



BR 9127482  
INIS-BR--2717

### 3º Congresso Geral de Energia Nuclear

22 a 27 de abril de 1990

#### ANAIS - PROCEEDINGS

#### DETERMINAÇÃO DA QUANTIDADE DE U-235 EM ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS NÃO IRRADIADOS COM O COLAR DE COINCIDÊNCIA DE NEUTRONS.

M. Candida M. de Almeida (Lab. Salvaguardas - C.N.E.N.)  
H. O. Menlove (Los Alamos National Lab. E.U.A.)  
M. A. S. Marzo (Div. Salvaguardas - C.N.E.N.)  
S. G. de Almeida (Lab. Salvaguardas - C.N.E.N.)  
L. F. Conti (I.R.D. - C.N.E.N.)  
L. P. M. Moita (DEX-III - C.N.E.N.)  
J. R. T. de Paiva (F.E.C. - I.N.B.)

#### SUMÁRIO

A quantidade de U-235 por unidade de comprimento dos elementos combustíveis (E.C.) não irradiados da primeira recarga de Angra-I foi determinada pela técnica do Colar de Coincidência de Neutrons (C.C.N.). Esta, baseia-se na ativação dos E.C. por neutrons de uma fonte AmLi que geram fissão do U-235, cujos neutrons são detectados pelo método de coincidência numa estrutura de polietileno onde se situam 18 detectores de He-3.

Os resultados para as contagens de coincidência no modo ativo (AmLi) tiveram um desvio padrão de 0,7% e, para a massa igual a 1,49% em 1000s de contagem. As exatidões dos diferentes métodos de calibração foram avaliadas e comparadas. Os resultados permitem concluir a consistência dos valores declarados pelo operador.

Este trabalho é parte de uma colaboração técnica entre o Laboratório de Salvaguardas da C.N.E.N. e o Laboratório Nacional de Los Alamos, Estados Unidos.

#### ABSTRACT

The U-235 quantity per length of fresh fuel assemblies of the Angra-I first recharge was determined by Neutron Coincidence Collar technique (N.C.C.). This technique is well-founded in fresh fuel assemblies activation by thermal neutrons from AmLi source to generate U-235 fission neutrons. These neutrons are detected by coincidence method in polyethylene structure where 18 He-3 detectors were placed.

The coincidence counting results, in active mode (AmLi), showed 0,7% to standard deviation and equal to 1,49% to mass in 1000s of counting. The accuracies of different calibration methods were evaluated and compared. The results showed that the operator declared values are consistent.

This evaluation was part of technical-exchange program between Safeguards Laboratory from C.N.E.N. and Los Alamos National Lab., United States.

## 1- INTRODUÇÃO

O desempenho do Colar de Coincidência de Neutrons (C.C.N.) tem sido validado nas análises dos elementos combustíveis (E.C.), não irradiados, do tipo PWR (Pressurized Water Reactor). Este trabalho foi desenvolvido no período de Out/84 a Mai/85 na Fábrica de Elementos Combustíveis (F.E.C.), Resende. As medidas foram realizadas pelos inspetores de salvaguardas da CNEN durante 6 visitas à instalação (F.E.C.) (5).

O C.C.N. utiliza como fonte de neutrons,  $AmLi$ , e o processo de contagem é a coincidência para a determinação da quantidade de U-235 nos E.C.. A quantidade de U-238 é determinada pela contagem de coincidência passiva dos neutrons, ou seja, sem a fonte  $AmLi$ , gerados pela fissão espontânea deste isótopo. Publicações técnicas (1-3) descrevem detalhadamente o C.C.N. e sua aplicação em E.C. do tipo PWR e BWR (Boiling Water Reactor).

Neste trabalho foram utilizadas condições experimentais típicas aos trabalhos de inspeção de rotina nas diferentes instalações. As condições incluem:

- montagem e desmontagem do C.C.N. a cada visita;
- alta temperatura e umidade;
- grandes flutuações na alta voltagem da F.E.C..

