da Montagem Mecânica do S.I. Detector Ge(Li) e Elemento Combustível IEA-14.

- 1 - Escala para medir deslocamento longitudinal;
- 2 - Escala para medir deslocamento transversal;
- 3 - Carrinho;
- 4 - Roldana para a movimentação longitudinal do carrinho.

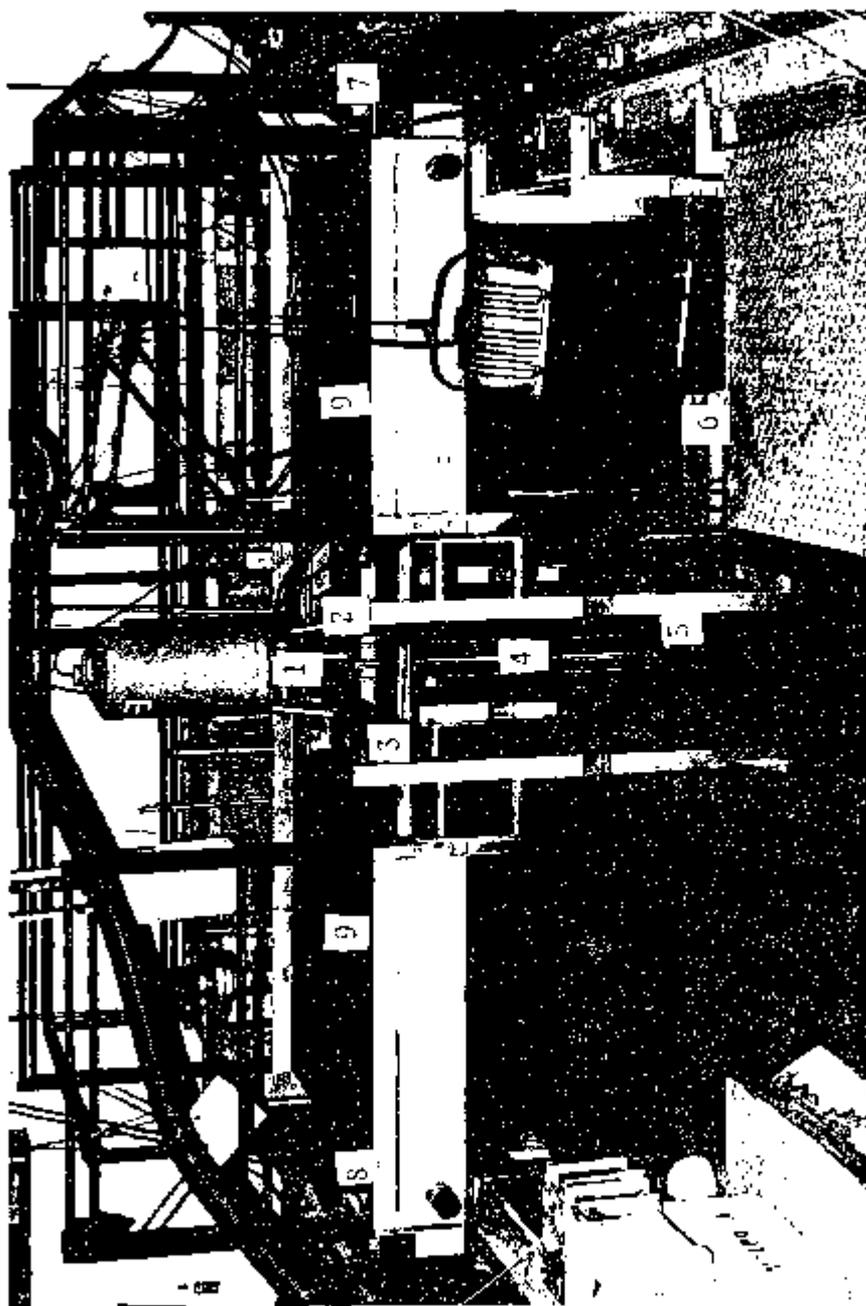


Figura III.5- Montagem Mecânica do S.IJ e Detector Ge(Li).

- 1 - Blindagem do detector;
- 2 - Carrinho;
- 3 - Escala para medir o deslocamento do carrinho(as escalas para medir o deslocamento do elemento combustível são fixas nos sarriños);
- 4 - Tubo de alumínio do colimador;
- 5 - Cilindro de chumbo do colimador;
- 6 - Trilho de alumínio (trilho fixo);
- 7 e 8 - Sarriños;
- 9 - Cabo de aço para movimentação do elemento combustível.

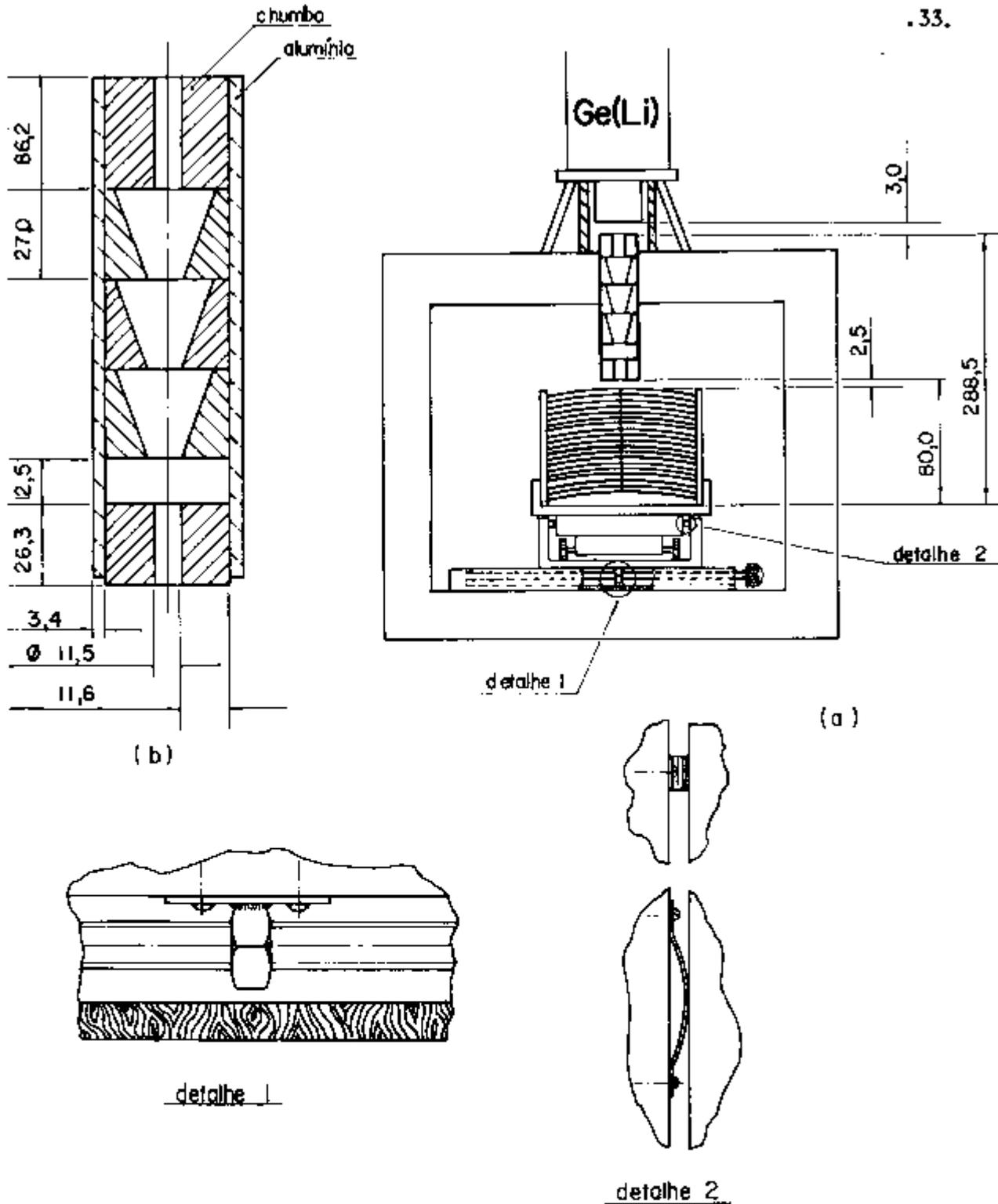


Figura III.6- Montagem mecânica do S.I.

- a) vista da montagem com elemento IEA-14 sobre o carrinho;  
 Detalhe 1- Rosca sem-fim para movimentação transversal do elemento;  
 Detalhe 2- Mola para fixar a posição do carrinho.
- b) colimador.

Dimensões em mm

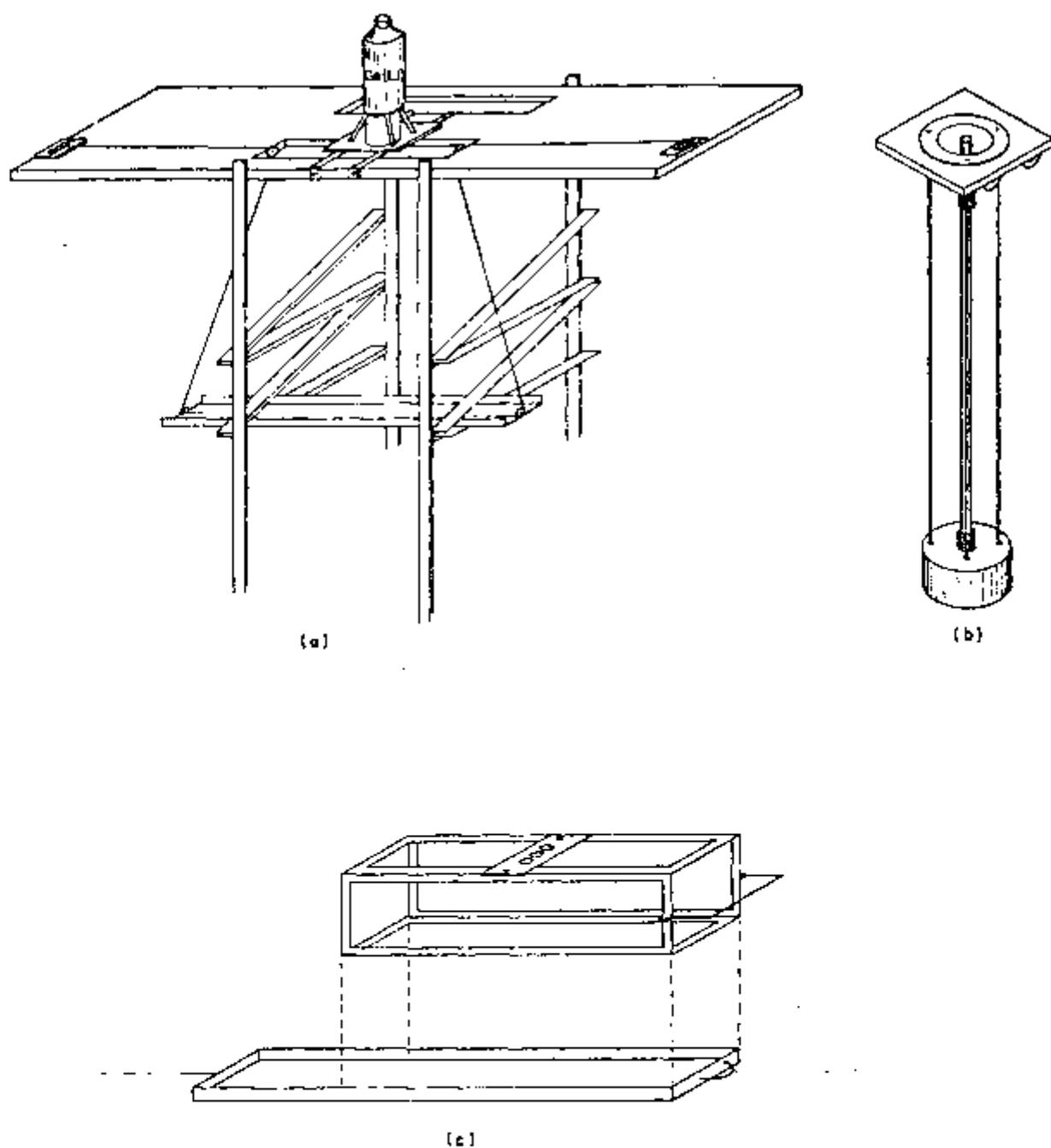


Figura III.7- Montagem Mecânica do S.II.

- a) Posicionamento da montagem na ponte móvel;
- b) Carrinho suporte do detector  $\text{Ge}(\text{Li})$  e o colimador;
- c) Bandeja de alumínio e caixa de alumínio para movimentação do elemento.

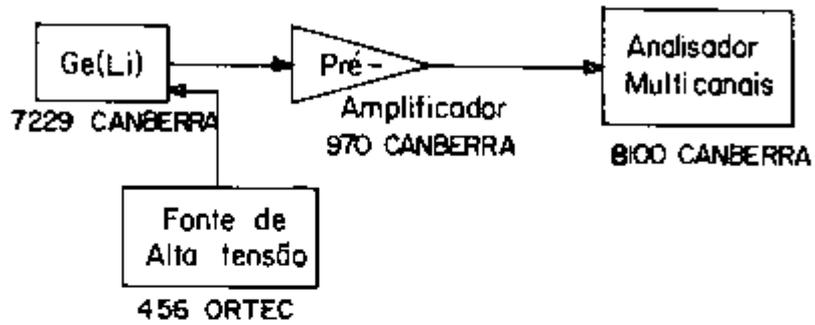


Figura III.8- Esquema do Detector Ge(Li) com o Equipamento Eletrônico Associado. Detector Ge(Li) :  
Volume = 73,7cm<sup>3</sup>.

### III.3- MEDIDAS

Neste trabalho foram realizadas medidas para mapeamento da densidade de Cs-137 nos elementos IEA-14 e 80. A calibração de S.I. e S.II. e medidas para obtenção de dados para cálculos dos parâmetros usados no cálculo da densidade de Cs-137 foram feitas usando-se fontes de raios gama calibradas pela Área de Física Nuclear do IPEN. Os detalhes dessas fontes são apresentados na Tabela III.2 .

Fonte	Atividade	Forma da Fonte	Diâmetro do Suporte ou da Fonte (mm)	Espessura do Suporte ou da Fonte (mm)
Cs-137	5,00 $\pm$ 5% $\mu$ Ci	Puntiforme	10,0(suporte)	1,0(suporte)
Cs-137	8,18 $\pm$ 5% $\mu$ Ci	Puntiforme	30,0(suporte)	0,2(suporte)
Co- 60	2,63 $\pm$ 5% $\mu$ Ci	Puntiforme	30,0(suporte)	0,2(suporte)
Ag-110m	21,69 $\pm$ 2% $\mu$ Ci	Circular	25,4(fonte)	0,15(fonte)

Tabela III.2- Fontes usadas neste trabalho. O suporte dessas fontes é de lucite.

#### III.3.1- MEDIDAS REALIZADAS NO S.I.

No S.I. foram realizadas várias medidas preliminares usando as fontes-padrão definidas acima. Foram feitas medidas detalhadas de atividade de Cs-137 do elemento combustível IEA-14, que por apresentar baixa dose de radiação (5mR/h a 40cm de distância) permitiu fácil manipulação e transporte. Devemos observar que medidas da atividade desse elemento foram realizadas anteriormente por Soares<sup>(30)</sup> usando um detector de NaI(Tl) de 2 polegadas de diâmetro. As medidas que foram realizadas no S.I. tiveram por finalidade:

- calibrar o sistema de detecção;
- obter dados para cálculo dos fatores  $F_T$ ,  $F_{ab}$ ,  $\eta_{ex}$ ,  $\eta$  e  $S$  (Apêndice I);

- obter dados para calcular a densidade de Cs-137 contida no elemento IEA-14, na sua retirada do caroço do reator, e conseqüentemente calcular sua queima.

#### - Calibração

O sistema de detecção foi inicialmente calibrado em energia usando-se uma fonte de Cs-137 e uma de Co-60 (Tabela III.3). Em todo início de operação foi verificada a calibração apresentada nessa Tabela. Para verificar a linearidade do sistema de detecção, foi feita uma interpolação linear com as energias extremas 661,6 keV e 1332,5 keV, que define para a energia 1172,7 o canal 587,97, que dentro da resolução do equipamento (1 canal) é igual ao canal 588 = medido. Desse modo o sistema foi considerado linear.

Nuclídeo	Energia de Referência (keV) (23)	Energia Definida no Analisador (keV)	Canal
Cs-137	661,62 ± 0,15	661,6	332
	1172,7 ± 0,4	1172,8	588
	1332,5 ± 0,3	1332,5	668

Tabela III.3- Dados de Calibração do Sistema de Detecção de Raios Gama.

#### - Fator de Transmissão ( $F_T$ )

Para calcular o  $F_T$  e verificar se é constante para todas as placas do elemento combustível IEA-14, foram realizadas medidas usando as fontes de Cs-137 e o elemento IEA-14. A maneira como foram realizadas essas medidas está esquematizada nas Figuras III.9 e III.10 e descrita a seguir:

- como não se pode desmontar o elemento IEA-14 por motivos de salvaguarda, o fator de transmissão por placa foi calculado usando-se o valor de contagens obtidos devido a uma fonte posicionada entre as placas do elemento. O cálculo do fator de transmissão é feito usando-se a equação:

$$e^{-ky} = \frac{C_{f+e} - C_e}{C_f}$$

onde

- $e^{-ky}$  - fator de transmissão para k placas sobre a fonte  
 $C_{f+e}$  - contagem devido a fonte e o elemento (fonte entre as placas do elemento)  
 $C_e$  - contagem devido ao elemento  
 $C_f$  - contagem devido a fonte

Nas contagens feitas sã com a fonte de  $5\mu\text{Ci}$ , foi utilizado um suporte de lucite que permitiu o mesmo posicionamento da fonte, em relação ao detector, de quando foram feitas contagens com a fonte e o elemento combustível. As medidas foram realizadas colocando essa fonte em quatro posições (Figuras III.9 e III.10):

- entre a primeira e segunda placa ( $P_{1,2}$ );  $P_{7,8}$ ,  $P_{13,14}$  e sob as dezenove placas.

