

CNEA 497

**Determinación del Quemado
en Combustibles tipo MTR
mediante Espectrometría
Gamma con Cristal de INa(Tl)**

**A. J. Kestelman
S. Ribeiro Guevara**

**Comisión
Nacional
de Energía
Atómica**

INFORME

República Argentina

Buenos Aires, 1988

Kestelman, A.J.

Determinación del quemado en combustibles tipo MTR mediante espectrometría gamma con cristal de Ina(Tl) . Buenos Aires, Comisión Nacional de Energía Atómica, 1988.

13 p. 30 cm. (Informe CNEA, 497)

Combustibles nucleares, Quemado de; Espectrometría de rayos gamma. Kestelman, A.J.; Ribeiro Guevara, Sergio

621.039.516.22

539.122.164

Kestelman, A.J.

Determinación del quemado en combustibles tipo MTR mediante espectrometría gamma con cristal de Ina(Tl) . Buenos Aires, Comisión Nacional de Energía Atómica, 1988.

13 p. 30 cm. (Informe CNEA, 497)

Combustibles nucleares, Quemado de; Espectrometría de rayos gamma. Kestelman, A.J.; Ribeiro Guevara, Sergio

621.039.516.22

539.122.164

Kestelman, A.J.

Determinación del quemado en combustibles tipo MTR mediante espectrometría gamma con cristal de Ina(Tl) . Buenos Aires, Comisión Nacional de Energía Atómica, 1988.

13 p. 30 cm. (Informe CNEA, 497)

Combustibles nucleares, Quemado de; Espectrometría de rayos gamma. Kestelman, A.J.; Ribeiro Guevara, Sergio

621.039.516.22

539.122.164

CNEA 497

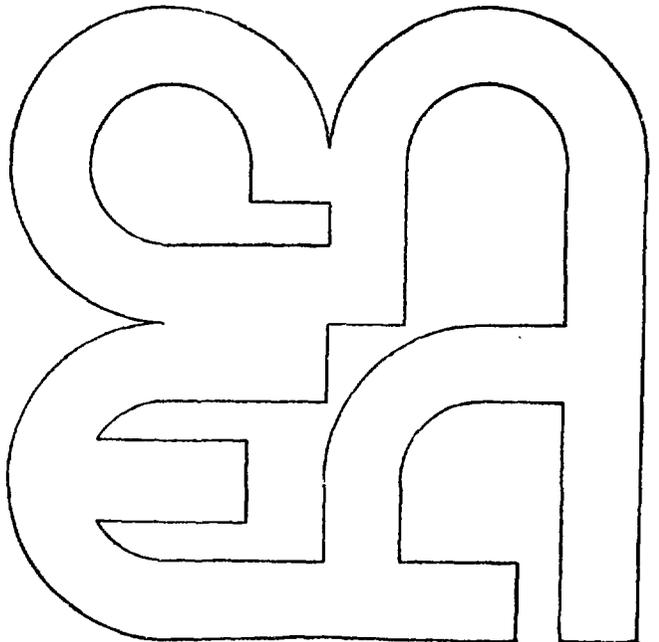
**Determinación del Quemado
en Combustibles tipo MTR
mediante Espectrometría
Gamma con Cristal de INa(Tl)**

**A. J. Kestelman
S. Ribeiro Guevara**

**Comisión
Nacional
de Energía
Atómica**

INFORME

República Argentina



Buenos Aires, 1988

INIS CLASSIFICATION AND KEYWORDS

E31.00

- BURNUP
- FUEL ELEMENTS
- GAMMA SPECTROSCOPY
- SPENT FUEL ELEMENTS
- MTR REACTOR
- RA-3 REACTOR
- RESEARCH REACTOR
- NAI DETECTORS
- HIGH-PURITY GE DETECTORS

COMISION NACIONAL DE ENERGIA ATOMICA
DEPENDIENTE DE LA PRESIDENCIA DE LA NACION

DETERMINACION DEL QUEMADO EN COMBUSTIBLES TIPO MTR MEDIANTE
ESPECTROMETRIA GAMMA CON CRISTAL DE INa(Tl)