Todos os E.C., num total de 40, foram medidos e os resultados são apresentados nesta publicação.

## 2- METODOLOGIA EXPERIMENTAL

### 2.1- INSTRUMENTAÇÃO

#### 2.1.1- ELETRÔNICA

A unidade eletrônica (U.E.) do C.C.N. é a mesma utilizada no "High Level Neutron Coincidence Counter" (H.L.N.C.C.) (4). Esta unidade é conectada à calculadora HP-97 para a transferência e análise das contagens obtidas através de um "software" apropriado. Os ajustes utilizados na U.E. foram: HV = 1500V (7,5), Discriminador = 1,5V (3), "Gate" = 64  $\mu$ s.

#### 2.1.2- A FONTE DE NEUTRONS

A fonte utilizada no presente trabalho foi a MRC- $AmLi$ -118, contida em uma cápsula dupla de aço inoxidável, de atividade 0,93 Ci de  $Am-241$  na forma  $AmO_2$  e taxa de emissão de  $5,3 \times 10^4$  n/s.

A dose recebida de radiação da fonte no C.C.N. foi menor que a dos E.C. (1 mRem/h).

#### 2.1.3- O ARRANJO EXPERIMENTAL

A figura 2.1 mostra a estrutura de polietileno que envolve os E.C., de geometria quadrangular, onde estão localizados os detectores proporcionais de  $He-3$  e o suporte da fonte  $AmLi$ .

Características:

Modelo do Colar: LANL-2

Espessura do polietileno: 9,3 cm

Detectores: 18 de He-3 da marca Reuter-Stokes, Modelo RS-p4-0810

## 2.2- OS ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS (E.C.)

Arranjo geométrico: 16 \* 16 Varetas de UO<sub>2</sub> ( 3,3% U-235) num total de 235

Comprimento ativo: 3658 mm

Revestimento: Zircaloy-2

Tipo: PWR

## 2.3- ETAPAS DE MEDIDAS (5)

### 2.3.1- ROTINA

Primeiro, fez-se o teste de funcionamento da U.E. (4), logo após a montagem do equipamento. As medidas de ruído de fundo tiveram uma duração de 100s a cada ciclo; medidas no modo passivo e no modo ativo (com AmLi) 200s cada ciclo, num total de 5 ciclos. Os resultados das taxas de coincidência encontram-se na tabela 3.1.

### 2.3.2- VARREDURA

Foi realizado uma varredura ("scanning") com o C.C.N. nos E.C. com a finalidade de determinar a região ativa e comparar com a declarada pelo operador da F.E.C.. Estimou-se também a altura ideal dos E.C. em relação ao carro-suporte do C.C.N. para proceder-se às medidas, garantindo que estavam sendo feitas na região ativa (onde se encontravam as pastilhas de UO<sub>2</sub> (3,3%) nos E.C.).

## 2.4- CALIBRAÇÃO

### 2.4.1- CALIBRAÇÃO EXTERNA ABSOLUTA

Outros C.C.N. têm sido calibrados usando E.C. da Bélgica (2) (PWR), Suécia (3) (BWR) e Exon, EUA (PWR e BWR). Um intervalo com diferentes enriquecimentos em U-235 foi usado para estabelecer a forma da função de calibração, no caso, potencial, em que se definiu a e b. E, as fontes de AmLi foram medidas para estabelecer a eficiência de contagem relativa. A função de calibração é utilizada quando as respostas do C.C.N. são normalizadas através da fonte AmLi.

O C.C.N. modelo LANL-1 foi normalizado pelo Exon Nuclear Corp. através de dois E.C. similares aos do reator Angra-1. Uma prévia calibração estabeleceu que o C.C.N. modelo LANL-2, deste trabalho, dá uma resposta da taxa de coincidência (R) 1,009 vezes maior que o modelo LANL-1, da Exon. Quanto à posição dos E.C. na sua estrutura quadrática (colar), estes foram encostados à parte frontal onde se localiza a fonte AmLi, aumentando a resposta R em 1,017 vezes em relação à posição central da estrutura.