Pelo fato do elemento IEA-14 (Figura III.1) ter um suporte central para as placas, foi necessário colocar a fonte de Cs-137 entre as placas numa posição deslocada 10,0 milímetros da linha central, na transversal, e no centro da placa longitudinalmente (Figura III.9).

Os resultados das medidas de atenuação obtidos com a fonte de Cs-137 de  $5\mu\text{Ci}$  foram verificados com uma fonte de  $8,18\mu\text{Ci}$  (Tabela III.2), colocada sob as dezenove placas, Figura III.9.

Medidas na direção perpendicular ao suporte central foram feitas na posição central do elemento (Figura III.11) para avaliar a variação da concentração do Cs-137 placa a placa.

#### - Fator de Auto-Absorção ( $F_{ab}$ )

O  $F_{ab}$  é calculado usando-se o valor obtido para o  $F_T$  (fator de transmissão para uma placa do elemento combustível) e o valor obtido para o  $F_r$  (fator de transmissão de raios gama de uma das faces do revestimento da parte ativa). O  $F_r$  é calculado (Apêndice I)

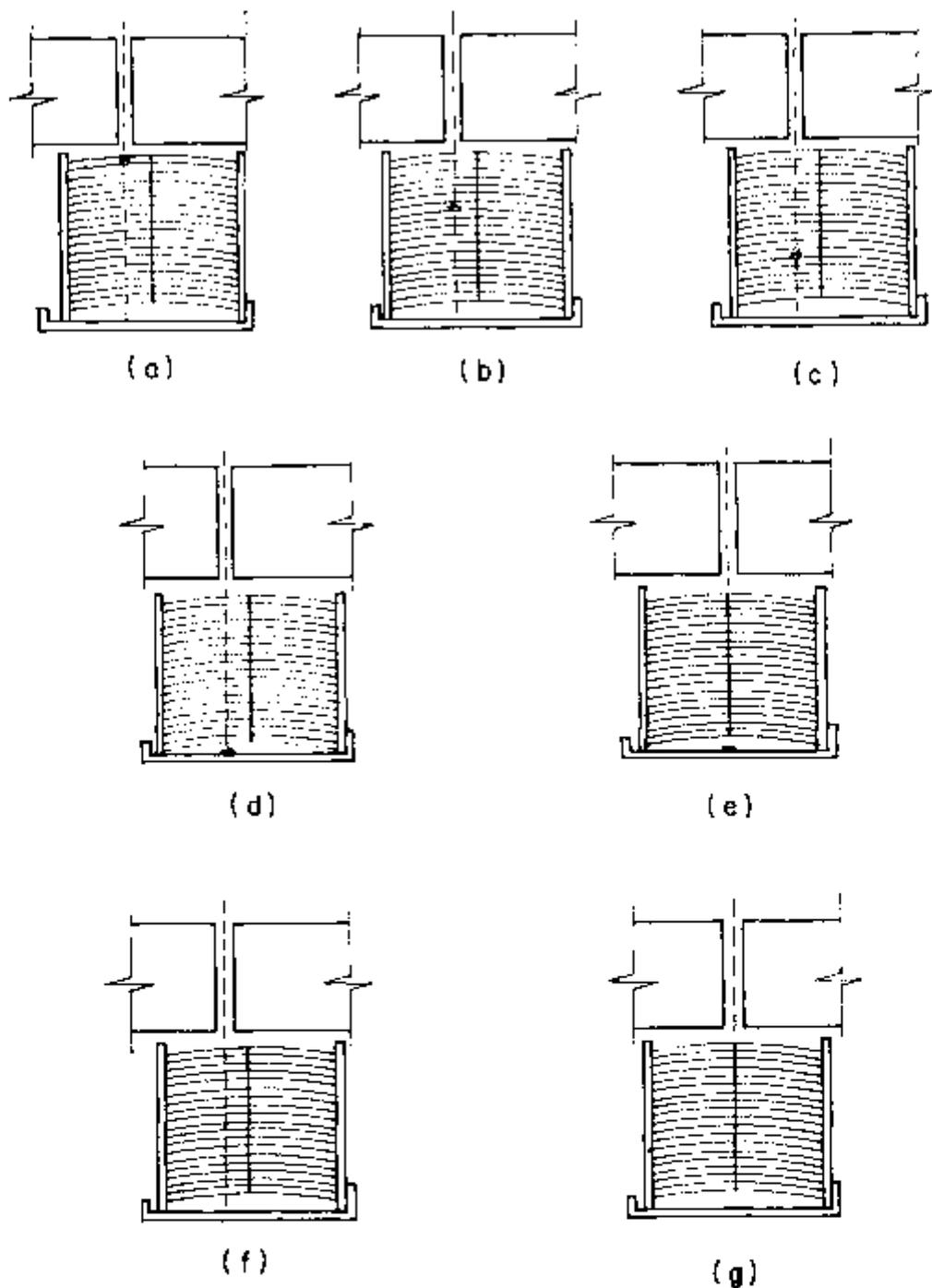


Figura III.9- Esquema das Medidas Realizadas com as Fontes de Cs-137 e o Elemento IEA-14.

- a;b;c;d- medidas feitas com a fonte de Cs-137 de  $5\mu\text{Ci}$  nas posições P<sub>1,2</sub>; P<sub>7,8</sub>; P<sub>13,14</sub> e sob as dezoito placas respectivamente, com o elemento deslocado 10,0mm da posição central;
- e- medidas feitas com as duas fontes de Cs-137 sob as dezoito placas, na posição central;
- f- medidas feitas só com o elemento deslocado 10,0mm da posição central;
- g- medidas feitas só com o elemento na posição central.

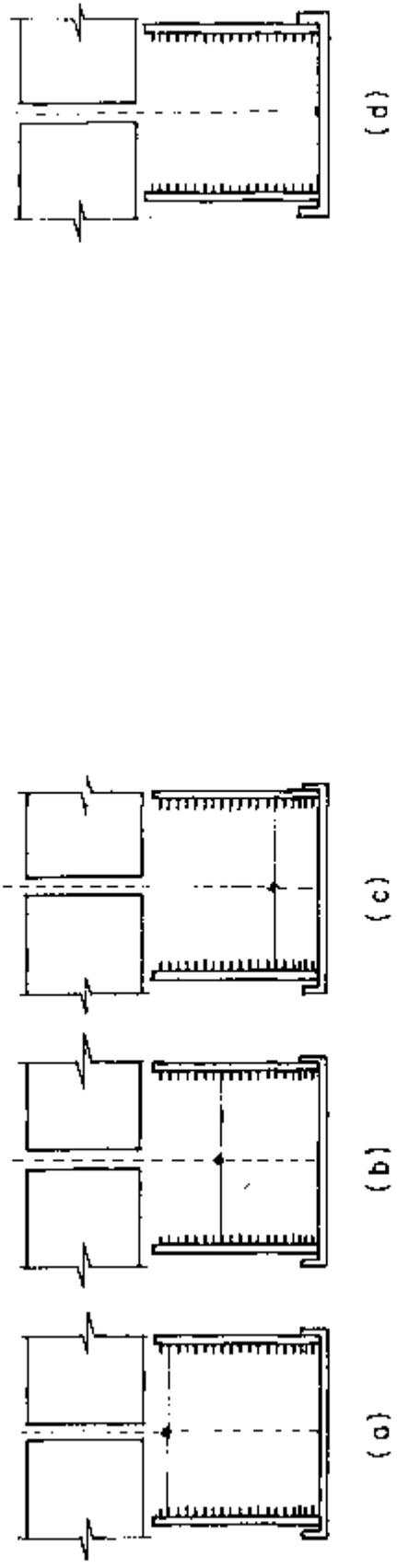


Figura III.10- Esquema das Medidas Realizadas com as Fontes de Cs-137 sobre o Suporte de Lucite.

a;b;c- medidas feitas com a fonte de Cs-137 de 5 $\mu$ Ci nas posições P<sub>1,2</sub>; P<sub>7,8</sub>;P<sub>13,14</sub> respectivamente.

d- medidas feitas com as duas fontes de Cs-137 na posição sob as dezenove placas.

com dados fornecidos pelo fabricante do elemento IEA-14 e dados de referência.

- Eficiência Intrínseca do S.I ( $\eta_{ex}$ )

A eficiência intrínseca, definida como gama contado por gama que atinge o detector, foi calculada para o S.I usando o detector Ge(Li) com a finalidade de se comparar com a eficiência intrínseca do sistema usando detector de NaI(Tl), determinada por Soares<sup>(30)</sup>.

- Eficiência Global do S.I ( $\eta$ )

A eficiência global, definida como gama contado por gama emitido, foi calculada para as posições de cada placa do elemento na geometria utilizada para todas as medidas realizadas. Essa eficiência foi calculada usando-se resultados das medidas feitas com a fonte de Ag-110m que foi colocada sobre o suporte de lucite de modo a ocupar as posições:

- a) da primeira placa;
- b) da nona placa;
- c) da décima sétima placa, respectivamente.

Para isso desbastou-se na superfície da placa de lucite na posição a ser ocupada pela fonte uma espessura igual a da fonte (Figura III.11).

- Densidade de Cs-137

A densidade de Cs-137 contida nos elementos combustíveis, é calculada usando-se a razão de contagens devido aos raios gama emitidos por esses elementos (eq. II.15). As razões de contagens devido ao Cs-137 contido no elemento IEA-14, foram obtidas em uma série de pontos igualmente espaçados, deslocando o elemento longitudinal e transversalmente em relação ao eixo do colimador (Figura III.12).

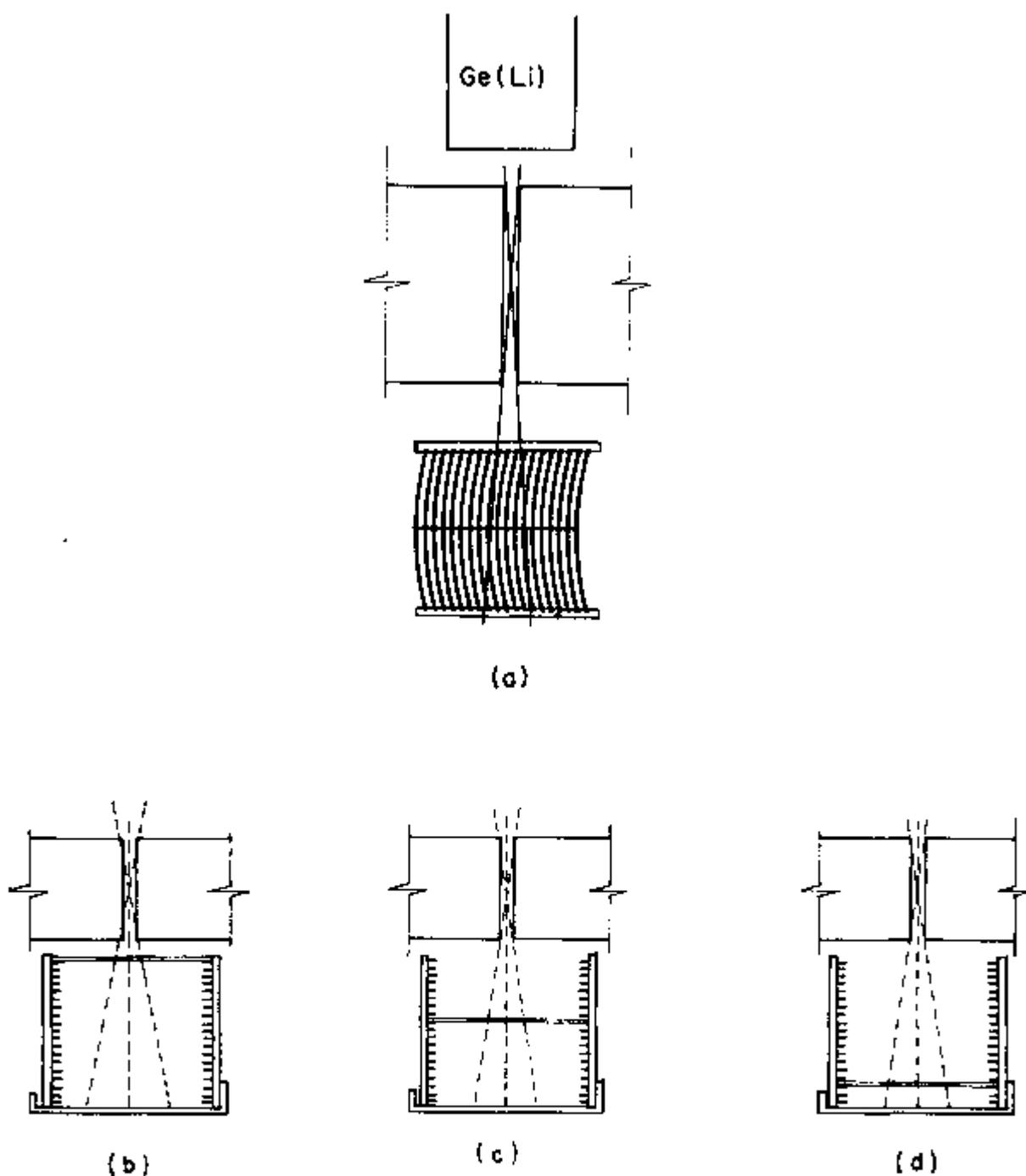


Figura III.11- Esquema de Medidas Realizadas com o Elemento IEA-14 e com a fonte de Ag-110m.

- a- medida com o elemento para avaliar a concentração de Cs-137 placa a placa;
- b;c;d- medidas com a fonte de Ag-110m na posição da primeira placa, da nona placa e da décima sétima placa respectivamente.

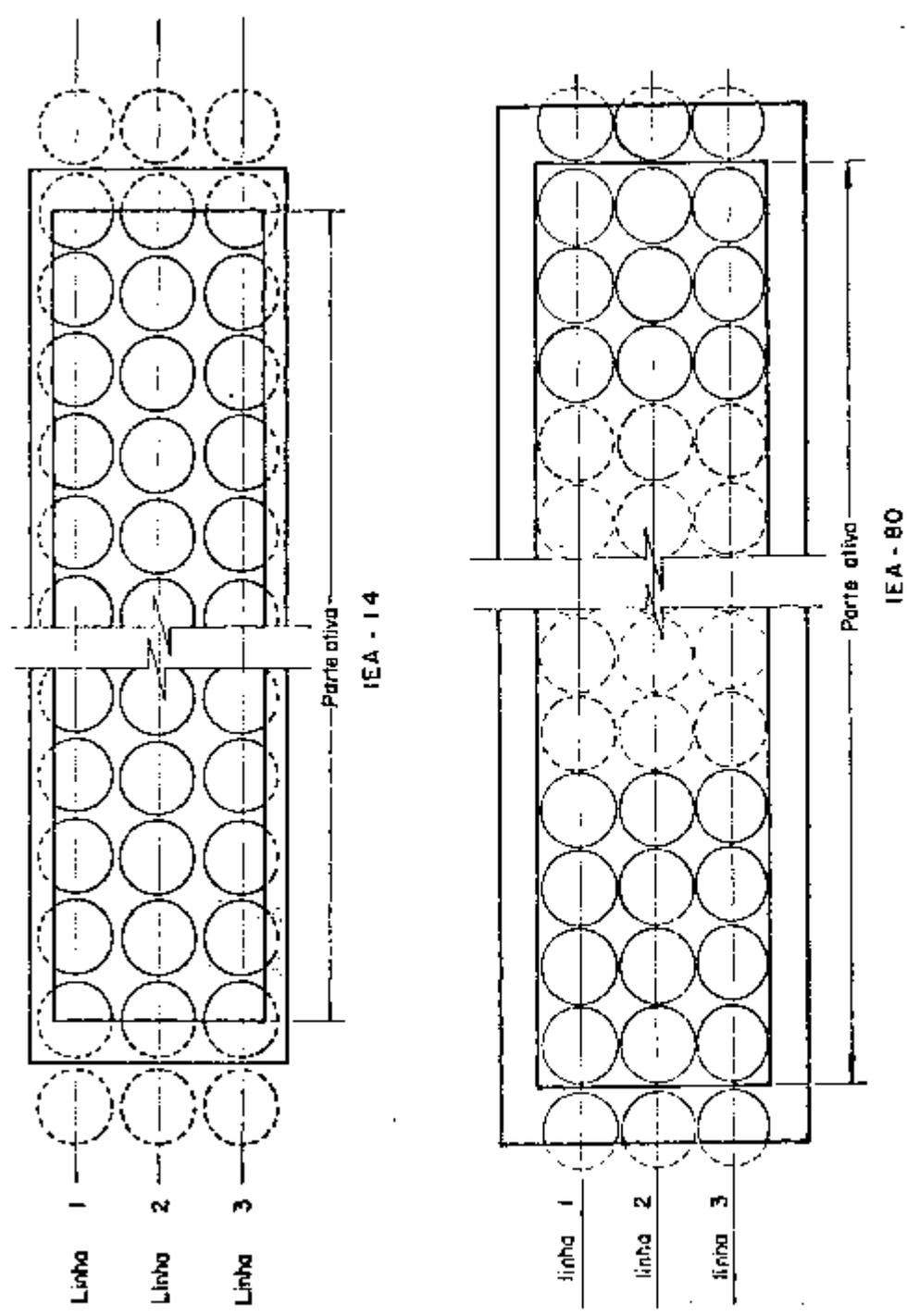


Figura III.12- Esquema das Medidas Realizadas com os Elementos Combustíveis IEA-14 e IEA-80.