A.J. Kestelman** y S. Ribeiro Cueva***

RESUMEN

Una de las responsabilidades del Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica del reactor RA-6 es determinar el quemado en combustibles tipo MTR. Para ganar experiencia hasta tanto llegue el detector de Germanio hiperpuro (HPGe), con el que se efectuarán las mediciones definitivas, se realizaron mediciones preliminares con un cristal de INa(Tl) . Los elementos combustibles empleados provienen del reactor RA-3, con un decaimiento superior a los 13 años. Por ello, el único pico fotoeléctrico visible es el del Cs-137, dada la baja resolución del INa(Tl) . Después de las mediciones preliminares, se pasó a la medición de los perfiles de quemado, corregida por atenuación. Una vez determinada la eficiencia del detector, se efectuó el cálculo del quemado, dando para el elemento N°144 un valor de $21,6 \pm 2,9$ g a comparar con el evaluado por los operadores que fue de 21,9 g.

ABSTRACT

Determination of the burn-up in fuels of the MTR type by means of gamma spectroscopy with crystal of INa(Tl)

One of the responsibilities of the Laboratory of Analysis by Neutronic Activation of the RA-6 reactor is to determine the burn-up in fuels of the MTR type. In order to gain experience, up to the arrival of the hyperpure Germanium detector (HPGe) to be used in normal operation, preliminary measurements with a crystal of INa(Tl) were made. The fuel elements used are originated in the RA-3 reactor, with a decay superior to the thirteen years. For this reason, the unique visible photoelectric peak is the one of Cs-137, owing to the low resolution of the INa(Tl) . After preliminary measurements, the profiles of burn-up, rectified by attenuation, were measured. Once the efficiency of the detector was determined, the calculation of the burn-up was made; for the element N°144, a value of $21,6 \pm 2,9$ g was obtained to be compared with the value 21,9 g which was the evaluation made by the operators.

* Este trabajo ha sido financiado en parte por el programa de las Naciones Unidas para el Desarrollo, dentro del Proyecto PNUD78/020 "Ingeniería Nuclear" - línea D.

** CNEA - Centro Atómico Bariloche

*** Actualmente en ENACE

1. INTRODUCCION

Una de las responsabilidades del Laboratorio de Análisis por Activación Neutrónica del reactor RA-6 es la determinación del quemado en combustibles tipo MTR a través de espectroscopía gamma de alta resolución mediante el uso de un detector de germanio hiperpuro.

Hasta tanto arribara al Laboratorio el detector HPGe ordenado, y para ganar experiencia previa en las mediciones a realizar, se decidió efectuar mediciones preliminares con un cristal de Ina(Tl) .

Para estos experimentos se contaba únicamente con elementos combustibles (E.C.) provenientes del reactor RA-3 de Ezeiza, con un decaimiento superior a los 13 años. Por esta razón, únicamente se puede pretender ver el pico fotoeléctrico proveniente del Cs-137 , especialmente si se tiene en cuenta la baja resolución del cristal de Ina(Tl) .

2. DISPOSICION EXPERIMENTAL

El E.C. a medir descansa en el fondo de la pileta de decaimiento existente en el subsuelo del RA-6, usando así el agua como blindaje y protección radiológica del personal involucrado en las mediciones.

A unos 0.60 m arriba del nivel de agua de la pileta, se dispuso un carrito que puede moverse según un sistema de ejes x-y en un plano paralelo a la superficie del agua. Sobre este carrito se encuentra el detector de centelleo más cristal de Ina(Tl) con su blindaje de plomo y el preamplificador. Directamente debajo del detector y solidario al carrito se tiene un tubo de aluminio de 4.20 m de largo y 26 mm de diámetro interno el que se encuentra cerrado en su parte inferior donde se aloja un colimador de plomo de 70 mm de largo y cuyo diámetro puede elegirse entre los valores: 2.8, 6.0, 8.0 y 12.0 mm. Aproximadamente 3.60 m de este tubo de aluminio se encuentran debajo del agua.

En la foto de Fig.1 se muestra parte de la pileta, el carrito y la electrónica que se usó en las mediciones.