A massa de U-235 por unidade de comprimento é calculada da função de calibração obtida na primeira calibração do C.C.N. para E.C. tipo PWR, assim:

$$M = K_2 a (K_1 R)^b \quad (2.1)$$

$$a = 0,001344$$

$b = 2,135$

Obteve-se para calibração absoluta levando-se em consideração os fatores de posição e modelo do colar (eficiência corrigida) as seguintes constantes:

$$K_1 = 0,8794$$

$$K_2 = 1,0000$$

#### 2.4.2- MÉTODO DE NORMALIZAÇÃO 1

Em princípio, este seria o procedimento de calibração mais exato pois tanto a eficiência de contagem como a taxa de emissão de neutrons da fonte  $AmLi$  são corrigidas. O E.C. de referência utilizado foi o RWU-1. A cada visita este era medido. Os valores de  $K_2$  determinados encontram-se na tabela 2.1. Foi considerado a média das massas declaradas de todos os E.C. ( $M=35,4g$  U-235/cm),  $K_1 = 1,0000$ . Os resultados encontram-se na Tabela 3.2.

#### 2.4.3- MÉTODO DE NORMALIZAÇÃO 2

Aquí, o valor da densidade linear ( $g^{235}U/cm$ ) é obtida através da primeira calibração (a e b) e a normalização pela fonte  $AmLi$  nas condições operacionais especificadas. As taxas de contagem da fonte são usadas na correção das diferenças a cada visita, onde  $T_0 = 1930$ , então:

$$K_1 = 0,8794 \left( \frac{1930}{T_{new}} \right)^2 \quad (2.2)$$

sendo  $K_2 = 1,000$ .

O fator quadrático é devido as taxas de coincidência serem proporcionais ao quadrado da eficiência. Os resultados de  $K_1$  encontram-se na Tabela 2.1 e os da densidade linear na Tabela 3.3.

#### 2.4.4- MÉTODO DE NORMALIZAÇÃO 3

Neste caso, usou-se para todos os E.C.,  $K_1 = 0,8794$  e  $K_2 = 1,0000$ . Os resultados encontram-se na Tabela 3.4.

### 3- RESULTADOS

Os resultados deste experimento encontram-se nas Tabelas 3.1, 3.2, 3.3 e 3.4.

### 4- CONCLUSÕES

Para os resultados apresentados na Tabela 3.1, a precisão das contagens estatísticas para taxa de coincidência (R) em ciclos de  $5 \times 200s$  foi de 0,7%. Pela Tabela 3.2, verificou-se que esta incerteza aumenta para 1,49% quando se faz o cálculo da densidade linear, que está dentro do esperado:  $b \pm 2,135 (0,70) = 1,49\%$ . O valor médio de densidade linear citado foi 35,61g U-235/cm resultando numa diferença de somente 0,56% em relação ao valor declarado (35,40gU-235/cm).

Para os resultados relativos ao Método 2, Tabela 3.3, o valor médio

Tabela 2 .1: Parâmetros de Calibração.

VISITA							
	1	2	3	4	5	6	Média
RNU-1 (R) *	132.8	136.5	134.1	137.3	135.0	135.6	135.2
$K_2$	0.7719	0.7285	0.7560	0.7189	0.7453	0.7383	0.7430
$T_{new}$	1930	1931	1930	1959	1933	1926	1934
$K_1$	0.8794	0.8785	0.8794	0.8532	0.8762	0.8826	0.8749

\* R = taxa de coincidência.