Projeções das áreas "vista" pelo detector sobre a última placa dos elementos.

- Fator de Similaridade (S)

Pela impossibilidade de determinar a eficiência do S.II., pois para isso era necessário uma fonte muito ativa e seu manuseio seria difícil, as medidas obtidas em S.II tiveram de ser corrigidas para que ficassem como se tivessem sido obtidas em S.I. Para isso foi calculado um fator de correção, denominado fator de similaridade, usando medidas feitas em vários pontos do IEA-14 nos dois sistemas de medidas.

III.3.2- MEDIDAS REALIZADAS NO S.II

Foi verificado que a relação entre a energia dos raios gama e o canal correspondente do analisador multicanais, obtida para o S.I.(Tabela III.2) se mantinha para o S.II. Essa calibração foi verificada todo início de operação. As medidas no S.II foram realizadas usando-se os elementos combustíveis IEA-14, 80 e 89 com a finalidade de:

- obter dados para cálculo do fator de similaridade;
- obter dados para cálculo da densidade de Cs-137 contida no elemento IEA-80;
- obter o espectro dos raios gama emitidos pelo elemento IEA-89.

- Fator de Similaridade (S)

Foram realizadas medidas de contagem com o IEA-14 com o objetivo de obter dados para cálculo do fator de similaridade. Dentro da precisão de posicionamento dos dois sistemas, essas medidas foram feitas nas mesmas posições do elemento no S.I e no S.II O fator de similaridade é dado por:

$$S = \frac{\text{Contagem obtida no S.I } (C_{SI})}{\text{Contagem obtida no S.II } (C_{SII})} \quad (III.1)$$

portanto

$$C_{S1} = S \cdot C_{S11} \quad (III.2)$$

A densidade de Cs-137 é conseqüentemente calculada usando-se as equações III.2 e II.15 respectivamente.

- Densidade de Cs-137

Como visto, o objetivo deste trabalho é a implantação de um sistema de medidas de queima de elementos combustíveis de alta atividade do reator IEA-R1. O sistema implantado, foi verificado usando-se o elemento IEA-80, no qual a distribuição da densidade de Cs-137 foi medida da mesma maneira que as medidas feitas com o elemento IEA-14 no S.1 (Figura III.12).

- Espectro dos Raios Gama Emitidos pelo Elemento IEA-89

Com o elemento IEA-89 só foi feita uma medida para obtenção do espectro dos raios gama emitidos pelos produtos de fissão existentes nesse elemento. Considerações de tempo não permitiram que medidas mais detalhadas fossem realizadas com esse elemento, pois para isso é necessário reduzir a razão entre o diâmetro e o comprimento do tubo do colimador para diminuir a eficiência do S.II.

## IV. ANÁLISE DOS RESULTADOS DAS MEDIDAS

No capítulo III foi descrito como foram realizadas as medidas e suas finalidades. Neste capítulo é apresentada a análise dos resultados, desde os espectros dos raios gama até o valor da queima dos elementos.

### IV.1- ESPECTROS DOS RAIOS GAMA DAS FONTES RADIOATIVAS E DOS ELE- MENTOS COMBUSTÍVEIS

A Figura IV.1 apresenta os espectros medidos da fonte de Cs-137 (Tabela III.2) e do elemento IEA-14. Como esperado os dois espectros são essencialmente iguais. Isso é devido ao fato de que o IEA-14 foi retirado do caroço 20 anos antes da realização das medas, assim dos produtos de fissão radioativos somente o Cs-137 está presente em quantidades significantes.

A Figura IV.2 mostra o espectro dos raios gama obtido na medda realizada usando a folha de prata ativada no reator IEA-R1. Comparação detalhada com o espectro da Ag-110m publicado <sup>(36)</sup> confirma que o espectro na Figura II.2 é devido ao decaimento da Ag-110m. A fonte de Ag-110m foi admitida homogênea (Apêndice I).

A Figura IV.3 mostra a distribuição de Cs-137 medida na linha transversal no centro do elemento IEA-14, Figura III.11a. Com base na Figura IV.3 podemos considerar constante a distribuição de Cs-137 por placa do elemento combustível.

No espectro dos produtos de fissão obtido para o elemento IEA-80 dado na Figura IV.4 notamos que o pico do Cs-137 é bem definido. As energias dos picos mais definidos são dadas junto com os prováveis emissores.

Comparando esse espectro com o obtido sem o elemento combustível concluimos que os emissores gama com \* são devidos a radiação de fundo. A identificação dos prováveis emissores foi baseada nas referências (9) e (36).

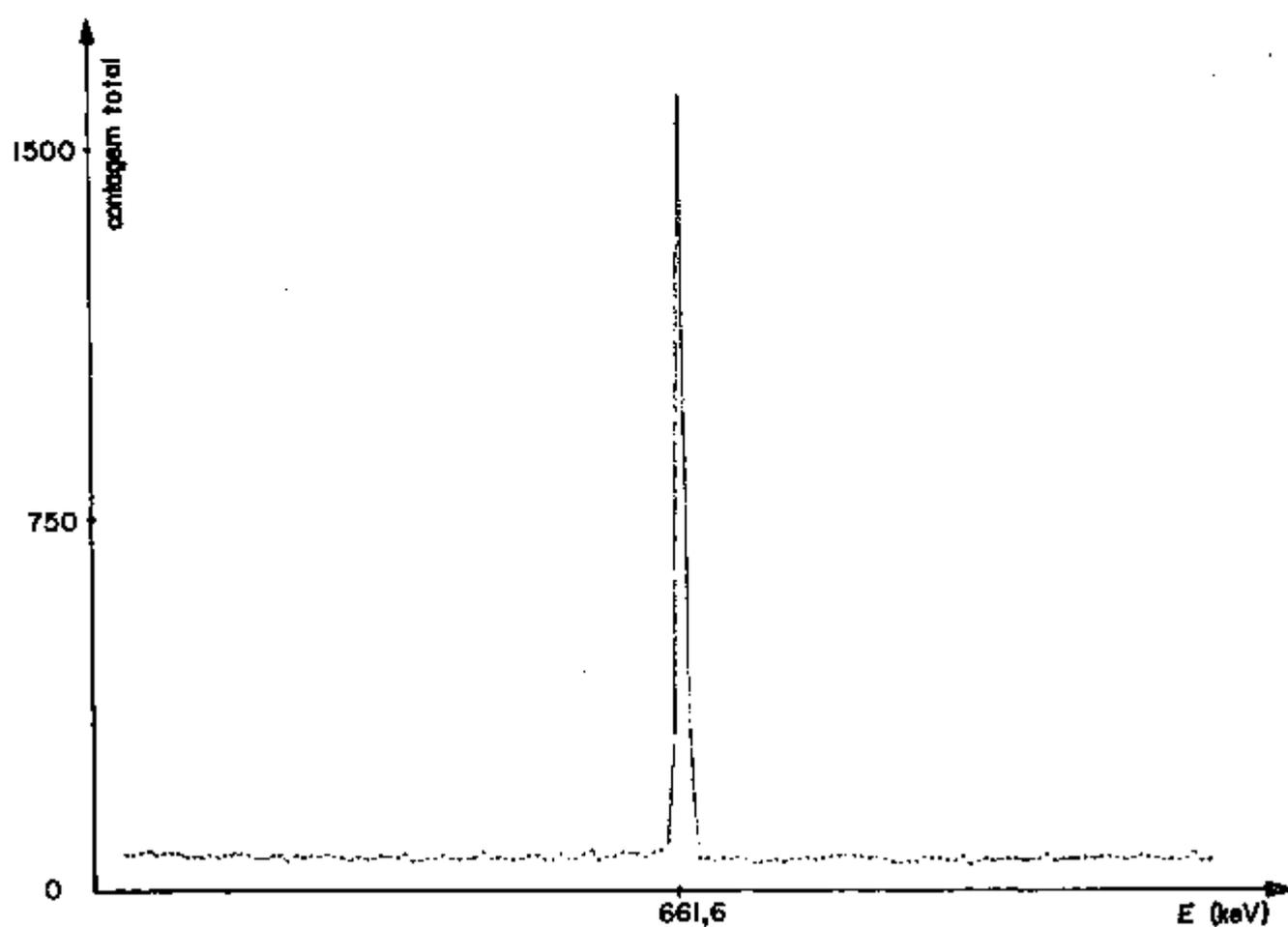
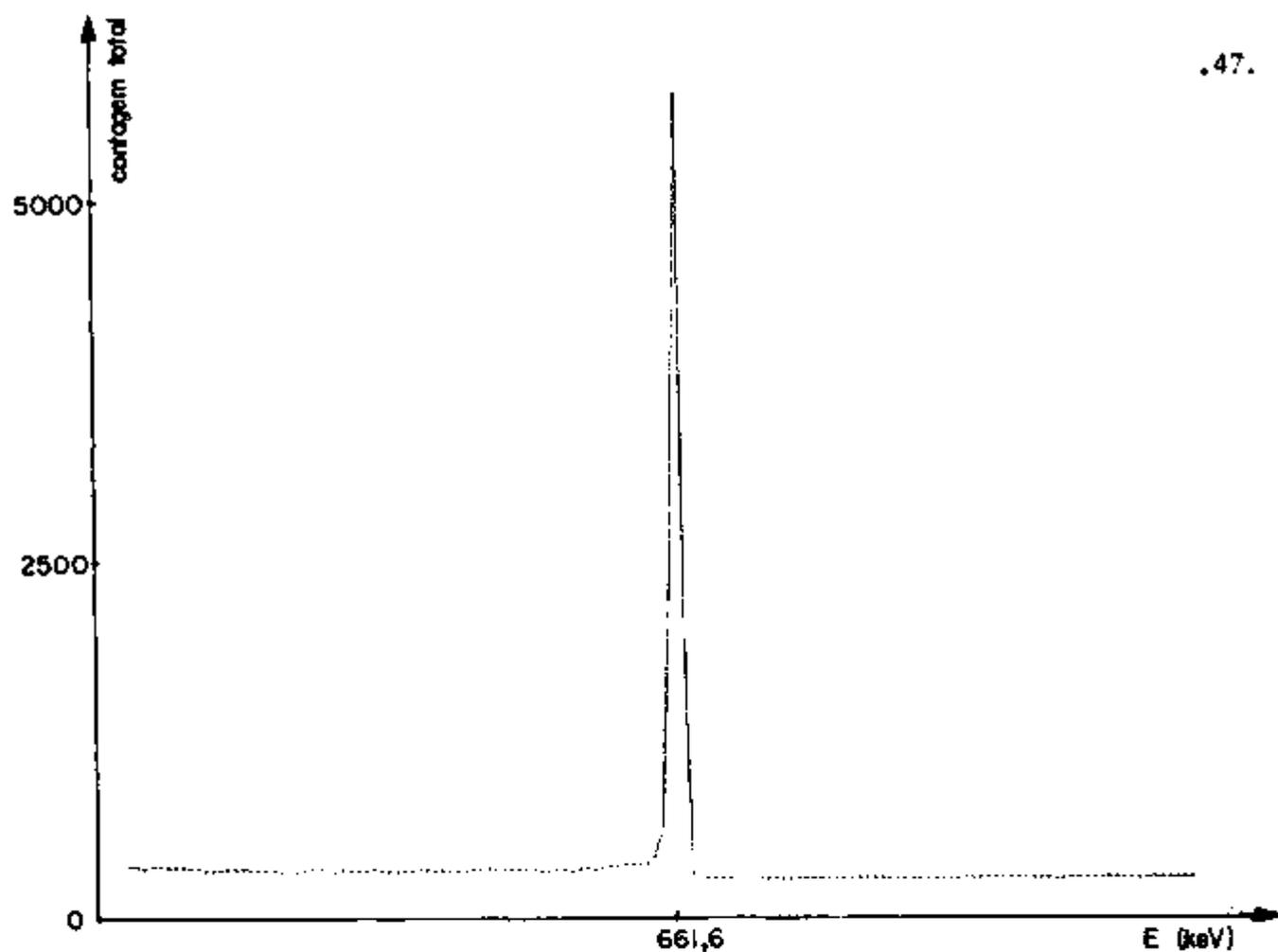


Figura IV.1- a) Espectro do Elemento Combustível IEA-14

b) Espectro de uma fonte de Cs-137

Tempo de contagem = 300 segundos.

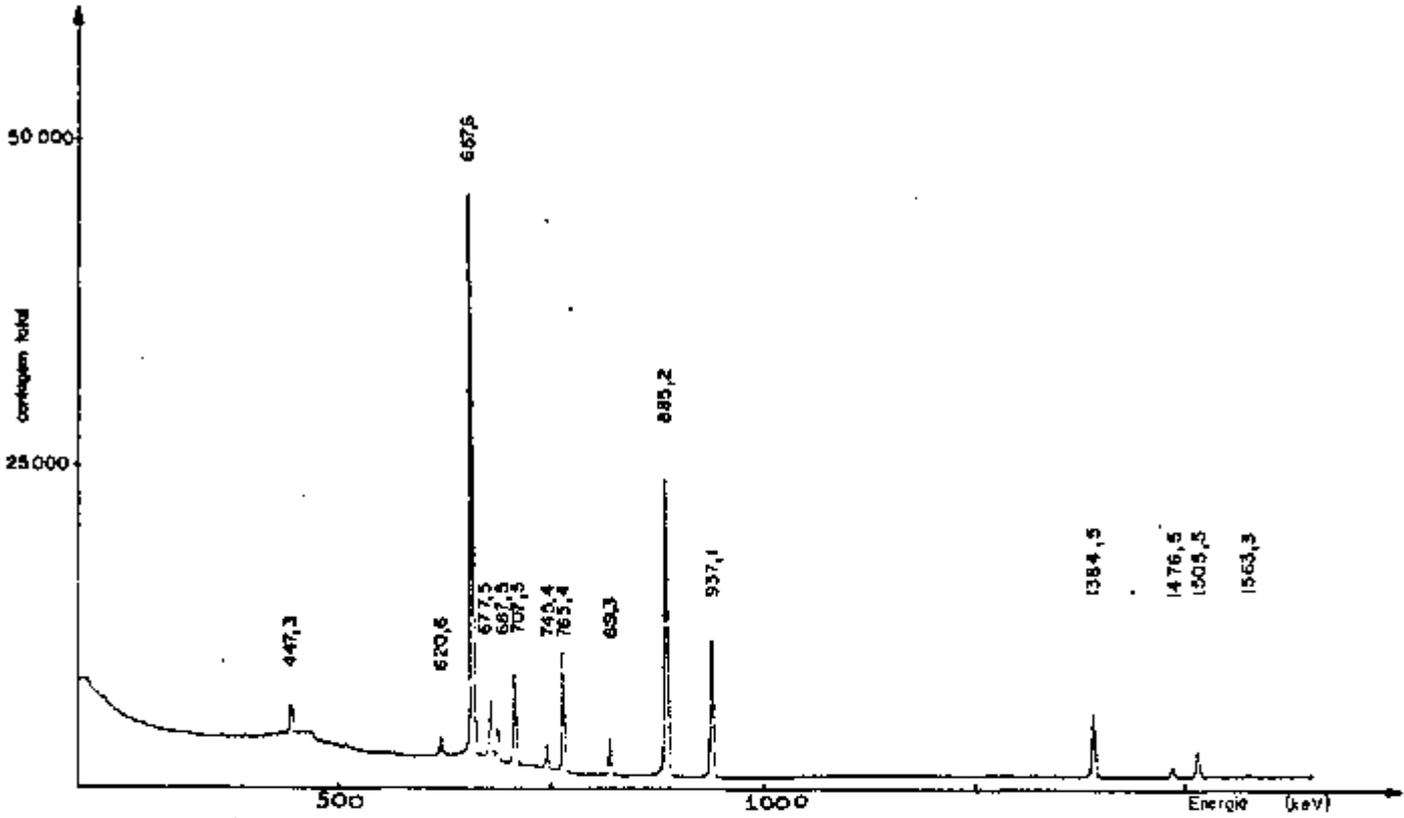


Figura IV.2- Espectro dos Raios Gama Emitidos pela Ag-110m. Tempo de contagem = 600 segundos.