La Fig.2 muestra la cadena de medición y descripción de los equipos empleados.

3. MEDICIONES PRELIMINARES

a) Se determinó que la repetitividad de la cadena de medición está dentro del $\pm 5\%$ para el área neta del pico de Cs-137 y tiempos típicos de conteo: 500 seg. Para esta medición se eligió la zona central del E.C., donde la actividad es aproximadamente uniforme.

b) Se determinó que la repetitividad en la posición del colimador al mover el carrito, está dentro de ± 0.4 mm. Para esta medición se eligió uno de los extremos del E.C., donde la actividad tiene máxima variación.

Para esta última medición fue obviamente necesario utilizar el colimador más pequeño, 2.8 mm de diámetro, lo que ocasiona una fuerte contribución del background en el espectro, con errores sistemáticos en el cálculo de las áreas bajo el pico fotoeléctrico de hasta el 35%. Para calcular este error en cada caso, se desarrolló un método especial⁽¹⁾.

4. MEDICION DE LOS PERFILES DE QUEMADO

Haciendo referencia a la Fig.3, se midió con el colimador de 2.8 mm el perfil a lo largo del eje z, con el tubo de aluminio perpendicular al plano x-z obteniéndose el perfil de Fig.4. Se ve en este gráfico que estamos claramente resolviendo las 19 placas de que consta cada E.C.

Aunque esta medición no se usó específicamente para la determinación del quemado, el resultado se usó para establecer una hipótesis fundamental: dentro de la precisión de nuestra medición, todas las placas del E.C. han sufrido el mismo grado de quemado. Esto surge del hecho que salvo una de las placas, todas ellas originan picos de aproximadamente la misma altura. La excepción es probablemente debida a errores estadísticos en una zona de muy fuerte variación del contaje con la distancia.

Para la medición de los perfiles a usarse para la determinación experimental del quemado, se usó el colimador de 8.0 mm de diámetro para así obtener mejor estadística en los picos y menor error en las áreas.

Se muestra en la Fig.5, para el E.C. N° 132, el perfil obtenido a lo largo del eje x con el tubo de aluminio perpendicular al plano x-y. Estos perfiles nos dan no sólo la actividad relativa sino también una medida experimental de las dimensiones lineales efectivas del E.C. a ser usadas en el cálculo del quemado.

Se muestra en la Fig.6, para el mismo E.C., el perfil obtenido en el centro del E.C. a lo largo del eje y con el tubo de aluminio perpendicular al plano x-y.

5. CORRECCION DE LAS MEDICIONES POR ATENUACION

En los perfiles medidos según Figs.5 y 6, estamos obteniendo en cada punto, la actividad contribuida por cada una de las 19 placas que componen el E.C. Está claro entonces que la radiación de cada placa se ve por un lado autoatenuada en el combustible de la propia placa y luego por sucesivos espesores de aluminio, agua, aluminio, placa combustible, etc., hasta llegar a la parte superior del E.C. donde nos resta tener en cuenta el espesor de agua entre el E.C. y el tubo de aluminio y luego el espesor de aluminio que cierra el tubo.

Haremos una estimación de esta atenuación, para lo cual es necesario hacer dos hipótesis:

- a) En el sentido del eje z (eje del tubo de aluminio), la densidad de actividad (desintegraciones /seg/cm³) de las 19 placas es la misma para un dado punto (x,y).
- b) La radiación que llega al detector está fuertemente colimada en el sentido del espesor de la placa combustible en estudio (eje z).

La hipótesis a) está justificada en el segundo párrafo de la sección 4.

La hipótesis b) está justificada si se tiene en cuenta que el detector se encuentra a una distancia superior a 4.20 m del E.C. y que aún ignorando el colimador de plomo de 8 mm de diámetro, la radiación está constreñida dentro de un tubo de 26 mm de diámetro, lo que subtiende, en el peor de los casos, un ángulo de 10.6 minutos.

Bajo estas condiciones y refiriéndonos a la Fig.7, es fácil demostrar que la fracción de la radiación gamma emergente de una fuente

de densidad constante, debido a autoatenuación, está dada por:

$$\frac{1 - e^{-\mu_m s}}{\mu_m s} = k_1$$

donde : μ_m = coeficiente de atenuación lineal para el "meat".