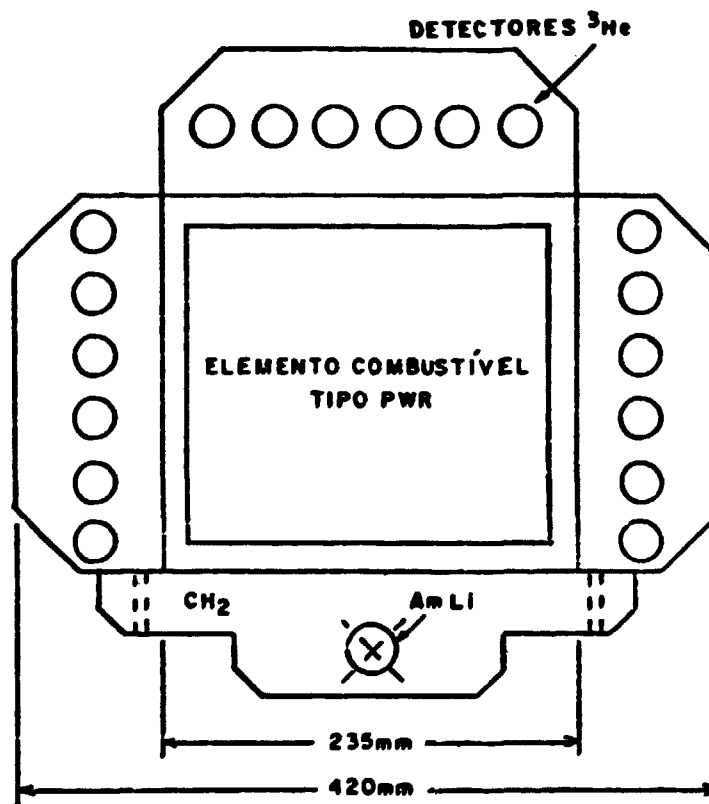


Figura 2.1: Estrutura em polietileno contendo os detectores proporcionais de He-3, denominado de colar .

Tabela 3.1: Taxas de coincidência para os E.C. pertencentes ao Reator Angra-I

Elemento	1	2	3	4	5	6	
Nº	12-12-84	01-23-85	02-04-85	02-26-85	03-11-85	05-07-85	Média
RMU-1	132.8	136.5	134.1	137.3	135.0	135.6	135.2
2	132.9	135.0			136.8		134.9
3	132.7	134.2			134.8		133.9
4	135.9	136.2			134.7		135.6
5	136.5	137.8			135.0		136.4
6	136.1	133.9			135.8		135.3
7	139.1	138.2	136.2		135.4	134.6	136.7
8			136.2				136.2
9	134.5		134.5				134.5
10			137.3				137.3
11			135.9			137.5	136.7
12			138.7			135.1	136.3
13			134.6				134.6
14			135.9				135.9
15			135.5				135.5
16			133.2				133.2
17			132.5			134.5	133.5
18			135.1				135.1
19			135.5				135.5
20				137.4			137.4
21				138.8		135.9	137.4
22				138.2			138.2
23				135.0			135.0
24				137.1			137.1
25				136.6			136.6
26				135.5			135.5
27				136.3			136.3
28				137.9			137.9
29				135.9			135.9
30				136.9			136.9
31				138.8		134.2	136.5
32				137.4			137.4
33				136.4			136.4
34					135.2		135.2
35					134.8		134.8
36					133.9		133.9
37					135.2		135.2
38					136.1		136.1
39					136.4		136.4
40					136.0		136.0
Média	134.8	136.2	135.1	137.1	135.3	135.3	135.9
	± 2.3	± 1.4	± 1.8	± 1.1	± 1.0	± 1.1	± 1.2

\* Unidade: Nº de neutrons em coincidência / segundo,

Tabela 3.2: Resultados da densidade linear (g/cm<sup>2</sup>U-235) usando o Método de Normalização 1.