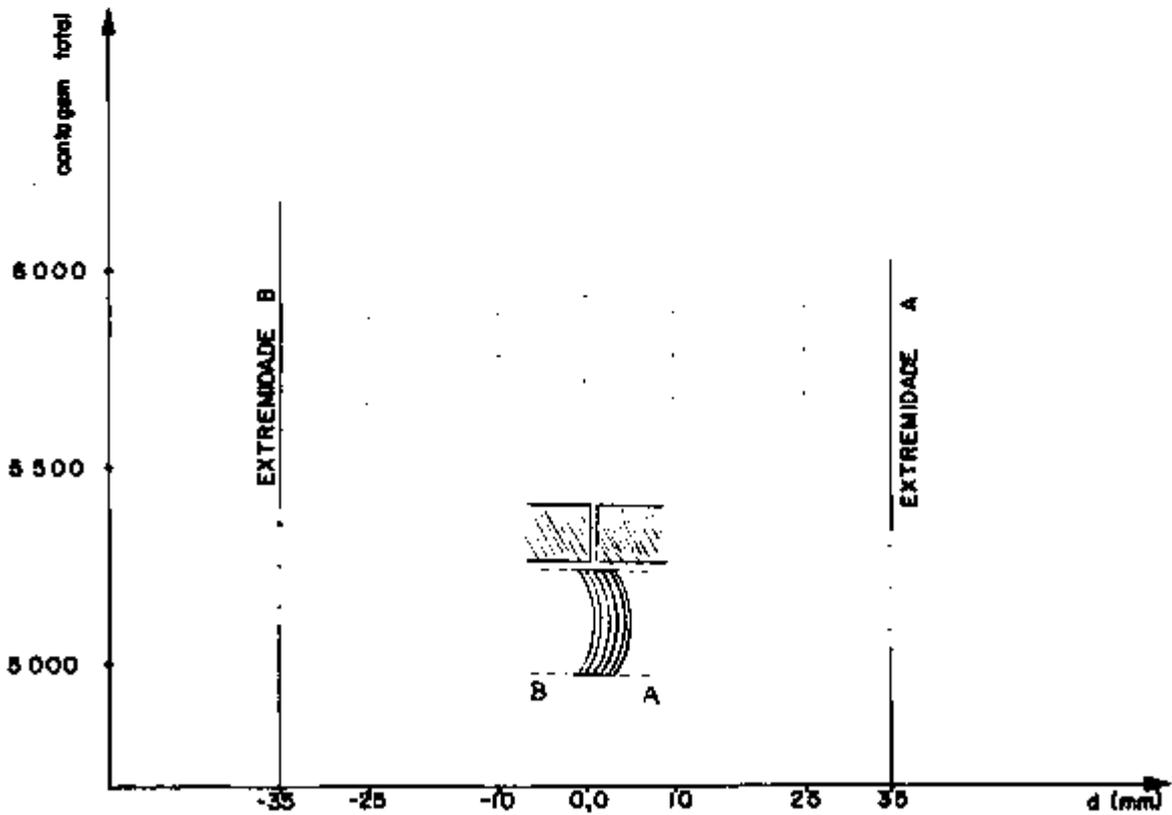


Figura IV.3- Distribuição de Cs-137 nas Placas do IEA-14. Tempo de contagem = 300 segundos.

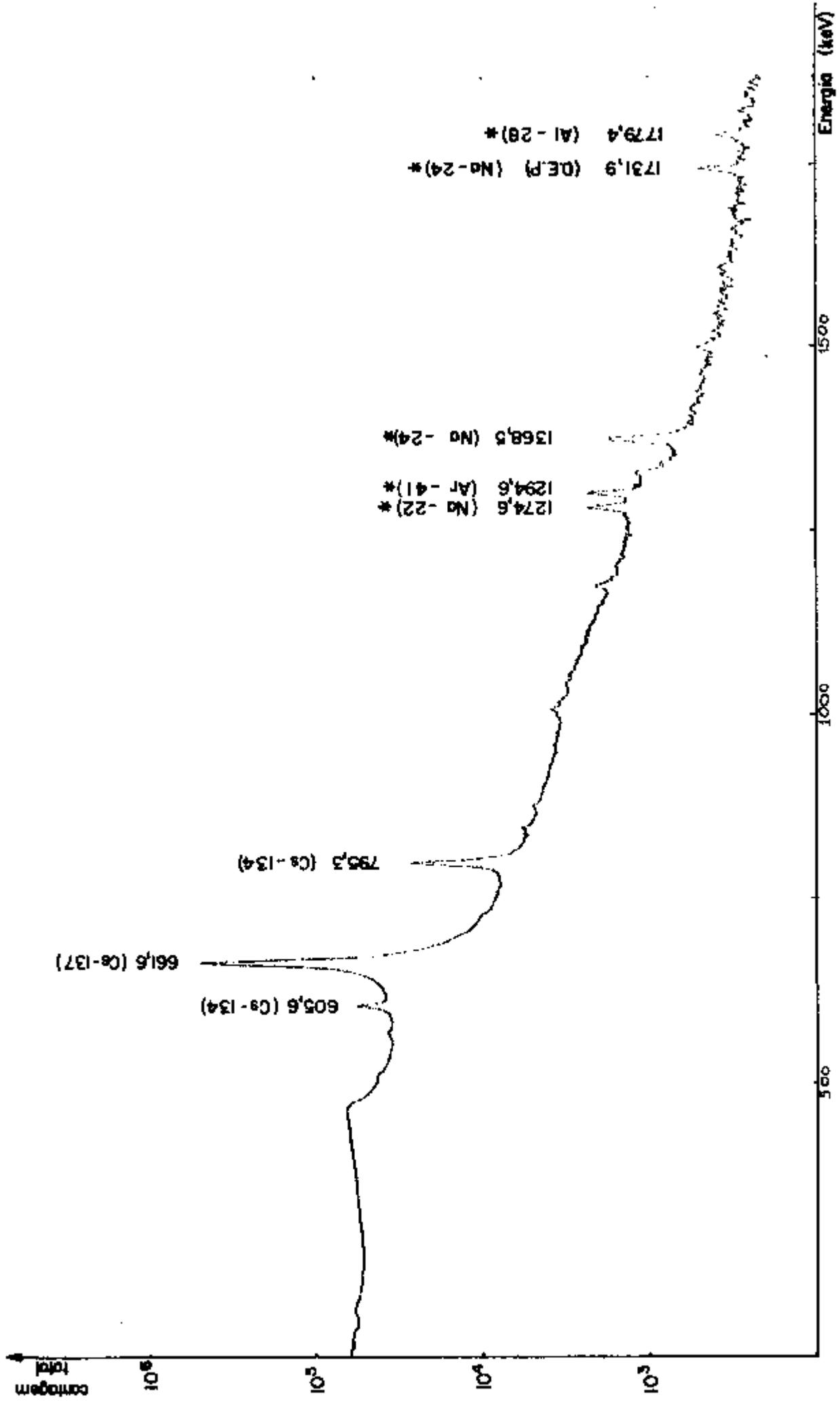


Figura IV.4- Espectro de Raios Gama Obtido para o Elemento Combustível IEA-80.

Tempo de contagem = 600 segundos.

A Figura IV.5 apresenta o espectro de raios gama obtido para o elemento IEA-89. Esse elemento, por ter sido tirado do caroço do reator recentemente ( $t_{\text{resfriamento}} = 1$  ano) está mais ativo que o IEA-80, e apresenta um espectro mais complexo devido ao maior número de produtos de fissão radioativos ainda presentes em quantidades significantes. Os picos devido a radiação de fundo são marcados com \*. Como antes, as energias dos picos são dadas junto com os mais prováveis emissores.

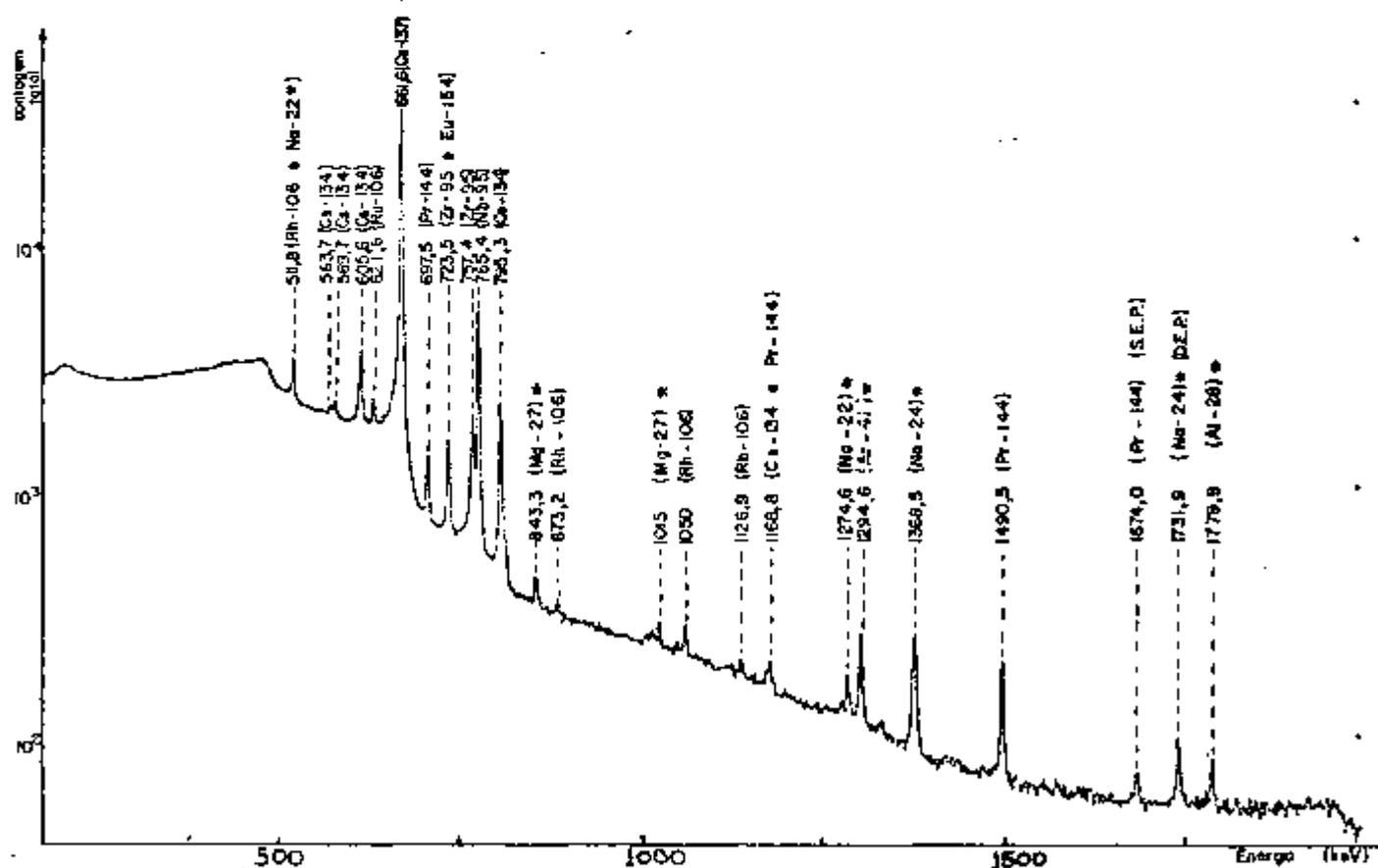


Figura IV.5- Espectro dos Raios Gama do Elemento Combustível IEA-89. Tempo de contagem = 600 segundos.

A Figura IV.6- mostra a distribuição de Cs-137 ao longo dos elementos IEA-14 e IEA-80 na linha central. A distribuição de Cs-137 nas outras linhas medidas tem a mesma forma. A Figura IV.7 mostra a concentração de Cs-137 na posição central da parte ativa dos elementos para as três linhas medidas. A maior densidade de Cs-137 na linha 3 do IEA-80 (Figura IV.7) provavelmente é devido ao fato que nas posições que ocupou no caroço do reator (Figura IV.8) a superfície do elemento mais próxima da linha 3 permaneceu mais tempo ao lado dos refletores, que causam um acréscimo de fluxo nas suas proximidades.

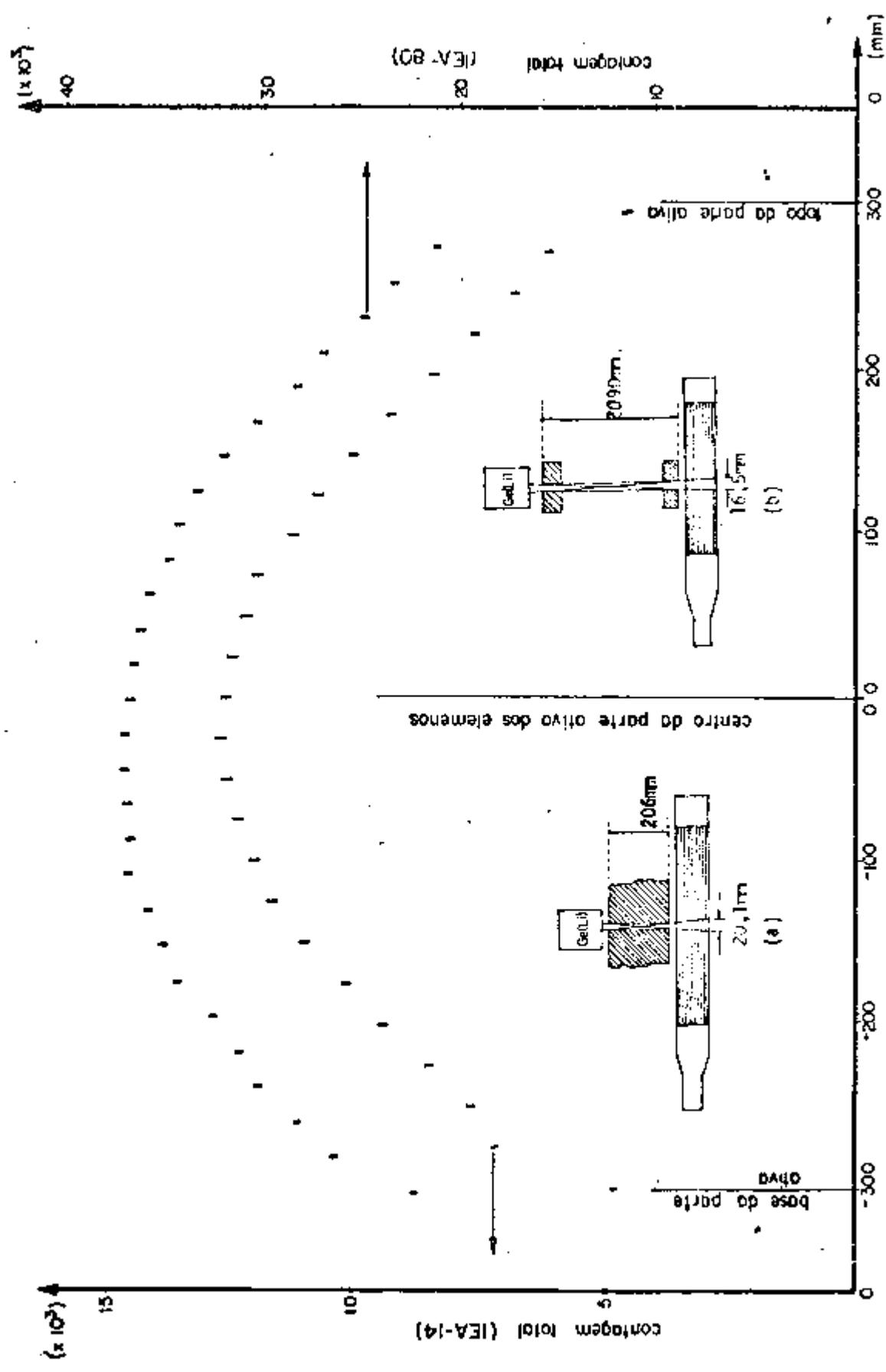


Figura IV.6- Comparação da Distribuição da Atividade de Cs-137, em Função da Contagem Total Obtida, nos Elementos IEA-14 (tempo de medida=600 s) e IEA-80 (tempo de medida = 20 s). a) Esquema de Medida com o IEA-14 (S.I.); b) Esquema de Medida com o IEA-80 (S.I.I.).

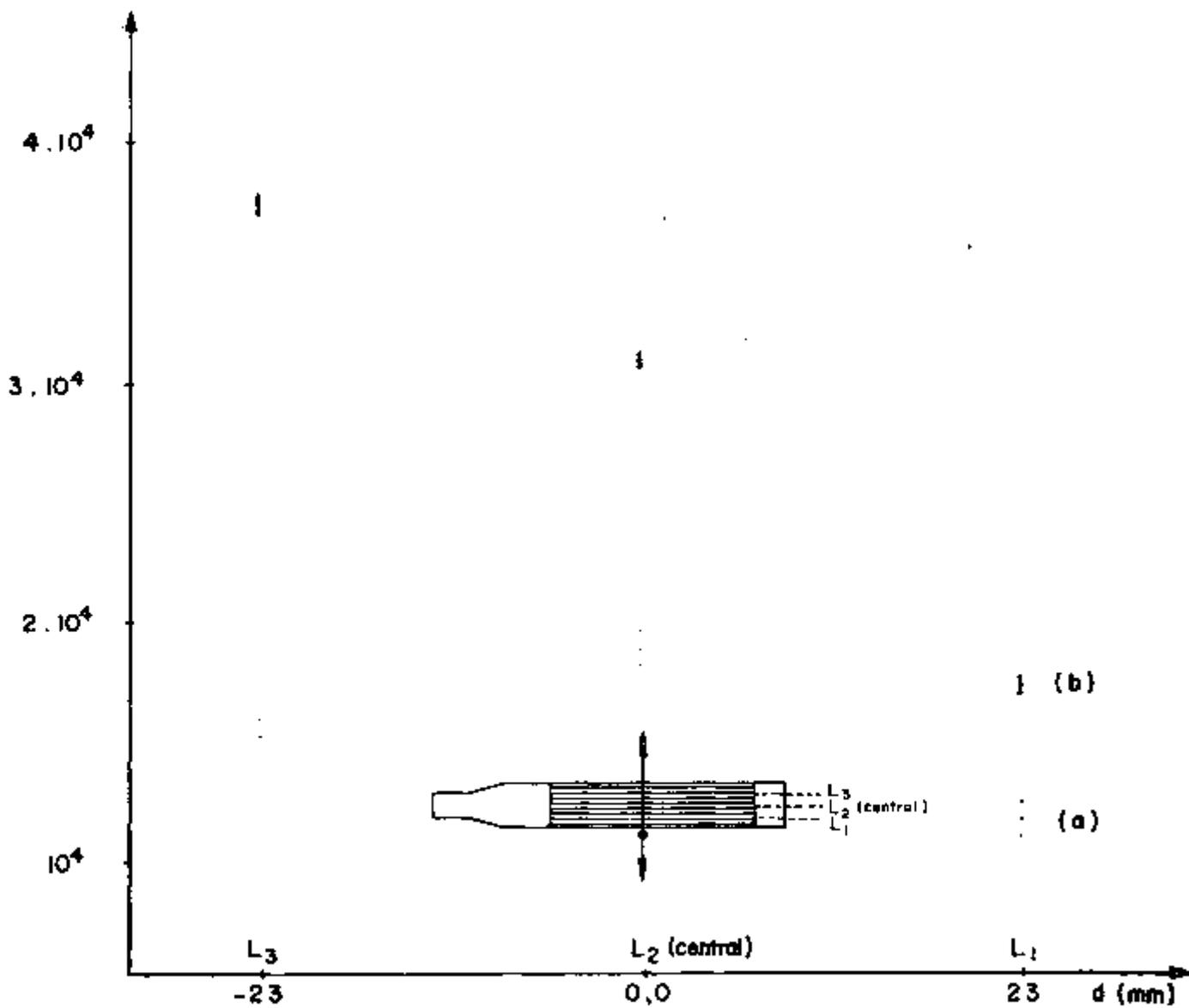


Figura IV.7- Concentração de Cs-137 na Posição Central dos Elementos Combustíveis, nas Três Linhas Medidas:  
 a) Elemento IEA-14 (tempo de contagem=600 segundos);  
 b) Elemento IEA-80 (tempo de contagem=20 segundos).