La fracción que llega de la placa j a la superficie superior del "meat" de la última placa (la más cercana al tubo de aluminio) del E.C. será:

$$k_1 (e^{-2\mu_{Al} a} e^{-\mu_a b} e^{-\mu_m s})^{19-j} = k_1 K^{19-j}$$

donde hemos llamado

$$K = e^{-2\mu_{Al} a} e^{-\mu_a b} e^{-\mu_m s}$$

siendo

μ_{Al} = coeficiente de atenuación lineal para el Al.
 μ_a = coeficiente de atenuación lineal para el agua.

Refiriéndonos a la Fig.8, vemos que la fracción que llega de la placa j al detector será

$$k_1 K^{19-j} e^{-\mu_{Al} a} e^{-\mu_a c_1} e^{-\mu_{Al} c_2} = k_1 k_2 K^{19-j}$$

Llamando $\rho(x,y)$ a la densidad de actividad de las placas del E.C. (desintegraciones/seg/cm²) en el punto (x,y), tendremos que el contejo del detector (cuentas/seg) debido a la placa j, cuando el colimador se encuentra sobre el punto (x,y), viene dado por:

$$Q_j(x,y) = \rho(x,y) A_j s y \epsilon_j k_1 k_2 K^{19-j}$$

donde:

A_j : área que delimita el colimador sobre la placa j.

y : número de gammas por desintegración.

ϵ_j : eficiencia absoluta para la geometría: detector-placa j.

El contejo debido a las 19 placas, en el punto (x,y) será

$$Q(x,y) = \sum_{j=1}^{19} Q_j(x,y) = \rho(x,y) s y k_1 k_2 \sum_{j=1}^{19} A_j \epsilon_j K^{19-j}$$

Llamando:

l : largo de una placa combustible

w : ancho de una placa combustible

$\bar{\rho}$: valor medio de la densidad de actividad

la actividad total (des/seg) del E.C. debida al Cs-137 vale: $D = 19 l w s \bar{\rho}$.

Como veremos más adelante, a partir de los perfiles medidos anteriormente, podemos obtener un valor promedio \bar{Q} para el contejo del detector, valor que está lógicamente asociado en forma directa con $\bar{\rho}$, según:

$$\bar{Q} = \bar{p} s y k_1 k_2 \sum_{j=1}^{19} A_j \epsilon_j K^{19-j}$$

Obtenemos así la expresión:

$$D = 19 \ell w \frac{\bar{Q}}{y k_1 k_2 \sum_{j=1}^{19} A_j \epsilon_j K^{19-j}} \quad (1)$$

Vemos que para poder evaluar D sólo nos resta medir el producto $A_j \epsilon_j$ y encontrar \bar{Q} a partir de los perfiles ya medidos

Los valores encontrados en nuestro caso para k_1 , k_2 y K son respectivamente: 0.993, 0.943 y 0.951.

6. DETERMINACION DE LA "EFICIENCIA" $A_j \epsilon_j$

La definición de la eficiencia absoluta ϵ (para una dada distancia fuente-detector) de un sistema de contaje, para un rayo gamma de energía E y rendimiento y , está dado por:

$$\epsilon = \frac{Q}{D y} \quad \therefore \quad D = \frac{Q}{y \epsilon}$$

siendo: Q : n° cuentas/seg bajo el pico de energía E .

D : actividad total (desint/seg) de la fuente.

Si se trata de una fuente uniformemente distribuida, de actividad superficial D^* [desint/seg/cm²], vemos que

$$D^* = \frac{D}{S} = \frac{Q}{y \epsilon S}$$

donde S : área de la fuente en cm².

Como hemos supuesto que se trata de una fuente de densidad uniforme, vemos que cualquiera sea el área A de fuente que consideremos (siempre en una geometría de alta colimación), tendremos:

$$D^* = \frac{Q}{y \epsilon A}$$

teniendo ahora Q el significado de contaje por unidad de tiempo cuando el detector "ve" un área A de la fuente.