Elemento Combustível	Valor declarado (M <sub>0</sub> )	Resultado do Oclar (M)	Desvio $\left( \frac{\bar{M} - M_0}{M_0} \times 100 \right) \%$
MOU-1	35.40	35.40	—
2	35.42	35.49	+0.20
3	35.42	34.93	-1.38
4	35.46	35.89	+1.21
5	35.60	36.48	+2.47
6	35.63	35.72	+0.25
7	35.63	36.92	+3.62
8	35.60	36.59	+2.78
9	35.53	35.62	+0.25
10	35.55	36.80	+3.52
11	35.54	36.45	+2.56
12	35.54	36.58	+2.93
13	35.42	35.68	+0.73
14	35.39	36.42	+2.91
15	35.41	36.19	+2.20
16	35.38	34.89	-1.38
17	35.34	34.65	-0.02
18	35.30	35.96	+1.87
19	35.26	36.19	+2.64
20	35.25	35.45	+0.57
21	35.24	35.90	+1.87
22	35.27	35.90	+1.79
23	35.33	34.15	-3.34
24	35.39	35.29	-0.28
25	35.36	35.02	-0.96
26	35.31	34.42	-2.52
27	35.30	34.85	-1.27
28	35.31	35.73	+1.19
29	35.39	34.63	-2.15
30	35.45	35.18	-0.76
31	35.44	35.43	-0.03
32	35.45	35.45	0.00
33	35.42	35.91	-1.44
34	35.34	35.51	+0.48
35	35.34	35.29	-0.14
36	35.33	34.79	-1.53
37	35.34	35.51	+0.48
38	35.34	36.02	+1.92
39	35.35	36.19	+2.38
40	35.35	35.96	+1.73
Média	35.40	35.61	$\frac{181}{8} = 1.49\% \pm 0.65\%$ $\frac{8}{8} = 0.65\% \pm 1.77\%$

Tabela 3.3: Resultados da densidade linear (g/cm<sup>2</sup> U-235) usando os parâmetros de calibração do Método de Normalização 2.

Elemento Combustível	Valor declarado (M <sub>0</sub> )	Resultados do Colar (M)	Desvio $\left( \frac{\bar{M} - M_0}{M_0} \times 100 \right) \%$
MMU-1	35.40	35.82	+1.19
2	35.42	35.47	+0.14
3	35.42	35.36	-0.17
4	35.46	36.33	+2.45
5	35.60	36.80	+3.37
6	35.63	36.13	+1.40
7	35.63	37.07	+4.04
8	35.60	36.79	+3.34
9	35.53	35.81	+0.79
10	35.55	36.62	+3.01
11	35.54	37.23	+4.76
12	35.54	37.34	+5.06
13	35.42	35.87	+1.27
14	35.39	36.62	+3.48
15	35.41	36.39	+2.77
16	35.38	35.08	-0.85
17	35.34	35.39	+0.14
18	35.30	36.16	+2.44
19	35.26	36.39	+3.20
20	35.25	35.14	-0.31
21	35.24	36.41	+3.32
22	35.27	35.58	+0.82
23	35.33	33.84	-4.22
24	35.39	34.98	-1.16
25	35.36	34.70	-1.87
26	35.31	34.11	-3.40
27	35.30	34.54	-2.15
28	35.31	35.41	+0.28
29	35.39	34.33	-3.00
30	35.45	34.87	-1.64
31	35.44	35.92	+1.35
32	35.45	35.14	-0.87
33	35.42	34.60	-2.32
34	35.34	35.93	+1.67
35	35.34	35.71	+1.05
36	35.33	35.20	-0.37
37	35.34	35.93	+1.67
38	35.34	36.45	+3.14
39	35.35	36.62	+3.59
40	35.35	36.39	+2.94
Média	35.40	35.76	$\overline{ \delta } = 2.13\% \pm 1.01\%$ $\delta = 1.01\% \pm 2.33\%$



Tabela 3.4: Resultados da densidade linear ( $\text{g/cm}^2$  U-235) usando os parâmetros de calibração do Método de Normalização 3.