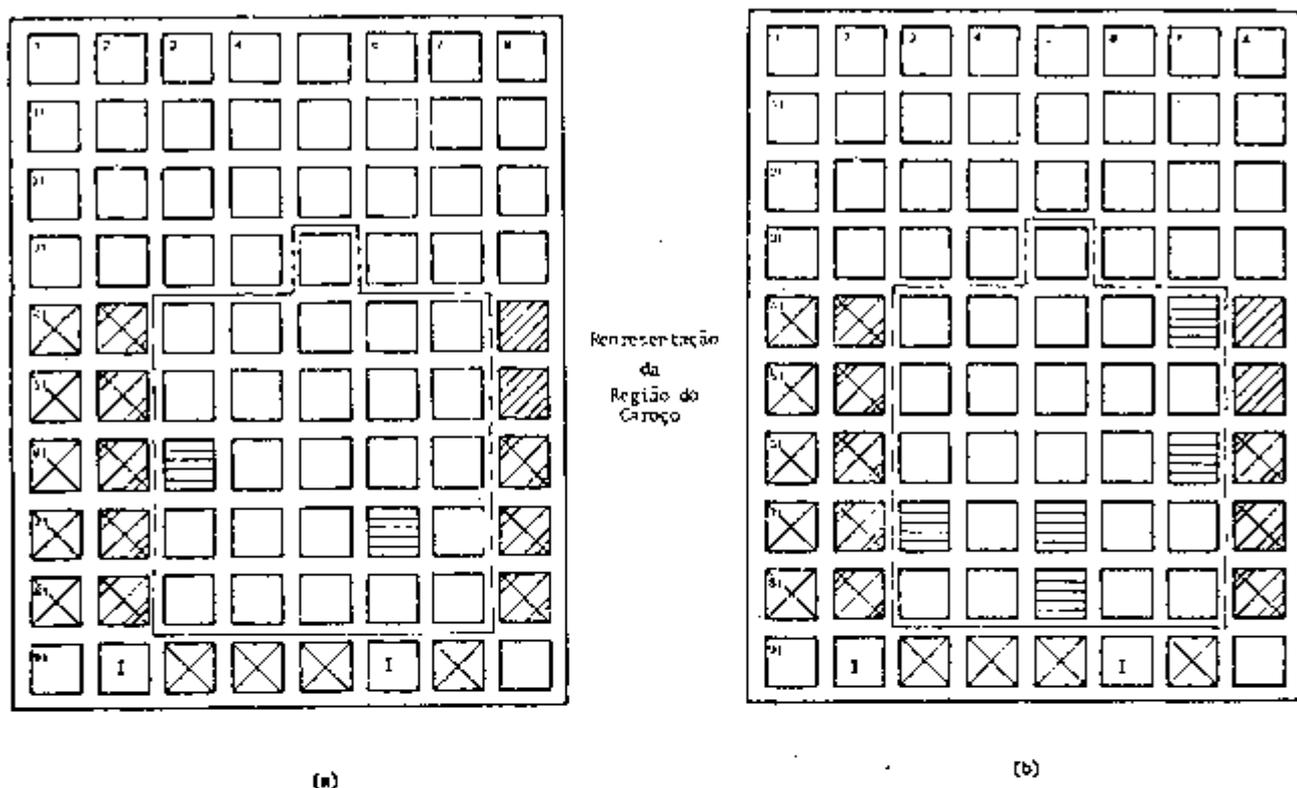


Figura IV.8- Posições Ocupadas pelos Elementos Combustíveis Analisados no Carço do Reator IEA-R1

**Legenda**



Posição Ocupada pelo Elemento



Elemento Refletor



Posição de Irradiação



Posição Alternativa para Elemento Refletor e Posição de Irradiação



Instrumentação

**a) Elemento IEA-14**

Posição	Data(dia,mês,ano)
76	de 28-08-1958 a 04-09-1958
63	de 04-09-1958 a 19-12-1958

Tempo Total de Permanência no Carço: 114 dias

**b) Elemento IEA-80**

Posição	Data(dia,mês,ano)
85	de 08-10-1968 a 18-05-1975
67	de 18-05-1973 a 03-06-1975
73	de 03-06-1975 a 01-12-1975
75	de 01-12-1975 a 14-06-1976
67	de 14-06-1976 a 12-01-1977
47	de 12-01-1977 a 17-01-1977

Tempo Total de Permanência no Carço: 8,26 anos

## IV.2- PARÂMETROS CALCULADOS

Neste trabalho o cálculo do consumo de combustível é feito com base na medida da distribuição de atividade de um produto de fissão, (Cs-137), escolhido como monitor de queima. Para calcular a densidade,  $R_0$ , desse produto na retirada do elemento do caroço, são usados vários parâmetros, relacionados com o sistema de medi-das, calculados em função da energia do Cs-137. Os valores desses parâmetros são dados a seguir.

### - Fator de Transmissão ( $F_T$ )

Os valores do fator de transmissão dados na Tabela IV.1 fo-ram calculados com os resultados das medidas feitas com a fonte de Cs-137 de 5 $\mu$ Ci colocada entre as placas do IEA-14.

Localização da Fonte de Cs-137	$F_T$
P <sub>1,2</sub> - Fonte entre a 1a. e 2a. placas	0,952 $\pm$ 0,070
P <sub>7,8</sub>	0,956 $\pm$ 0,017
P <sub>13,14</sub>	0,957 $\pm$ 0,015
sob as 19 placas	0,955 $\pm$ 0,014

Tabela IV.1- Valor Médio do Fator de Transmissão por Placa do Elemento IEA-14 para Várias Po-sições da Fonte.

Na Tabela IV.2 são dados os valores do  $F_T$  para três posi-ções ao longo do IEA-14, calculados para a fonte de Cs-137 de 8,18 $\mu$ Ci sob as 19 placas.

Distância da Fonte ao Centro do IEA-14 (mm)	Fator de Transmissão ( $F_T$ )
-130 (base)	0,957 $\pm$ 0,008
0	0,957 $\pm$ 0,008
+130 (topo)	0,957 $\pm$ 0,007

Tabela IV.2- Valor Médio do Fator de Transmissão por Placa do Elemento IEA-14 para a Fonte sob as 19 Placas.

Considerando um peso igual para cada valor do  $F_T$  nas Tabelas IV.1 e IV.2, temos o valor médio  $\bar{F}_T(\text{experimental}) = 0,956 \pm 0,029$ . O pequeno erro nesse valor indica que, dentro da precisão das medidas, o fator de transmissão é constante para todas as placas do IEA-14, assim pode-se dizer que a liga urânio alumínio é homogênea. Baseado nessa afirmativa, usando dados fornecidos pelo fabricante do elemento combustível e da literatura foi calculado o valor teórico do fator de transmissão, onde  $F_T(\text{teórico}) = 0,961 \pm 0,001$ . Sendo o erro estatístico do  $F_T(\text{experimental})$  maior do que 1% o valor do  $F_T(\text{teórico})$  será usado para os cálculos de queima.

Para o elemento IEA-80 a parte ativa das placas são mais finas ( $x = 0,508\text{mm}$ ), do que para o IEA-14 ( $x = 0,609$ ), apesar da placa do IEA-80 ser mais espessa ( $x = 1,524\text{mm}$ ) do que a do IEA-14 ( $1,372\text{mm}$ ). Assim, temos que para o IEA-80  $F_T(\text{teórico}) = 0,966 \pm 0,001$ .

#### - Eficiência Intrínseca ( $\eta_{ex}$ )

A eficiência intrínseca do sistema um(S.I.), foi calculada para várias distâncias fonte de Cs-137-detector. Os valores de  $\eta_{ex}$  são dados na Tabela IV.3. Dentro do desvio apresentado podemos considerar que a eficiência intrínseca do sistema é independente da distância de cada placa do elemento combustível ao detector.

Localização da Fonte em Relação às Placas do IEA-14	Eficiência Intrínseca ( $\eta_{ex}$ )
$P_{1,2}$	0,197 $\pm$ 0,005
$P_{7,8}$	0,201 $\pm$ 0,005
$P_{13,14}$	0,195 $\pm$ 0,005
sob as 19 placas	0,203 $\pm$ 0,005

Tabela IV.3- Valor Médio da Eficiência Intrínseca do S.I. para Quatro Distâncias Fonte-Detector.

Na Tabela IV.4 o valor médio da  $\eta_{ex} [Ge(Li)]$  obtida neste trabalho é comparado com o valor médio da  $\eta_{ex} [NaI(Tl)]$  obtida e usada por Soares para cálculo de queima. Em virtude de se ter um feixe fino de radiação chegando ao detector, a eficiência in trínseca do sistema ( $\eta_{ex}$ ) pode ser considerada como eficiência in trínseca do detector.

Detector	Eficiência Intrínseca
Ge(Li)	(19,9 $\pm$ 0,3)%
NaI(Tl)	(68 $\pm$ 4)%

Tabela IV.4- Comparação da Eficiência In trínseca de Sistemas de Medi das Usando Detectores Ge(Li) e NaI(Tl).

#### - Eficiência Global ( $\eta$ )

Com o objetivo de evitar o cálculo do fator geométrico ( $F_G$ ) e da área do círculo definido pelo ângulo sólido sobre cada placa

( $a_i$ ), usamos uma fonte extensa de Ag-110m (Tabela III.2) para o cálculo da eficiência global, do S.I. (Apêndice I). O valor de  $\eta$  é dado em unidade de área pelo fato de englobar o valor das  $a_i$ , isto é,  $\eta = \eta_i a_i = \text{constante}$ , onde  $\eta_i$  é a eficiência global do sistema para a posição de cada placa. Foram calculados valores de  $\eta$  para três distâncias da fonte de Ag-110m ao detector para quatro energias de decaimento gama da fonte, Tabela IV.5. Esse cálculo de  $\eta$  só é válido devido a homogeneidade da fonte. Sendo  $n$  a relação entre o número de gamas emitidos e o número de gamas contados.

Como esperado, dentro da precisão das medidas,  $\eta_{ex}$  e  $\eta$  são invariáveis com a distância fonte-detector, para uma energia específica.

Com os valores médios da Tabela IV.5 foi feito um ajuste linear por mínimos quadrados, dando:

$$\eta = (0,845 - 0,000398E) \times 10^{-4} \quad (200 \text{ keV} \leq E \leq 2000 \text{ keV})$$

Onde  $E$  é a energia para a qual queremos o valor de  $\eta$ . Portanto, para a energia do Cs-137 temos:

$$\eta(661,6 \text{ keV}) = (0,582 \pm 0,003) \cdot 10^{-4} \text{ (cm}^2\text{)}$$

Essa relação linear entre  $\eta$  e a energia era esperada para a faixa de energia considerada, como é dado por Lavi<sup>(21)</sup>.

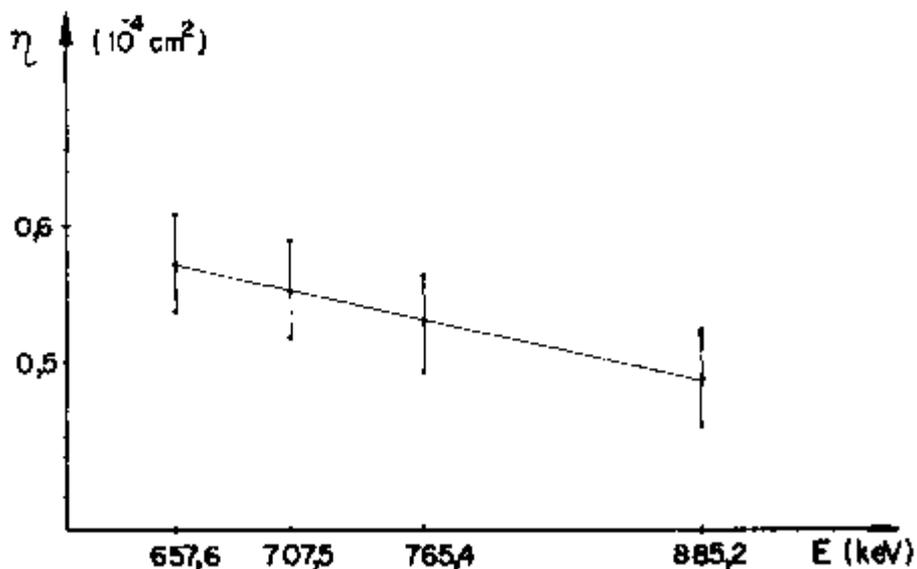


Figura IV.9- Variação da Eficiência Global ( $\eta$ ) com a Energia.

Fonte na Posição da Placa	Eficiência Global ( $\epsilon$ ) ( $\text{cm}^2$ )				885,2 keV
	657,6 keV	707,5 keV	765,4 keV		
1a.	$(0,586^{+0,013}) \cdot 10^{-4}$	$(0,558^{+0,016}) \cdot 10^{-4}$	$(0,540^{+0,015}) \cdot 10^{-4}$		$(0,496^{+0,013}) \cdot 10^{-4}$
9a.	$(0,582^{+0,013}) \cdot 10^{-4}$	$(0,559^{+0,016}) \cdot 10^{-4}$	$(0,537^{+0,015}) \cdot 10^{-4}$		$(0,496^{+0,013}) \cdot 10^{-4}$
17a.	$(0,584^{+0,013}) \cdot 10^{-4}$	$(0,569^{+0,016}) \cdot 10^{-4}$	$(0,531^{+0,015}) \cdot 10^{-4}$		$(0,488^{+0,013}) \cdot 10^{-4}$
Valor Médio	$(0,584^{+0,014}) \cdot 10^{-4}$	$(0,562^{+0,014}) \cdot 10^{-4}$	$(0,536^{+0,014}) \cdot 10^{-4}$		$(0,493^{+0,014}) \cdot 10^{-4}$

Tabela IV.5- Eficiência Global do S.I , para Várias Energias de Decaimento da Ag-110m.

- Fator de Similaridade Entre os Sistemas I e II (S)

Esse fator permite transformar as contagens obtidas no S.II em contagens equivalentes às obtidas no S.I. A razão para o cálculo do S e sua definição são dados no item III.3. A Tabela IV.6 mostra que o valor do S é constante dentro da precisão das medidas.

Distância da Posição de Medida ao Centro da Parte Ativa do IEA-14 (mm)	Fator de Similaridade (S)
-130 (base)	59 ± 4
0,0	59 ± 4
+130 (topo)	59 ± 4

Tabela IV.6- Fator de Similaridade entre S.I. e S.II, para Três Pontos ao Longo do IEA-14.

- Fator de Correção para o Decaimento do Cs-137 Durante o Período de Irradiação ( $f_c$ )

O  $f_c$  foi calculado (Apêndice I) para ciclos de operação, do reator IEA-R1, de uma semana, com 8 horas de irradiação em 5 dias e 2 dias de resfriamento até o início da próxima irradiação. A Figura IV.10 mostra a variação de  $f_c$  em função do tempo, calculado para um período de irradiação de aproximadamente 10 anos. Sendo essa variação linear, para a faixa de tempo de interesse temos:

$$f_c = 0,9997 + 0,0002t$$

onde t é dado em semanas.