Vemos entonces que podemos definir (para la distancia fuente-detector elegida) una nueva eficiencia ϵ_s de densidad de fuente superficial, tal que:

$$\epsilon_s = \epsilon A$$

y vemos que esta nueva eficiencia tiene dimensiones de área, y que la podemos determinar experimentalmente a través de:

$$\epsilon_s = \frac{Q}{y D^*}$$

Se fabricó una fuente de Cs-137 de ~2 mCi uniformemente distribuida en un diámetro de 2 cm. Se calibró esta fuente contra una fuente patrón de ~10µCi de Cs-137. Así se encontró:

$$D = 2,15 \text{ mCi} \quad , \quad D^* = 0.684 \text{ mCi/cm}^2$$

Se colocó esta fuente en el extremo del caño de aluminio, a una distancia de 1mm por debajo del colimador de 8mm de diámetro y a 4.220 m del detector. En estas condiciones se obtuvo $Q = (8.44 \pm 0.05)$ cuentas/seg, o sea

$$\epsilon_s^0 = 3.93 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2$$

Debido a que en nuestra disposición experimental, las distancias detector-fuente y colimador-fuente dependen de qué placa de las 19 que constituyen el E.C. se trate, se llevó a cabo un experimento para determinar el comportamiento de ϵ_{s_j} ($= \epsilon_j A_j$) en función de dichas distancias. La Fig.9 muestra esquemáticamente la disposición experimental empleada. En estas mediciones, para cada distancia h fija:

$$h[\text{cm}] \hat{=} 110.5 \quad , \quad 134.9 \quad , \quad 157.2 \quad , \quad 181.4$$

se varió z:

$$z[\text{cm}] \hat{=} 0.1 \quad , \quad 3.4 \quad , \quad 7.3 \quad , \quad 10.2$$

y se encontró a través de estas mediciones, que ϵ_s sigue una ley del tipo:

$$\epsilon_{s_j} = \epsilon_s^0 (0.0228 z_j + 0.995) \left(\frac{422.0}{421.9 + z_j} \right)^2$$

siendo z_j la distancia colimador-placa expresada en cm.

Con esta fórmula estamos ahora en condiciones de calcular la (1) teniendo en cuenta que $A_j \epsilon_j = \epsilon_{s_j}$.

7. CALCULO DEL QUEMADO

Si se tiene una función: $z=F(x,y)$ definida en el intervalo: $a < x < b$; $p < y < q$; y de esta función conocemos

$$\begin{aligned} \text{para el plano } y = \zeta : F(x, \zeta) &= f(x) \\ \text{para el plano } x = \xi : F(\xi, y) &= g(y) \end{aligned}$$

siendo además esta función $g(y)$ la misma (salvo una constante aditiva), cualquiera sea el punto x elegido a lo largo del intervalo (a,b) .

Si además conocemos $F(x,y)$ en el punto (ξ, ζ) , es fácil mostrar que el volumen que encierra la superficie $F(x,y)$ en el intervalo (a,b) , (p,q) está dado por:

$$V = \int_a^b \int_p^q F(x,y) dx dy = [\overline{F(x)} + \overline{g(y)} - F(\xi, \zeta)] (b-a)(q-p)$$

donde $\overline{F(x)}$ y $\overline{g(y)}$ representan los valores medios de las funciones $f(x)$ y $g(y)$ en los intervalos (a,b) y (p,q) respectivamente.

Aplicando este resultado a los perfiles mostrados esquemáticamente en Fig. 10, vemos que podemos escribir

$$\frac{\bar{Q}}{A} = \frac{\bar{P}_x}{A} + \frac{\bar{P}_y}{A} - \frac{Q}{A} \quad \therefore \quad \bar{Q} = \bar{P}_x + \bar{P}_y - Q$$

Como en realidad los perfiles para $x = \text{cte}$ no son idénticos a lo largo de todo el elemento combustible, hemos medido estos perfiles para los siguientes valores de x : 289, 485 y 701 mm y calculamos por lo tanto los respectivos valores de \bar{Q} para tres secciones del E.C., obteniendo el valor del quemado promedio como promedio pesado de estos tres valores.