Elemento Combustível	Valor declarado ( $M_0$ )	Resultado do Colar ( $\bar{M}$ )	Desvio $\left( \frac{\bar{M} - M_0}{M_0} \times 100 \right) \%$
RMU-1	35.40	36.21	+2.29
2	35.42	36.04	+1.75
3	35.42	35.47	+0.14
4	35.46	36.44	+2.76
5	35.60	35.90	+3.65
6	35.63	36.27	+1.80
7	35.63	37.08	+4.07
8	35.60	36.79	+3.34
9	35.53	35.81	+0.79
10	35.55	36.62	+3.01
11	35.54	37.08	+4.33
12	35.54	37.19	+4.64
13	35.42	35.87	+1.27
14	35.39	36.62	+3.48
15	35.41	36.39	+2.77
16	35.38	35.08	-0.85
17	35.34	34.69	-1.84
18	35.30	36.16	+2.35
19	35.26	36.39	+3.20
20	35.25	37.48	+6.33
21	35.24	37.48	+6.36
22	35.27	37.95	+7.60
23	35.33	36.10	+2.18
24	35.39	37.31	+5.43
25	35.36	37.02	+4.69
26	35.31	36.39	+3.06
27	35.30	36.85	+4.39
28	35.31	37.78	+7.00
29	35.39	36.62	+3.48
30	35.45	37.19	+4.91
31	35.44	36.96	+4.29
32	35.45	37.48	+5.73
33	35.42	36.90	+4.12
34	35.34	36.21	+2.46
35	35.34	35.99	+1.84
36	35.33	35.47	+0.40
37	35.34	36.21	+2.46
38	35.34	36.73	+3.93
39	35.35	36.90	+4.38
40	35.35	36.67	+3.73
Média	35.40	36.57	$\left  \frac{\bar{M}}{\bar{M}_0} \right  = 3.29\% \pm 2.02\%$ $\frac{\bar{M}}{\bar{M}_0} = 3.22\% \pm 2.02\%$

absoluto da massa residual (V.M.A.M.R.) obtido foi de 2,13%, sendo maior que o do Método 1, como também o desvio da densidade linear média, 35,76gU-235/cm, em relação ao valor declarado foi de 1,01%. Este resultado é considerado excelente visto que não foi usado um E.C. de referência e a calibração foi feita em relação a outro C.C.N., LAM-1, da Exon.

Para os resultados relativos ao Método 3, Tabela 3.4, em que não foi feita nenhuma normalização com fonte  $^{252}\text{Cf}$ , o V.M.A.M.R. foi de 3,29%, sendo este resultado satisfatório. O desvio para a densidade linear média em relação ao valor declarado foi de 3,3%.

A medida no modo passivo, teve por finalidade descontar as taxas de coincidência oriundas da fissão espontânea do U-238.

O equipamento C.C.N. apresentou-se muito estável durante os ensaios na P.E.C., apesar das condições de medidas não favoráveis tais como: interrupção de energia e, alta temperatura e umidade.

#### 5- REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- (1) MENLOVE, H.O. Description and Performance Characteristics for the Neutron Coincidence Collar for the Verification of Reactor Fuel Assemblies. Los Alamos Nat. Laboratory, Los Alamos, 1981 [LA - 8939 - MS, ISPO - 142]
- (2) BEETS, C. Optimization of NDA Measurements in Field Conditions for Safe Guard's Purposes. Centre D' Etude de L' Energie Nucleaire, Third Progress, 1982. [BUG553].
- (3) MENLOVE, H.O. e KEDDAR, A. Field Test and Evaluation of the IAEA Coincidence Collar for the Measurement of Unirradiated BWR fuel Assemblies. Los Alamos Nat. Laboratory, Los Alamos, 1982. [LA - 9375 - MS, ISPO - 174].
- (4) KRICK, M.S. e MENLOVE, H.O. The High Level Neutron Coincidence Counter (H LNCC): Users' Manual. Los Alamos Nat. Laboratory, Los Alamos, 1978. [LA - 7779 - M].
- (5) MENLOVE, H.O., et alii. In Plant Test and Evaluation of the Neutron Collar for Verification of PWR Fuel Assemblies at Rosende, Brasil. Los Alamos Nat. Laboratory, Los Alamos, 1985 [LA - 10562 - MS].