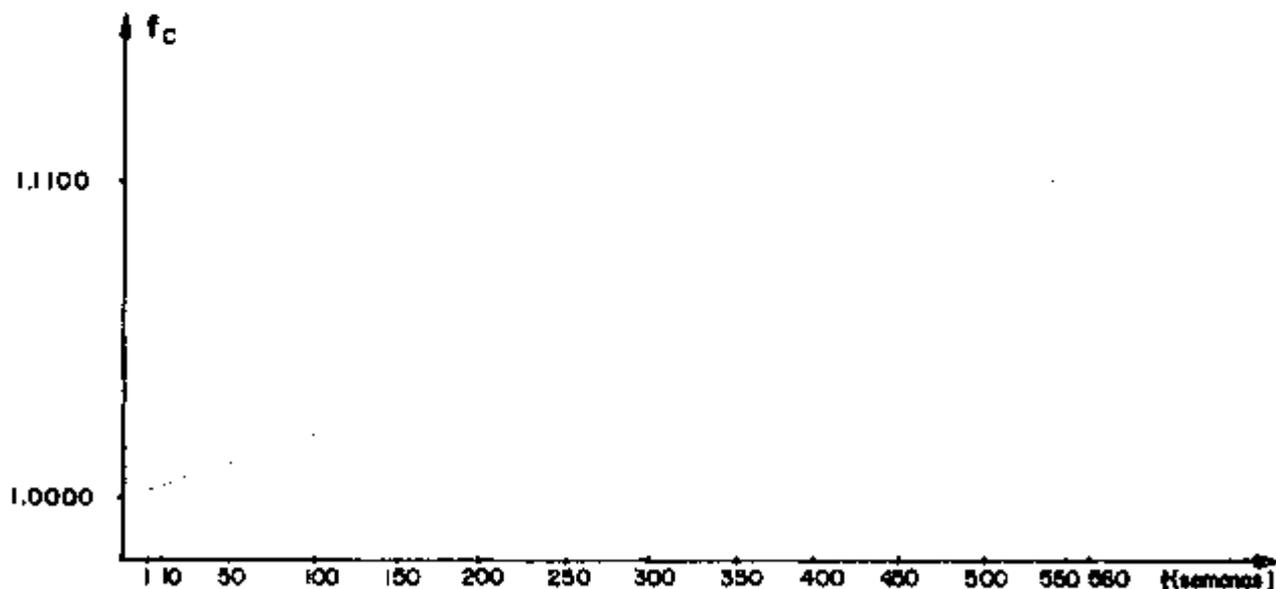


Figura IV.10- Fator de Correção para o Decaimento para Ciclos de Operação de 1 semana.

- Fator de Transmissão do Filtro de Chumbo ( $F_{pb}$ )

Para reduzir a razão de contagem devido a alta intensidade do IEA-80, foi colocado um filtro de chumbo de 7,5mm de espessura fechando a abertura superior do colimador. O valor do  $F_{pb}$  calculado para a energia do Cs-137 é:

$$F_{pb} = 0,4011 \pm 0,0016$$

- Secções de Choque

As secções de choque do U-235, U-238 e Pu-239 foram calculadas, usando o código Hammer para os dois elementos combustíveis estudados, IEA-14 e 80 (Apêndice I). O valor médio dessas secções de choque são dados nas Tabelas IV.7(IEA-14) e IV.8(IEA-80).

Elemento	Secções de Choque Médias (barn)		
	$\bar{\sigma}_a$	$\bar{\sigma}_f$	$\bar{\sigma}_c$
U-235	168 $\pm$ 8	142 $\pm$ 7	26 $\pm$ 1
U-238	2,7 $\pm$ 0,2	0,094 $\pm$ 0,009	2,6 $\pm$ 0,2
Pu-239	337 $\pm$ 16	231 $\pm$ 11	106 $\pm$ 5

Tabela IV.7- Secções de Choque Médias para o IEA-14, para  $2,54 \cdot 10^{-4} \text{ eV} \leq E \leq 10^7 \text{ eV}$ .

Elemento	Secções de Choque Médias (barn)		
	$\bar{\sigma}_a$	$\bar{\sigma}_f$	$\bar{\sigma}_c$
U-235	152 $\pm$ 7	129 $\pm$ 6	23 $\pm$ 1
U-238	6,3 $\pm$ 0,6	0,099 $\pm$ 0,009	6,2 $\pm$ 0,6
Pu-239	313 $\pm$ 15	214 $\pm$ 10	99 $\pm$ 5

Tabela IV.8- Secções de Choque Médias para o IEA-80, para  $2,54 \cdot 10^{-4} \text{ eV} \leq E \leq 10^7 \text{ eV}$ .

### IV.3- CÁLCULO DA DENSIDADE DE Cs-137 NOS ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS

No capítulo II, item II.2 é dada a equação II.15 para cálculo da densidade de Cs-137 nos elementos combustíveis.

$$R_o = \frac{C}{\lambda \lambda e^{-\lambda tr} T \epsilon F_{ab} F_r \sum_{i=1}^M (F_T)^{i-1} \eta_i a_i} \quad \text{átomos/cm}^3 \quad (\text{II.15})$$

Como dado na página 58 o produto da eficiência global do sistema de medidas para a posição de cada placa ( $\eta_i$ ) pela área do círculo definido pelo ângulo sólido sobre cada placa ( $a_i$ ) isto é,  $\eta_i a_i$ , é constante e igual a  $\eta$  calculado em unidade de área. Assim a equação II.15 pode ser escrita como:

$$R_o = \frac{C}{\lambda \lambda e^{-\lambda tr} T \epsilon F_{ab} F_r \eta \sum_{i=1}^M (F_T)^{i-1}} \quad \text{átomos/cm}^3 \quad (\text{IV.1})$$

Multiplicando o lado direito da equação IV.1 por  $\lambda, a, M$  onde  $\lambda$  é a espessura de cada placa,  $a$  é a área do quadrilátero que contém o círculo definido pelo ângulo sólido sobre a última placa do elemento, sendo ainda os lados do quadrilátero maiores que o diâmetro desse círculo, e  $M$  é o número de placas que constituem o elemento, a equação IV.1 torna-se:

$$R_{oT} = \frac{C}{\lambda e^{-\lambda tr} T \epsilon F_{ab} F_r \eta \sum_{i=1}^M (F_T)^{i-1}} \cdot a \cdot M \quad \text{átomos} \quad (\text{IV.2})$$

onde  $R_{oT}$  dá agora o número de átomos de Cs-137 contidos no elemento combustível na sua retirada do caroço do reator.

#### - Cálculo do Número de Átomos de Cs-137 no IEA-14

Em virtude da distância entre as linhas sobre as quais foram feitas medidas ao longo do IEA-14, pode ser visto na Figura III.12 (capítulo III) que há uma perda de área que contribui com gamas que chegam ao detector nas linhas 1 e 3. Essa perda ocorre a partir da décima quarta placa. Mas essa perda de área não influi

no valor da  $\eta$  (diretamente afetada pela variação da área ativa vista pelo detector) dentro do desvio considerado, portanto não causa variação no valor de  $R_{OT}$ . Desse modo a perda de área não foi considerada, e a equação usada no cálculo de  $R_{OT}$  no IEA-14 foi a IV.2. No cálculo de  $R_{OT}$  foram usados os valores:

$$\begin{aligned} \lambda &= 0,73 \cdot 10^{-9} \text{ seg}^{-1} & (7) \\ \epsilon &= 0,848 & (35) \\ \eta &= 0,582 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \\ tr &= 6,83 \cdot 10^8 \text{ seg} \\ T &= 600 \text{ seg} \\ F_{ab} &= 0,9881 \\ F_r &= 0,9924 \\ F_T &= 0,961 \end{aligned}$$

O valor calculado para  $R_{OT}$  no IEA-14 é a somatória dos valores calculados com a distribuição da contagem obtida em cada linha. Assim

$$R_{OT} = (4,37 \pm 0,12) \cdot 10^{17} \text{ átomos}$$

#### - Cálculo de $N_x$ para o IEA-14

$N_x$  é definido como o valor da densidade de Cs-137 no elemento sem considerar decaimento no período de irradiação. Da equação II.16

$$N_x = f_c \cdot R_o \quad (II.16).$$

Substituindo  $R_o$  por  $R_{OT}$ , temos:

$$N_x = f_c R_{OT}$$

onde  $N_x$  nos dá o número de átomos de Cs-137 sem considerar decaimento.

Para o período de irradiação do IEA-14 temos:

$$f_c = 1,0033$$

portanto,

$$N_x(\text{IEA-14}) = (4,38 \pm 0,12) \cdot 10^{-17} \text{ átomos.}$$

- Cálculo do Número de Átomos de Cs-137 no IEA-80

Da Figura III.13 (capítulo III), podemos notar que para o IEA-80 não há redução da área ativa "vista" pelo detector, como para o IEA-14 (Figura III.12), então corrigindo a equação IV.2 para o fator de similaridade (S) entre o S.I e o S.II e para a atenuação do filtro de chumbo ( $F_{pb}$ ) temos:

$$R_{OT} = \frac{C}{\lambda e^{-\lambda tr} T \epsilon F_{ab} F_r \eta \sum_{i=1}^M (F_T)^{i-1}} \text{ a.M. } \frac{S}{F_{pb}} \quad (\text{IV.5})$$

No cálculo de  $R_{OT}$  foram usados os valores:

$$\lambda = 0,7283 \cdot 10^{-9} \text{ seg}^{-1} \quad (7)$$

$$\epsilon = 0,848 \quad (35)$$

$$\eta = 0,582$$

$$\eta = 0,582 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2$$

$$tr = 1,46 \cdot 10^8 \text{ seg}$$

$$T = 20 \text{ seg}$$

$$F_{ab} = 0,9930$$

$$F_r = 0,9898$$

$$F_T = 0,966$$

$$F_{pb} = 0,4011$$

$$S = 59$$

O valor calculado para  $R_{OT}$  no IEA-80 é a somatória dos valores calculados com a contagem obtida em cada posição em cada linha.

Assim:

$$R_{OT} = (3,09 \pm 0,20) \cdot 10^{21} \text{ \AA} \text{tomos}$$

- C\u00e1lculo de  $N_x$  para o IEA-80

Para o per\u00edodo de irradia\u00e7\u00e3o do IEA-80, temos:

$$f_c = 1,0857,$$

sendo

$$N_x = f_c R_{OT}$$

ent\u00e3o

$$N_x(\text{IEA-80}) = (3,34 \pm 0,22) \cdot 10^{21} \text{ \AA} \text{tomos.}$$

- C\u00e1lculo da Integral do Fluxo no Tempo ( $\omega$ ), para os Elementos Combust\u00edveis Analisados

Da equa\u00e7\u00e3o II.6 (cap\u00edtulo II) temos que  $N_x$  \u00e9 uma fun\u00e7\u00e3o de  $\omega$ , assim conhecido o valor de  $N_x$  (obtido experimentalmente) podemos determinar  $\omega$ . Usando-se a aproxima\u00e7\u00e3o:

$$1 - \exp(-\sigma\omega) \approx \sigma\omega - (\sigma\omega)^2/2$$

que introduz um erro em  $\omega$  desprez\u00edvel dentro do desvio calculado, a equa\u00e7\u00e3o II.6 ser escrita como:

$$N_x(\omega) = [N_{28}^{(0)} \bar{\sigma}_{c28} \bar{\sigma}_{f49} Y2 - N_{28}^{(0)} \bar{\sigma}_{a28} \bar{\sigma}_{f28} Y3 - N_{25}^{(0)} \bar{\sigma}_{a25} \bar{\sigma}_{f25} Y1] \frac{\omega^2}{2} + [N_{25}^{(0)} \bar{\sigma}_{f25} Y1 + N_{28}^{(0)} \bar{\sigma}_{f28} Y3] \omega \quad (\text{IV.4})$$

Os valores das taxas de forma\u00e7\u00e3o de Cs-137 por fiss\u00e3o do U-235, U-238 e Pu-239 (Y) s\u00e3o dados na Tabela IV.9.

Elemento	Y(%)
U-235	6,26
U-238	6,28
Pu-239	6,69

Tabela IV.9- Taxas de Formação por Fissão.

Na Tabela IV.10 são dados os valores de  $\omega$  para os elementos IEA-14 e 80, calculados através da equação IV.4 usando-se os valores dados para cada parâmetro.

Elemento Combustível	$\omega$ (Nêutrons/cm <sup>2</sup> )
IEA-14	$(1,22 \pm 0,07) \cdot 10^{17}$
IEA-80	$(9,2 \pm 0,9) \cdot 10^{20}$

Tabela IV.10- Valores Calculados para a Integral do Fluxo no Tempo de Irradiação.

- Cálculo do Consumo de U-235, U-238, Formação e Consumo de Pu-239 nos Elementos Combustíveis Analisados

A Tabela IV.11 mostra os valores de queima do U-235, U-238, Pu-239 e a formação do Pu-239 calculados para os elementos IEA-14 e 80 substituindo nas equações II.2, II.3, II.4 e II.5 os valores de  $\omega$  e das secções de choque de absorção e multiplicando os resultados obtidos por  $\frac{M'}{K}$  onde  $M'$  é o mol e  $K$  é o número de Avogadro.

Elementos Combustíveis	Q(U-235) (g)	Q(U-238) (g)	F(Pu-239) (g)	Q(Pu-239) (g)
IEA-14	$(3,22 \pm 0,24) \cdot 10^{-3}$	$(2,13 \pm 0,19) \cdot 10^{-4}$	$(2,05 \pm 0,19) \cdot 10^{-4}$	$< 10^{-7}$
IEA-80	$24,44 \pm 2,46$	$(7,96 \pm 1,08) \cdot 10^{-2}$	$(7,83 \pm 1,08) \cdot 10^{-2}$	$(1,03 \pm 0,14) \cdot 10^{-2}$

Tabela IV.11- Valores de Queima Obtidos pelo Método Não Destrutivo de Espectrometria Gama.

## V. ANÁLISE E DISCUSSÃO DOS ERROS

Consideremos  $f$  como função de variáveis independentes  $x_i$  ( $i=1,2,\dots,n$ ), da Lei de Propagação de Erros<sup>(24)</sup>, temos que o desvio padrão  $\Delta f$  é dado por:

$$\Delta f = \left[ \sum_{i=1}^n \left( \frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 (\Delta x_i)^2 \right]^{1/2} \quad (V.1)$$

Para o cálculo da queima dos elementos combustíveis foi calculado em ordem  $R_i$ ,  $N_x$ ,  $\omega$  e finalmente a queima. Portanto, a análise de erros será feita nessa ordem. Sendo  $R_0$  dependente de vários fatores, para calcularmos seu desvio calculamos inicialmente o desvio de cada fator. Os valores dos desvios calculados usando a equação V.1, são dados na Tabela V.1, e são feitos comentários sobre o cálculo do desvio de alguns parâmetros.

### - Desvio em C

A distribuição das contagens obtidas num processo de decaimento nuclear, obedece a distribuição de Poisson<sup>(24)</sup>. Assim o desvio padrão das contagens pode ser calculada por:

$$\Delta C = \sqrt{C}$$

Para os elementos estudados as contagens obtidas foram superiores a  $10^4$ , portanto o desvio de  $C$  foi sempre inferior a 1%.

### - Desvio em $F_T$

O desvio calculado para  $F_T$  é de 0,1% para os elementos IEA-14 e IEA-80. Mas, na equação de  $R_0$  temos  $(F_T)^{i-1}$ , isto é, corrigido para o número de placas sobre a placa considerada, assim temos  $\Delta F_T = 0,1\%$  para  $i=2$  até  $\Delta F_T = 1\%$  para  $i=19$ .

Parâmetro	Definição	Desvio	Comentários
C	Contagem retida - B.C.	<1%	Comentários a seguir.
A	Constante de decaimento	0,08%	Referência 7
$t_T$	Tempo de resfriamento	Insignificante	Tempo de contagem - 2 dias Tempo de resfriamento > 8 anos
T	Tempo de contagem	Insignificante	Definido eletronicamente
$\epsilon$	Fração de emissão de raios gama do Cs-137 com a energia de 661,6 keV	0,6%	Referência 35
$F_T$	Fator de transmissão de uma face do revestimento da parte ativa, para uma placa do elemento combustível	0,05%	A alta precisão desse fator deve-se ao fato de que os parâmetros envolvidos no seu cálculo são dados com boa precisão
$F_T$	Fator de transmissão por placa do elemento combustível (parte ativa)	0,1%	Esse desvio é para $F_T$ (teórico), comentários a seguir
$F_{ab}$	Fator de autoabsorção da parte ativa de uma placa do elemento combustível	0,05%	A alta precisão desse fator deve-se ao fato de que seu cálculo depende de $F_T$ e $S_T$ e esses fatores têm boa precisão
n	Eficiência global do sistema em (S.I)	2,4%	Esse desvio tem como causa principal: o desvio da atividade da fonte de Ag-110m
$F_{pb}$	Fator de transmissão do filtro de chumbo	0,4%	Desvio calculado usando dados de referência (6,3)
S	Fator de similitude entre os sistemas I e II	6,7%	Desvio causado pelo erro estatístico no contagem obtida no S.II com o IEA-14, devido a sua baixa atividade
$R_0$	Número de átomos de Cs-137 contidos nos elementos combustíveis na sua retirada do núcleo do reator	2,7% (IEA-14) 6,6% (IEA-80)	O desvio do $R_0$ é devido a propagação do erro de todos os parâmetros envolvidos no seu cálculo. O maior desvio para o IEA-80 é devido ao desvio no fator S
$N_x$	Número de átomos de Cs-137 contidos nos elementos combustíveis com correção na sua retirada durante a irradiação	2,7% (IEA-14) 6,6% (IEA-80)	Apresenta o mesmo desvio de $R_0$ , pelo fato do desvio no fator de correção ( $f_c$ ) ser insignificante
$\omega$	Integral do fluxo no tempo	5,7% (IEA-14) 9,8% (IEA-80)	Comentários a seguir

Tabela V.1- Desvio nos Parâmetros Usados no Cálculo da Queima dos Elementos IEA-14 e IEA-80.