Una vez calculado \bar{Q} , podemos calcular el quemado, que está dado por:

$$\Delta U = \frac{N_o}{Y N_U^o} m_o f = \frac{N_o (P.A.)}{Y N_{av}} f \quad (2)$$

donde hemos llamado:

- ΔU [gramos] : masa de U-235 que se quemó.
 Y : rendimiento de Cs-137 en la fisión del U-235.
 N_o : número de átomos de Cs-137 existentes al finalizar la irradiación.
 N_U^o : número de átomos de U-235 originales en el E.C.
 m_o : masa original de U-235 en el E.C.
 f : factor de corrección que tiene en cuenta el decaimiento del Cs-137 durante los diferentes periodos de irradiación y diferentes potencias a que fué sometido el E.C.
 $P.A.$: peso atómico del U-235
 N_{av} : número de Avogadro

Usamos para f la siguiente expresión aproximada (2):

$$f = \frac{\lambda \sum_{k=1}^n w_k t_k}{\sum_{k=1}^n w_k e^{-\lambda t_k} (1 - e^{-\lambda t_k})} \quad (3)$$

- λ : constante de desintegración del Cs-137.
 w_k : potencia promedio relativa a que fué sometido el E.C. durante el período t_k ($\sum_{k=1}^n w_k = 1$).
 n : número de periodos de irradiación durante toda la historia de irradiación del E.C.
 t_k : duración del período k .
 τ_k : intervalo de tiempo transcurrido entre el final del periodo k y el final de la irradiación del E.C.

Llamando D_0 la actividad de Cs-137 existente al final de la irradiación y t_c el tiempo transcurrido entre el fin de la irradiación y nuestra medición, tenemos:

$$D = D_0 e^{-\lambda t_c} = \lambda N_0 e^{-\lambda t_c}$$

y a partir de la (1)

$$N_0 = \frac{19 \sum w (\bar{P}_x + \bar{P}_y - Q)}{\lambda \sum_{j=1}^{19} k_1 k_2 \epsilon_{s_j} K^{19-j}} e^{\lambda t_c}$$

expresión con la cual podemos ahora calcular el quemado ΔU a partir de la (2) y la (3).

Teniendo en cuenta que para el E.C. N° 132, $t_c = 15$ años 129 días, se obtuvo a través de las presentes mediciones:

$$\Delta U = (19.7 \pm 2.4) \text{ g}$$

no contándose con datos de los operadores para el quemado de este E.C. por lo que no se pudo comparar.

Para el E.C. N° 144 ($t_c = 13$ años 304 días) se obtuvo:

$$\Delta U = (21.6 \pm 2.9) \text{ g}$$

siendo según los operadores $\Delta U = 21.9 \text{ g}$.

AGRADECIMIENTOS

Se agradece al Ing. E. Scarnichia la fabricación de la fuente de Cs-137, al personal del Taller de Electromecánica y del taller del RA-6 por la construcción del equipo mecánico utilizado.

Se agradece al Dr. J.V. Lolich su participación en las primeras etapas del proyecto.

REFERENCIAS

1. S. Ribeiro Guevara, Determinación del quemado absoluto de elementos combustibles MTR utilizando espectrometría gama. Trabajo Especial, Instituto Balseiro, junio 1937.
2. B.A. Bibichev, V.P. Majorov, Yu.M. Protasenco, P.I. Fedotov, M.A. Sunchugashev, The problem of determining fuel burnup from the Cs-134/Cs-137 activity ratio. Nuclear Safeguards Technology 1978, Vol.I, Proceedings of a Symposium, Vienna, 2-6 October 1978.

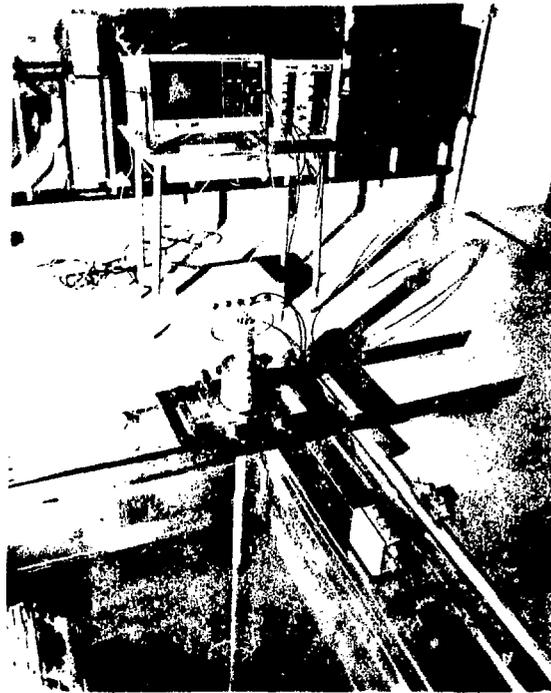


Fig. 1. Aspecto de la pileta y equipo experimental empleado.

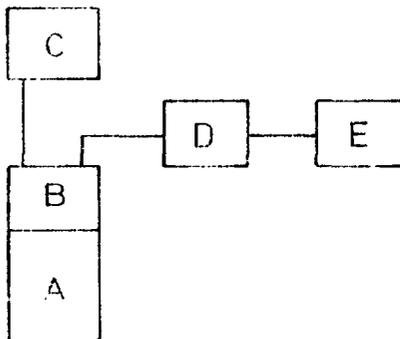


Figura 2

- A. Cristal Blu (11) de 2 x 2 + Fototubo
- B. Preamplificador ORHC 276
- C. Fuente alta tensión BERTAN 342
- D. Amplificador Mech-Tronics 532
- E. Multicanal CAIBERPA Serie 30

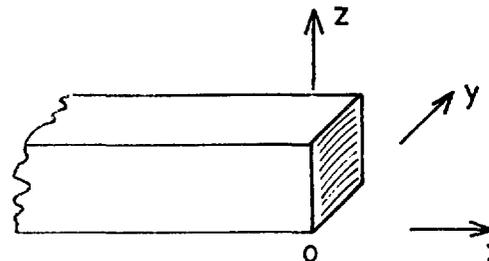


Fig. 3. Vista esquemática de un E.C. indicando los ejes a que hace referencia el texto.

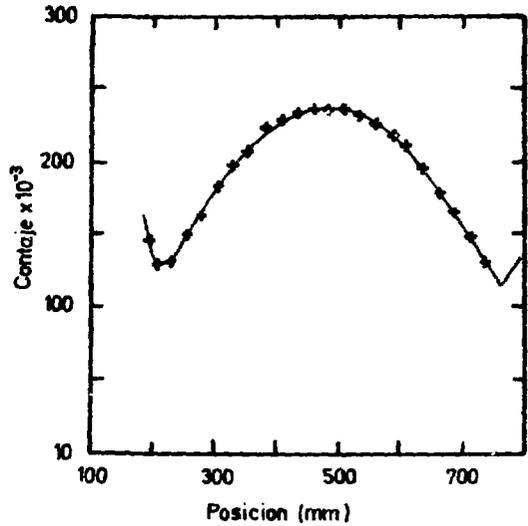
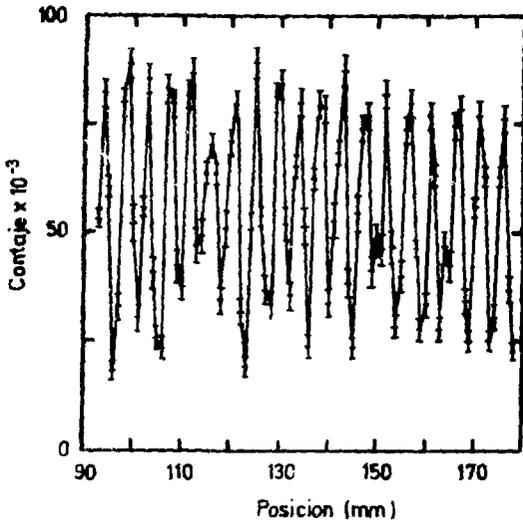


Fig. 4. Perfil quemado 19 placas
Haz radiación según eje y.
Movimiento detector paralelo al eje z .
Tiempo de contaje: 500 seg
Las líneas son para guiar la vista

Fig. 5. Perfil quemado longitudinal
Haz radiación según eje z.
Movimiento detector paralelo al eje x.
Tiempo de contaje: 200 seg
Se muestra la curva ajustada para el cálculo de \bar{P}_x .