- Desvio em  $\omega$ 

A equação IV.4 usada para o cálculo de  $\omega$  pode ser escrita como:

$$A\omega^2 + B\omega - N_X = 0 \quad (V.2)$$

onde

$$A = \frac{1}{\Sigma} \left[ N_{28}^{(0)} \bar{\sigma}_{c28} \bar{\sigma}_{f49} Y_2 - N_{28}^{(0)} \bar{\sigma}_{a28} \bar{\sigma}_{f28} Y_3 - B_{25}^{(0)} \bar{\sigma}_{a25} \bar{\sigma}_{f25} Y_1 \right] \quad (V.3)$$

$$B = N_{25}^{(0)} \bar{\sigma}_{f25} Y_1 + N_{28}^{(0)} \bar{\sigma}_{f28} Y_3 \quad (V.4)$$

da solução da equação V.2 resultam dois valores para  $\omega$

$$\omega = \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AN_X}}{2A} \quad (V.5)$$

mas, só um dos valores de  $\omega$  é compatível com a história de irradiação dos elementos estudados, e esse valor é dado por:

$$\omega = \frac{|B| - \sqrt{B^2 - 4AN_X}}{2|A|} \quad (V.6)$$

Então, para o cálculo de  $\Delta\omega$  são requeridos os valores de  $\Delta A$  e  $\Delta B$ . Das equações V.3 e V.4 temos que  $\Delta A$  e  $\Delta B$  são dependentes de  $\Delta\sigma$  e  $\Delta Y$ . Para os valores de  $\sigma$  calculados usando o Hammer, Onusic<sup>(24)</sup> mostrou que  $\Delta\sigma = |\sigma(\text{calculado}) - \sigma(\text{medido})| < 5\%$ , e para a integral de ressonância,  $\Delta IR(U-238) < 10\%$ . Nos nossos cálculos, para as secções de choque, foi usado  $\Delta\sigma(U-235) = \Delta\sigma(U-239) = 5\%$  e  $\Delta\sigma(U-238) = 10\%$  e para as taxas de formação de Cs-137 por fisão foi usado  $\Delta Y(U-235) = 0,5\%$ ,  $\Delta Y(U-238) = 4\%$  e  $\Delta Y(\text{Pu-239}) = 1\%$  <sup>(25)</sup>. Os desvios calculados para A, B e  $\omega$  são dados na Tabela V.2.

Elemento	$\Delta A(\%)$	$\Delta B(\%)$	$\Delta \omega(\%)$
IEA-14	7,4	5,5	5,74
IEA-80	6,8	5,1	9,8

Tabela V.2- Desvio de  $\omega$  e dos Parâmetros A e B Usados no seu Cálculo.

- Desvio no Consumo de U-235, U-238 e na Formação e no Consumo de Pu-239

Do cálculo do consumo em gramas, temos que o desvio é dado por:

$$\Delta Q(U-235) = \frac{N_{25}^{(0)} M'_{25}}{K} \left[ \omega e^{-\bar{\sigma}_{a25}\omega} (\Delta \bar{\sigma}_{a25})^2 + (\bar{\sigma}_{a25} e^{-\bar{\sigma}_{a25}\omega})^2 (\Delta \omega)^2 \right]^{1/2}$$

$$\Delta Q(U-238) = \frac{N_{28}^{(0)} M'_{28}}{K} \left[ (\omega e^{-\bar{\sigma}_{a28}\omega})^2 (\Delta \bar{\sigma}_{a28})^2 + (\bar{\sigma}_{a28} e^{-\bar{\sigma}_{a28}\omega})^2 (\Delta \bar{\sigma}_{a28})^2 \right]^{1/2}$$

e, usando a aproximação  $1 - \exp(-\sigma\omega) = \sigma\omega - \frac{(\sigma\omega)^2}{2}$

$$\Delta F(Pu-249) = \frac{N_{28}^{(0)} M'_{28}}{2K} \left[ (2\omega - \omega^2 \bar{\sigma}_{a28})^2 (\Delta \bar{\sigma}_{c28})^2 + (-\bar{\sigma}_{c28} \omega^2)^2 (\Delta \bar{\sigma}_{a28})^2 + [2\bar{\sigma}_{c28} (1 - \omega \bar{\sigma}_{a28})]^2 (\Delta \omega)^2 \right]^{1/2}$$

$$\Delta Q(Pu-249) = \frac{N_{28}^{(0)} M'_{49}}{2K} \left[ (\bar{\sigma}_{a49} \omega^2)^2 (\Delta \bar{\sigma}_{c28})^2 + (\bar{\sigma}_{c28} \omega^2)^2 (\Delta \bar{\sigma}_{a49})^2 + (2\bar{\sigma}_{c28} \bar{\sigma}_{a49} \omega)^2 (\Delta \omega)^2 \right]^{1/2}$$

onde K é o número de Avogadro e M' é o mol.

Elemento	$\Delta Q(U-235)$ %	$\Delta Q(U-238)$ %	$\Delta F(Pu-239)$ %	$\Delta Q(Pu-239)$ %
IEA-14	7,4	8,9	9,2	-
IEA-80	10,1	13,6	13,8	13,5

Tabela V.3- Desvios Calculados para os Consumos de U-235, U-238, Pu-239 e para a Formação de Pu-239.

O desvio de 7,4% no resultado da queima do IEA-14 está de acordo com os valores dados na literatura; até 6%<sup>(16)</sup> e de 7%<sup>(15)</sup>. Esse desvio tem como causa principal a incerteza nas secções de choque médias (5% para o U-235 e Pu-239 e 10% para o U-238).

O desvio de 10,1% no resultado da queima do IEA-80 está coerente, pois no cálculo do número de átomos de Cs-137 contidos nesse elemento ( $R_{OT}$ ) utilizou-se o fator de similaridade S com um desvio de 6,7%. Além disso há a contribuição da incerteza nas secções de choque médias.

## VI. CONCLUSÃO

A tabela VI.1 apresenta os valores de queima do U-235, U-238, Pu-239 e formação do Pu-239 calculados pelo método não destrutivo de espectrometria gama usando detector Ge(Li) (este trabalho) e um detector NaI(Tl)<sup>(30)</sup> e pelo método de energia térmica (COURP/AOMRP).

Pode ser observado que os valores de queima obtidos neste trabalho, para o IEA-14, estão em boa concordância com os outros valores previamente obtidos. Mas, há uma disparidade com os valores calculados pelo COURP/AOMRP para o elemento combustível IEA-80. Apesar da razão dessa disparidade ainda não estar estabelecida, uma reavaliação dos cálculos feitos usando o método de energia térmica empregado atualmente é aconselhável.

O objetivo deste trabalho foi atingido, uma vez que os sistemas implantados para a medida de queima dos elementos combustíveis do IEA-R1 funcionam perfeitamente. Os desvios nos cálculos da queima dos elementos analisados estão de acordo com os apresentados na literatura. Em relação à otimização do uso dos elementos combustíveis, os valores de queima em porcentagem de massa obtidos neste trabalho foram:  $Q(\text{IEA-14}) = (0,0020 \pm 0,00014)\%$  e  $Q(\text{IEA-80}) = (13,05 \pm 1,31)\%$ . Esses resultados indicam que o nível de queima atualmente utilizado pode ser aumentado sem prejudicar os elementos combustíveis, para os quais um valor máximo de 40% é permitido.

Elemento	Calculado por	Q(U-235) g	Q(U-238) g	F(Pu-239) g	Q(Pu-239) g
	COURP	$2,63 \times 10^{-3}$ *	-	-	-
IEA-14	SOARES	$(5,3 \pm 0,8) \cdot 10^{-3}$	$(2,7 \pm 0,7) \cdot 10^{-4}$	$(2,6 \pm 1,2) \cdot 10^{-4}$	-
	Este trabalho	$(3,22 \pm 0,24) \cdot 10^{-3}$	$(2,15 \pm 0,19) \cdot 10^{-4}$	$(2,05 \pm 0,19) \cdot 10^{-4}$	-
IEA-80	COURP	61,11	-	-	-
	Este trabalho	$24,44 \pm 2,46$	$(7,96 \pm 1,08) \cdot 10^{-2}$	$(7,83 \pm 1,08) \cdot 10^{-2}$	$(1,03 \pm 0,14) \cdot 10^{-2}$

Tabela VI.1- Comparação dos Valores de Queima dos Elementos Combustíveis IEA-14 e IEA-80.

\* Valor mais recente calculado pelo COURP/AOMRP.

## APÊNDICE I

### I.1- MÉTODO DE CÁLCULO DOS PARÂMETROS UTILIZADOS NA OBTENÇÃO DA DENSIDADE DE Cs-137 NOS ELEMENTOS ESTUDADOS

O método de cálculo de alguns parâmetros já foi dado. Mas, para ter-se uma visão do conjunto são dados novamente.

Os parâmetros  $F_T$ ,  $n_{ex}$ ,  $n$ ,  $S$  fator de transmissão de uma placa, eficiência intrínseca, eficiência global e fator de similaridade respectivamente, foram calculados usando-se os valores de contagens obtidos como explicado no ítem III.3. O  $F_T$  também foi calculado usando-se dados da literatura e do fabricante. O fator de transmissão do revestimento ( $F_r$ ) foi calculado com dados fornecidos pelo fabricante e da literatura, o fator de autoabsorção ( $F_{ab}$ ) foi calculado com os valores obtidos para  $F_T$  e  $F_r$ , e os valores do fator de transmissão do filtro de chumbo ( $F_{pb}$ ) e do fator de correção para o decaimento do Cs-137 ( $f_c$ ) foram calculados com dados da literatura.

#### - Cálculo do Fator de Transmissão por Placa ( $F_T$ )

Os valores experimentais de  $F_T$  foram obtidos só para o IEA-14 usando-se fontes padrões e calculados através da equação:

$$C_{f+e} - C_e = C_f \times e^{-ky} \quad (A.1)$$

onde

$C_{f+e}$  = contagem devido a fonte e o elemento combustível

$C_e$  = contagem devido ao elemento

$C_f$  = contagem devido a fonte

$e^{-ky}$  = fator de transmissão para  $k$  placas sobre a fonte

O valor teórico de  $F_T$  foi calculado usando-se a equação

$$F_T = e^{-\mu_L x_L \rho_L} \cdot e^{-\mu_{Al} x_{Al} \rho_{Al}} \quad (A.2)$$

onde

$L$  - significa liga urânio-alumínio

$\mu_z$  - coeficiente de absorção do material  $z$  ( $\text{cm}^2/\text{g}$ )

$x_z$  - espessura de  $z$  (cm)

$\rho_z$  - densidade de  $z$  ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )

sendo  $\mu_L$  calculado por:

$$\mu_L = \left( \frac{\text{porcentagem em}}{\text{massa de U}} \times \text{coeficiente de} \right) + \left( \frac{\text{porcentagem em}}{\text{massa de Al}} \times \text{coeficiente de} \right)$$

absorção do U)      absorção do Al)

e  $\rho_L$  foi calculada por interpolação linear dos valores de  $\rho_L$  tirados de Kaufmann<sup>(20)</sup>. Os valores das outras densidades usadas nos cálculos foram tirados da referência<sup>(31)</sup>, e os valores de  $\mu_U$  e  $\mu_{Al}$  para  $E_\gamma = 661,6$  keV são tirados de Conner<sup>(6)</sup>

Os valores teóricos  $F_T$ (IEA-14) e  $F_T$ (IEA-80) e o valor médio de  $F_T$ (IEA-14) experimental são dados na Tabela A.1.

Elemento	$F_T$ (teórico)	$\bar{F}_T$ (experimental)
IEA-14	$0,961 \pm 0,001$	$0,955 \pm 0,036$
IEA-80	$0,966 \pm 0,001$	-

Tabela A.1- Comparação dos Valores Calculados para  $F_T$ .

- Cálculo da Eficiência Intrínseca do S.I. ( $\eta_{ex}$ )

Ainda que não usada nos cálculos de queima, para fins de comparação com o valor da  $\eta_{ex}$  [NaI(Tl)] anteriormente obtida por Soares<sup>(30)</sup>, a  $\eta_{ex}$  [Ge(Li)], foi calculada para quatro distâncias fonte-detector, para uma fonte puntiforme de Cs-137, usando a relação A.3.

$$C = A \cdot \epsilon \cdot \eta_{ex} \cdot F_g \cdot T \quad (A.3)$$

onde

C = contagem da fonte de Cs-137

A = atividade da Fonte de Cs-137

$\epsilon$  = fração de gamas emitidos com a energia de 661,6 keV por decaimento do Cs-137

$F_g$  = fator geométrico

T = tempo de contagem.

O  $F_g$  foi calculado usando a fórmula de Burtt<sup>(4)</sup>, considerando a fonte puntiforme.

- Cálculo da Eficiência Global do S.I. ( $\eta$ )

Foram feitas medidas para três distâncias da fonte de Ag-110m ao detector (Ítem III.3) para o cálculo de  $\eta$  [Ge(Li)], cuja definição é dada no Ítem IV.2, página 57. O cálculo foi feito através da equação A.4.

$$\eta = \frac{C}{A \cdot \epsilon \cdot T} \text{ (cm}^2\text{)} \quad (A.4)$$

onde

- C = contagem no fotopico para a energia considerada  
 T = tempo de contagem  
 e = fração de gamas emitidos por decaimento da Ag-110m para cada energia  
 A = atividade da fonte de Ag-110m em  $\mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ .

Os valores obtidos para  $\eta(E)$  são dados na Tabela IV.5. Com esses valores foi feito um ajuste por mínimos quadrados e calculado o valor de  $\eta(661,6 \text{ keV})$ .

- Cálculo do Fator de Similaridade (S)

Para o cálculo do S definido como:

$$S = \frac{\text{contagem obtida no S.I}}{\text{contagem obtida no S.II}} \quad (\text{A.5})$$

foram feitas medidas com o IEA-14 nos dois sistemas. A constância do S é verificada através de medidas feitas em três posições ao longo do elemento e é mostrada na Tabela IV.6.

- Cálculo do Fator de Transmissão do Revestimento de uma Face da Parte Ativa de uma Placa, para os Raios Gama do Cs-137( $F_T$ )

O valor do  $F_T$  foi calculado usando a equação A.6.

$$F_T(661,6 \text{ keV}) = e^{-(\mu\rho x)_{Al}} \quad (\text{A.6})$$

onde

- $\mu$  e  $\rho$  - são tirados das referências (6) e (31) respectivamente  
 $x$  - espessura de uma face do revestimento(fornecida pelo fabricante).

Os valores calculados para  $F_T$  são:

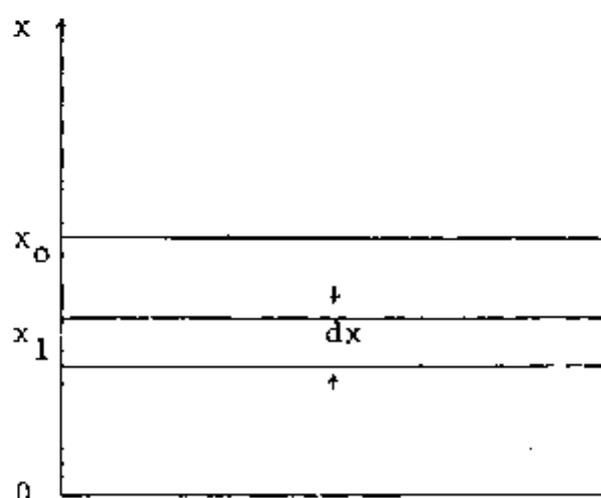
$$F_T(\text{IEA-14}) = 0,9924 \pm 0,0005$$

$$F_T(\text{IEA-80}) = 0,9898 \pm 0,0005$$

- Cálculo do Fator de Autoabsorção da Parte Ativa de uma Placa, para os Raios Gama do Cs-137 ( $F_{ab}$ )

Seja uma placa emissora de radiação gama, de espessura  $x_0$ , com atividade específica constante (independente da posição). Se o número total de contagens registrada é  $C_0$  para uma fonte fina de mesma intensidade, então a contagem ( $dC$ ) devido a uma fatia de espessura  $dx$  é:

$$dC = \frac{C_0}{x_0} dx e^{-\mu(x_0 - x_1)} \quad (\text{A.7})$$



Integrando a equação A.7 para  $0 \leq x \leq x_0$ , temos que a contagem obtida será:

$$C = C_0 \frac{(1 - e^{-\mu x_0})}{\mu x_0} \quad (\text{A.8})$$

O  $F_{ab}$  é dado por:

$$F_{ab} = \frac{C}{C_0} = \frac{1 - e^{-\mu x_0}}{\mu x_0} \quad (A.9)$$

Para o cálculo de  $\mu x_0$  devemos lembrar que a radiação gama atravessa totalmente cada placa do elemento combustível, então, o  $F_T$  já obtido pode ser escrito como:

$$F_T = F_R^2 e^{-\mu x_0} \quad (A.10)$$

O  $F_R$  é elevado ao quadrado uma vez que no seu cálculo só foi considerada a espessura de uma face do revestimento.

Com os valores de  $F_T$  e  $F_R$  na equação A.10 determinamos  $\mu x_0$  que colocado na equação A.9 nos fornece os valores de  $F_{ab}$ .

$$F_{ab}(\text{IEA-14}) = 0,9881 \pm 0,0005$$

$$F_{ab}(\text{IEA-80}) = 0,9930 \pm 0,0005$$

#### - Cálculo do Fator de Transmissão para o Filtro de Chumbo para os Raios Gama do Cs-137 ( $F_{pb}$ )

O valor do  $F_{pb}$  foi calculado através da equação A.11

$$F_{pb}(661,6 \text{ keV}) = e^{-(\mu \rho x)_{pb}} \quad (A.11) \\ = 0,4011$$

onde

$\mu$  e  $\rho$  - são tirados das referências <sup>(6)</sup> e <sup>(31)</sup> respectivamente  
mente

$x$  = espessura do filtro usado.