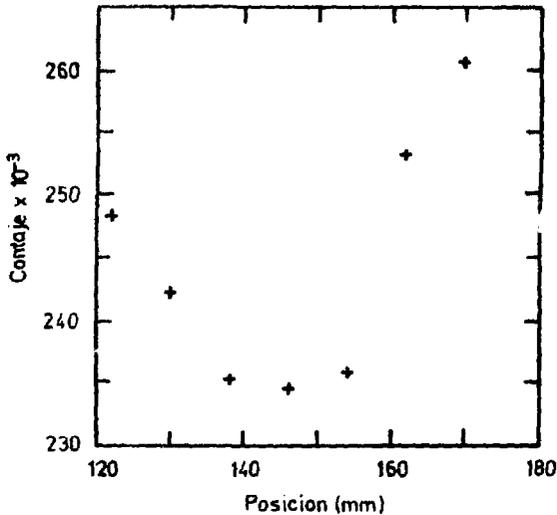


Fig. 6. Perfil quemado transversal
Haz radiación según eje z.
Movimiento detector paralelo al eje y.
Tiempo de contaje: 200 seg.

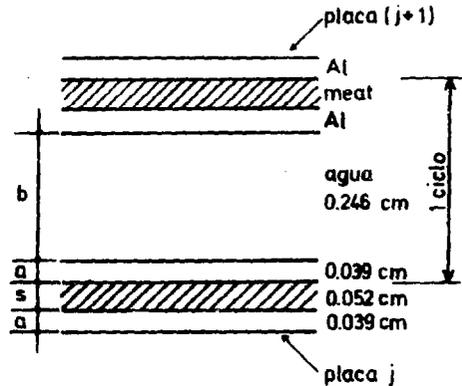


Fig. 7. Corte transversal de un E.C. según un plano $x=cte$, indicando parámetros empleados para el cálculo de la atenuación gamma.

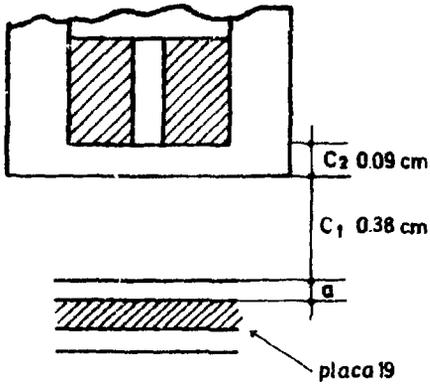


Fig. 8. Extensión de Fig. 7 para la última placa del E.C. y comienzo del tubo colimador.

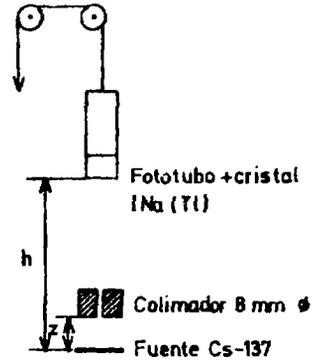


Fig. 9. Disposición experimental empleada para la determinación de la eficiencia.

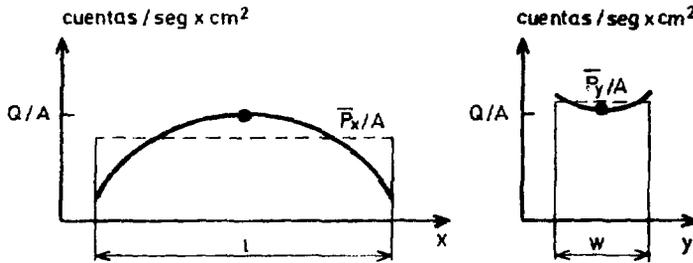


Fig. 10. Representación esquemática de los perfiles mostrando los parámetros empleados en el cálculo de la actividad promedio.