- Cálculo do Fator de Correção para o Decaimento do Cs-137 Durante o Período de Irradiação ( $f_c$ )

Como o erro introduzido é muito pequeno, para facilitar os cálculos a única fonte de Cs-137 considerada foi a fissão do U-235. A densidade de Cs-137, sem considerar decaimento durante um período de irradiação  $t$  é:

$$N_{\text{Cs-137}} = N_{25} \sigma f_{25} \phi Y t \quad (\text{A.12})$$

Para  $i$  ( $i=1,2,\dots$ ) ciclos de irradiação, de períodos  $t$ , temos:

$$N_{\text{Cs-137}} = \sum_i N_{25} \sigma f_{25} \phi Y t_i \quad (\text{A.13})$$

E a densidade de Cs-137, considerando decaimento, durante o período de irradiação  $t$ , e período de resfriamento  $t_r$  é:

$$N_{\text{Cs-137}} = \frac{N_{25} \sigma f_{25} \phi Y}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) e^{-\lambda t_r} \quad (\text{A.14})$$

Para  $i$  ( $i=1,2,\dots$ ) ciclos de irradiação e resfriamento temos:

$$N_{\text{Cs-137}} = \sum_i \frac{N_{25} \sigma f_{25} \phi Y}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_{r_i}} \quad (\text{A.15})$$

dividindo a equação A.13 pela equação A.15 temos:

$$f_c = \frac{\lambda \sum_i t_i}{\sum_i [(1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_{r_i}}]} \quad (\text{A.16})$$

O  $f_c$  foi calculado para  $i$  ciclos de uma semana considerando  $t$  igual a 8 horas por dia, durante 5 dias por semana e  $t_r$  igual a 24 horas por dia durante 2 dias por semana. Os valores de  $f_c$  foram obtidos para um tempo de irradiação de 560 semanas (~ 10 anos), com esses valores foi traçado o gráfico  $f_c \times i$  (semanas), dado na Figura IV.10.

## I.2- CÁLCULO DAS SECÇÕES DE CHOQUE DO U-235, U-238 E PU-239

As secções de choque para os elementos IEA-14 e 80, que têm enriquecimento e dimensões diferentes foram calculadas com o uso do Programa Hammer.

A Tabela A.2 apresenta os dados de entrada fornecidos ao Hammer para os dois elementos combustíveis. Para que o programa tratasse o Pu-239, inicialmente não presente nos elementos combustíveis, uma quantidade considerada como zero pelo Hammer é usada como valor inicial desse elemento.

Os valores das secções de choque são calculados para 53 grupos de energia na faixa rápida, tais grupos são colapsados para apenas 3 de acordo com as faixas de energia dadas na Tabela A.3, e para um grupo térmico (grupo 4 na Tabela A.3). Os valores das secções de choque médias ( $\bar{\sigma}$ ) são calculadas com a relação:

$$\bar{\sigma} = \frac{\sum \sigma_i \phi_i}{\sum \phi_i}$$

onde

$\sigma_i$  = secção de choque para o grupo  $i$

$\phi_i$  = fluxo relativo para o grupo  $i$

Os valores das secções de choque e dos fluxos relativos dos 4 grupos de energia calculados para os elementos IEA-14 e 80 são dados na Tabela A.4. São dados também os valores médios ponderados das secções de choque.

Elemento Combustível	Região 1 Espessura da Liga (mm)	Região 2 Espessura da Placa (mm)	Região 3 Espessura da Célula (mm)	Fração em Massa do U-235 (%)	Fração em Massa do U-238 (%)	Fração em Massa do Pu-239 (%)	Fração em Massa do Alumínio (%)	Densidade da Liga g/cm <sup>3</sup>
IEA-14	0,609	1,37	4,14	8,58	34,33	$<10^{-7}$	57,09	4,14
IEA-80	0,508	1,52	4,41	17,31	<del>15,05</del> 1,30	$<10^{-7}$	81,39	3,18

Tabela A.2- Dados Relativos aos Elementos Combustíveis para Cálculo das Seções de Choque.

Grupos de Energia	Energia Mínima (ev)	Energia Máxima (ev)
1	$8,2085 \cdot 10^5$	$10^7$
2	$5,5308 \cdot 10^3$	$8,2085 \cdot 10^5$
3	0,6248	$5,5308 \cdot 10^3$
4 (térmico)	$2,53 \cdot 10^{-4}$	0,6248

Tabela A.3- Grupos de Energia Definidos para as Secções de Choque pelo Hammer.

Grupos de Energia	Elemento Combustível IEA-14												Elemento Combustível IEA-80											
	↓	U-235			U-238			Pu-239			↓	U-235			U-238			Pu-239						
		Relativo	$\sigma_a$	$\sigma_f$	$\sigma_a$	$\sigma_f$	$\sigma_a$	$\sigma_f$	Relativo	$\sigma_a$		$\sigma_f$	Relativo	$\sigma_a$	$\sigma_f$	$\sigma_a$	$\sigma_f$	Relativo	$\sigma_a$	$\sigma_f$				
1	7,278	1,3	1,2	0,47	0,41	2,1	2,0	6,896	1,3	1,2	0,47	0,41	2,1	2,0	6,896	1,3	1,2	0,47	0,41	2,1	2,0			
2	7,420	2,1	1,6	0,25	$0,40 \cdot 10^{-3}$	2,3	1,8	6,914	2,1	1,6	0,25	$0,41 \cdot 10^{-3}$	2,3	1,8	6,914	2,1	1,6	0,25	$0,41 \cdot 10^{-3}$	2,3	1,8			
3	6,551	38,2	25,0	9,21	0	50,4	29,1	6,075	37,8	24,8	26,43	0	50,4	29,1	6,075	37,8	24,8	26,43	0	50,4	29,1			
4	10,509	481,8	412,4	1,99	0	985,8	679,12	8,864	466,8	399,5	1,9	0	985,8	679,12	8,864	466,8	399,5	1,9	0	985,8	679,12			
Valor Médio	-	$168^{\pm 8}$	$142^{\pm 7}$	$2,7^{\pm 0,2}$	$(9,4^{\pm 0,9}) \cdot 10^{-2}$	$337^{\pm 16}$	$231^{\pm 11}$	-	$152^{\pm 7}$	$129^{\pm 6}$	$6,3^{\pm 0,6}$	$(9,9^{\pm 0,0}) \cdot 10^{-2}$	$313^{\pm 15}$	$214^{\pm 10}$	-	$152^{\pm 7}$	$129^{\pm 6}$	$6,3^{\pm 0,6}$	$(9,9^{\pm 0,0}) \cdot 10^{-2}$	$313^{\pm 15}$	$214^{\pm 10}$			

Tabela A.4 - Valores das Seções de Choque e dos Fluxos Relativos Calculados pelo Hammer e Valores Médios Poderados.

1.3- MEDIDAS REALIZADAS PARA VERIFICAR A HOMOGENEIDADE DA FONTE DE AG-110M DE 25,4MM DE DIAMETRO.

Para verificar se a fonte é homogênea foram feitas três medidas em três linhas diametrais, sendo uma medida central e duas em posições equidistantes do centro, como indica a Figura A.1.

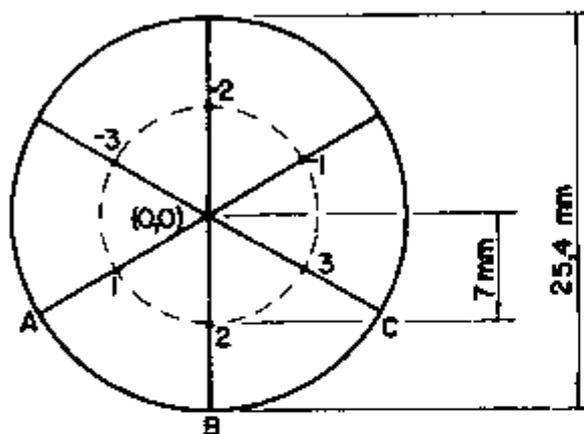


Figura A.1- Posição das Medidas para Verificar a Homogeneidade da Fonte de Ag-110m.

Dentro da estatística de contagem, a contagem é constante ( $C=61350 \pm 247$ ), então, a fonte de Ag-110m foi considerada homogênea.

## APÊNDICE II

### TESTES REALIZADOS PARA VERIFICAR O FUNCIONAMENTO DOS SISTEMAS DE MEDIDAS

Sempre que trabalhamos com um sistema de medidas precisamos verificar se o sistema apresenta defeito ou não. Existem vários métodos para comprovar a concordância entre a observação e a hipótese.

Nos testes que realizamos a hipótese sempre foi do bom funcionamento do sistema. Considerando a distribuição das contagens obtidas como uma distribuição normal, foram utilizados dois métodos para comprovar a hipótese: o teorema do limite central e o teste do  $X^2$ .

#### - Teorema do Limite Central (T.L.C.)<sup>(24)</sup>

Sendo  $C_i$  o valor da  $i$ -ésima contagem obtida em um número  $N$  de medidas realizadas, do T.L.C. temos que se

$$P\{|\bar{C} - \Delta C \leq C_i \leq \bar{C} + \Delta C\} = 68,3\%$$

onde

$\bar{C}$  = valor médio  
 $\Delta C$  = desvio padrão

então a hipótese é aceita como verdadeira.

Esse teste foi aplicado todo início de operação, e os resultados obtidos levaram a aceitar a hipótese.

- Teste do  $\chi^2$ 

Para confirmar os resultados da aplicação do T.L.C. foi feito o teste do  $\chi^2$ .

Para um certo número N de medidas realizadas de valores  $C_i$ , calcula-se  $\chi^2$  com a relação:

$$\chi^2 = \frac{\sum_i (C_i - \bar{C})^2}{(\Delta C)^2}$$

O valor assim obtido é comparado com valores tabelados. Na tabela da distribuição  $\chi^2$  estão relacionados valores da probabilidade P de se obter certos valores de  $\chi^2$  para f graus de liberdade (neste caso  $f = N-1$ ).

Um valor muito pequeno de P leva a suspeitar da existência de algum defeito no sistema de contagem. Do mesmo modo um valor muito alto de P indica um acordo muito perfeito, o que também leva a suspeitar de algum vício sistemático no sistema de contagem. Na prática, considera-se um bom funcionamento do sistema para P entre 5% e 95% (10,22).

Para os dois sistemas de medidas (S.I e S.II) obtivemos os seguintes valores de  $\chi^2$  para  $N = 10$ :

$$\chi^2 = 11,81 \quad (\text{S.I})$$

$$\chi^2 = 12,05 \quad (\text{S.II})$$

Das tabelas da distribuição de  $\chi^2$  temos:

$$\left. \begin{aligned} P(\chi^2_9 = 14,7) &= 0,1 \\ P(\chi^2_9 = 11,4) &= 0,25 \end{aligned} \right\} (10)$$

$$P(\chi^2_9 = 12,24) = 0,20 \quad (2)$$

Portanto, temos que o valor de P para S.I e S.II está entre 20 e 25%, assim é considerada válida a hipótese de bom funcionamento dos sistemas.

## REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1 - ARIENNA, A. et alii. Experimental and theoretical determination of burn-up and heavy isotope content in a fuel assembly irradiated in the Carigliano. Brussels, Commission of the European Communities, 1971. (EUR-4638i).
- 2 - BOX, G.E.P.; HUNTER, W.G.; HUNTER, J.S. Statistics for experiments and introduction to design data analysis and model building. New York, John Wiley, 1978.
- 3 - BULOVIC, V.F. Non-destructive determination of nuclear fuel burnup by measuring the gamma radiation of fission products in irradiated uranium oxide. J. Radioanalyt. Chem., 4:99-107, 1970.
- 4 - BURTT, B.P. Absolute beta counting. Nucleonics, 5:28-43, 1949.
- 5 - CHATFIELD, C. Statistics for technology. London, Chapman and Hall, 1978.
- 6 - CONNER, A.L.; ATWATER, H.F.; PLASSMANN, E.H.; MCCRAY, J.H. Gamma-ray attenuation coefficient measurements. Phys. Rev. A. Ser. 3, 1(3):539-44, 1970.
- 7 - DIETZ, L.A. & PACHUCKI, C.F.  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{134}\text{Cs}$  half-lives determined by mass spectrometry. J. Inorg. Nucl. Chem., 35:1769, 1973.
- 8 - DIGGLE, N.R. & BLACKADDER, W.H. Gamma scanning for burnup. Nucleonics, 23(3):71-4, 1975.
- 9 - EDWARDS, R.R. A review of recent studies of nondestructive assay methods for irradiated nuclear fuel. Nucl. Appl., 4:245-59, 1968.
- 10 - FISHER, R.A. Metodos estadísticos para investigadores. Madrid, Aguilar, 1949.
- 11 - FUDGE, A.J. A review of experimental methods for the determination of nuclear fuel burn-up physics. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Reactor burn-up physics: proceedings of an international conference on..., held in Vienna, 12-16 July, 1971. Vienna, 1973. p.239-48.

- 12 - FUDGE, A.J. & FOSTER, E. Procedures for the determination of burn up by chemical methods and nuclear data requirements in burn-up calculations. In: BRITISH NUCLEAR ENERGY SOCIETY. Chemical nuclear data, measurements and applications, proceedings of the International conference, held on 20-22 September 1971. 1971. p.65-74.
- 13 - FUDGE, A.J.; FOSTER, E.; MURPHY, L. The nondestructive examination of irradiated nuclear fuel for burn-up by gamma spectrometry with mechanical scanning. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear materials management: proceedings of an international conference on..., held in Vienna, 30 Aug.-3 Sep. 1965. Vienna 1966. p.867-78.
- 14 - HIGATSBERGER, M.J.; HICK, H.; RIMPOLD, K.; WEINZIERL, P. Burn-up determination of nuclear fuel by high resolution gamma spectroscopy. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy, proceedings of the 3rd. international conference on..., held in Geneva 31 Aug-9 Sep. 1964. V. 9. Reactor materials. New York 1965. p.577-82.
- 15 - HILLER, S. Gamma-spectrometric burn-up determination in reactor fuels rods. Kerntechnik, 12(11):485-90, 1970.
- 16 - HSUE, S.T. Methods for the non-destructive assay of irradiated nuclear fuels for safeguards. At. Energy Rev., 16(1):89-128, 1978.
- 17 - INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES. Relatório de análise segurança do IEA-RI modificado. 1970.
- 18 - JOHANSSON, E. Some burn-up experiments in Sweden. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Reactor burn-up physics: proceedings of an international conference on..., held in Vienna, 12-16 July, 1971. Vienna, 1973. p.171-90.
- 19 - KAPLAN, I. Nuclear physics. Reading, Mass., Addison-Wesley, 1955.
- 20 - KAUFMANN, A.R. Nuclear reactor fuel elements, metallurgy and fabrication. New York, Interscience, 1962. p.62.
- 21 - LAVI, N.  $^{169}\text{Yb}$  and  $^{110}\text{Ag}^m$  as efficiency calibration standards for Ge(Li) detectors. Nucl. Inst. Meth., 107:197-8, 1973
- 22 - MAFRA, O.Y. Técnicas e medidas nucleares. São Paulo, Bluecher, 1973.

- 23 - MARION, J.B.  $\gamma$ -ray calibration energies. Nucleonics, 18(11):184, 1960.
- 24 - MARTIN, B.R. Statistics for physicists. London, Academic Press, 1971.
- 25 - MEEK, M.E. & RIEER, B.F. Compilation of fission product yields. San Jose, Calif. General Electric Co., Atomic Power Equipment Dept., 1974. (NEPO-17154-1).
- 26 - ONUSIC JR., J. Possibilidades teóricas de cálculo do programa de computação NUMER. São Paulo, 1976. (Dissertação de Mestrado, Instituto de Energia Atômica).
- 27 - PHILLIPS, J.R.; WATERBURY, G.R.; VANESBORGH, N.E.; MARSHALL, T.K. Qualitative determination of fission products in irradiated fuel pins using nondestructive gamma scanning. Anal. Chem., 47(1): 71-5, 1975.
- 28 - RASMUSSEN, N.C.; SOVKA, J.A.; MAYMAN, S.A. The nondestructive measurement of burn-up by gamma-ray spectroscopy. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Nuclear materials management: proceedings of a conference on..., held in Vienna, 30 Aug-3 Sep. 1965. Vienna 1966. p.829-49.
- 29 - SANZ, A.T. Instrumentação nuclear. Madrid, Junta de Energia Nuclear 1970.
- 30 - SCARES, A.J. Determinação da queima de elementos combustíveis do IEA-R1 pelo método não destrutivo de espectrometria gama. São Paulo, 1977. (Dissertação de mestrado, Instituto de Energia Atômica).
- 31 - TIPTON, JR., C.R. Reactor handbook. 2.ed. New York, Interscience, 1960. V.1.
- 32 - TZOU, C.K., YANG, C.M. Nondestructive burn up determination by gamma-ray spectroscopy. Nucl. Technol., 24(2):246-51, 1974.
- 33 - TSURUTA, H.; SUZAKI, T.; MATSUMURA, S. Profiles of activity ratios of fission products, Cesium-134, Cesium-137 and ruthenium-106 in low enriched  $PuO_2$ - $UO_2$  fuel assemblies. J. Nucl. Sci. Technol., 14(1):43-53, 1977.

- 34 - CRSD, I.; ROȘEAN, E.; FARCASIU, O.M.; STANESCU, S.P.; DUMITRESCU, R.; IONESCU, V. Non-destructive burn-up verification of EK-10 fuel by Ge(Li) gamma-ray spectrometry. Rev. Roum. Phys., 21(6): 627-31, 1976.
- 35 - WEAST, R.C. ed. Handbook of chemistry and physics. Cleveland, Ohio, CRC, 1977/1978.
- 36 - ZADWACH, G. Katalog von Ge(Li)  $\gamma$ -Spektren. Jülich, Kernforschungsanlage, 1973. (JUL-914).