

C.N.E.A. Biblioteca	
ARCHIVO PUBLICACIONES	
Nº 1	AÑO 1971

08.71.02

CNEA/EN -18/50

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

GERENCIA DE ENERGIA
DEPARTAMENTO DE REPROCESAMIENTO

DETERMINACION DE QUEMADO EN LA
PRIMERA CARGA DEL RA-1

por

O.A.CRISTALLINI, G.A.DUPETIT, y J.G.FLEGENHEIMER

Buenos Aires
Mayo 1971

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

GERENCIA DE ENERGIA
DEPARTAMENTO DE REPROCESAMIENTO

DETERMINACION DE QUEMADO EN LA
PRIMERA CARGA DEL RA-1

por

O.A.CRISTALLINI, G.A.DUPETIT, y J.G.FLEGENHEIMER

Buenos Aires
Mayo 1971

RESUMEN

Durante el reprocesamiento de la primera carga del reactor RA-1 se hicieron determinaciones de quemado de la mayoría de los lotes, en base a la actividad del ^{137}Cs . Se describe el método seguido. El valor promedio obtenido es de 505 MWd/T.

ABSTRACT

While reprocessing the first charge of the RA-1 reactor, a burn-up determination was carried out by measuring the ^{137}Cs activity of most of the batches. The method followed is described. The average value found is 505 MWd/T.

INTRODUCCION

El reactor RA-1, con su primera carga nuclear, opero a diferentes potencias entre 1958 y 1963, estimándose que produjo un total de 4,89 MWd durante 320 días de operación efectiva. Los detalles de operación obtenidos del reactor se han expresado en la tabla I. Este primer núcleo constaba de 119 placas de aluminio, cada una con un promedio de 99 g de uranio enriquecido al 19,71%

TABLA I
Operación del Reactor RA-1 con su primera carga

horas de operación	potencia kW	flujo $\times 10^{10}$	enfriamiento en días hasta 1/1/64
570	10	9,5	1100
722	10	9,5	900
1305	20	19	570
1040	20	19	420
382	15	14	330
960	15	14	270
1630	13	12	120
570	15	14	90

total : 7687 h = 320 d

Las 119 placas fueron recibidas en la planta piloto de Ezeiza en noviembre de 1963 y se reprocesaron en 1968 y 1969 en lotes que por lo general consistían en 8 placas a

la vez. En la mayoría de estos lotes se determinó, simultáneamente con el uranio, la actividad de ^{137}Cs en los líquidos de disolución. Los datos obtenidos permiten hallar un valor aproximado del quemado de este núcleo.

TEORIA

Durante el quemado de un núcleo, a medida que fisiona el ^{235}U aumenta la actividad de un producto de fisión individual según:

$$A_t = N \sigma_f \phi (1 - e^{-\lambda t}) \frac{Y}{100} \quad (1)$$

Donde λ e Y son respectivamente, la constante de desintegración y el rendimiento porcentual del producto de fisión individual; mientras que N , σ_f y ϕ son respectivamente el número de núcleos fisionables, su sección eficaz de fisión y el flujo. Después de un tiempo de enfriamiento t' la actividad A_t habrá desintegrado a:

$$A_{t,t'} = N \sigma_f \phi (1 - e^{-\lambda t}) e^{-\lambda t'} \frac{Y}{100} \quad (2)$$

Uno de los productos de fisión usados para este propósito es el ^{137}Cs , que tiene características adecuadas en cuanto a período (30,0 años), esquema de desintegración, y un alto rendimiento de fisión (6,17%) que no varía mucho con el espectro de neutrones.

Cuando los tiempos de operación son cortos respecto del período del producto de fisión, como sucede por lo general en el caso del ^{137}Cs , la ecuación (2) puede simplificarse a:

$$A_{t,t'} = N \sigma_f \phi t \lambda \frac{Y}{100} e^{-\lambda t'} \quad (3)$$

Como $N \sigma_f \phi t$ es el número de fisiones producido, la actividad de un producto de fisión individual de características apropiadas permite determinar este valor. O sea :

$$\text{Número de fisiones} = \frac{A_{t,t'} e^{\lambda t'} 100}{\lambda Y} \quad (4)$$

Sabiendo que $2,63 \cdot 10^{21}$ fisiones representa 1 MWd, se obtiene:

$$\text{Quemado en MWd} = \frac{A_{t,t'} e^{\lambda t'} 100}{2,63 \cdot 10^{21} \lambda Y} \quad (5)$$

Si los quemados son bajos y simultaneamente con el producto de fisión se determina la cantidad de uranio acompañante en una muestra representativa, el dato en MWd/T de combustible es :

$$\text{Quemado en MWd/T} = \frac{\mu \text{Ci Prod. Fis.}}{\text{mg U}} e^{\lambda t'} \frac{3,710^4 \cdot 100 \cdot 10^9}{\lambda Y 2,63 \cdot 10^{21}} \quad (6)$$

Para el caso de ^{137}Cs , remplazando los valores de las constantes se obtiene

$$\text{Quemado en MWd/T} = \frac{\mu \text{Ci } ^{137}\text{Cs}}{\text{mg U}} e^{-0,0231 t'} 3,12 \cdot 10^2 \quad (7)$$

donde t' está expresado en años.

MÉTODOS EXPERIMENTALES

Los elementos combustibles de la primera carga del RA-1 fueron disueltos en su totalidad en el tanque de disolución de la planta, cumpliéndose así con la exigencia de obtener muestras representativas.

Para la determinación de ^{137}Cs se tomó directamente una muestra del líquido obtenido después de la disolución total, sin previa separación de cesio. Dado el largo tiempo transcurrido desde el fin de operación y el reprocesamiento, en promedio 5,5 años, prácticamente toda la energía gamma superior a 100 keV provenía de este producto de fisión. Las mediciones se hicieron mediante un cristal de centelleo de INa(Tl) tipo pozo y un multicanal Nuclear Data modelo 130A, con posibilidad de superponer y comparar espectros mediante sumas y restas. Las comparaciones se efectuaron mediante un patrón de ^{137}Cs , el cual había sido calibrado previamente por medio de un contador proporcional 4π . El método de operación es análogo a la medición de enriquecimiento de ^{235}U en muestras de uranio, el cual ha sido descripto en la guía de "Métodos Analíticos" de la planta de reprocesamiento [1].

La determinación de la concentración de uranio total en la misma muestra era una operación analítica rutinaria para la planta de reprocesamiento. El método consiste en la determinación coulométrica de uranio mediante un coulombímetro modelo XV - 101 fabricado por el Departamento de Instrumentación de la CNEA, [1],[2].

RESULTADOS OBTENIDOS

Se midió la actividad de ^{137}Cs en 10 lotes del reprocesamiento, cada uno de 8 placas, lo cual corresponde a un 67% del núcleo. Los valores hallados y el promedio obtenido están representados en la tabla II.

Los valores fueron obtenidos entre julio de 1968 y junio de 1969, por lo cual puede tomarse como tiempo de en -

friamiento promedio $t' = 5,5$ años

TABLA II

Valores experimentales de $^{137}\text{Cs}/\text{U}$ en lotes de disolución

Lote N°	$\mu\text{Ci } ^{137}\text{Cs}/\text{mgU}$	promedio
1	1,561	$1,424 \pm 0,035 (\sigma_{\bar{x}})$
2	1,317	
3	1,455	
6	1,636	
7	1,407	
8	1,241	
9	1,387	
11	1,405	
12	1,465	
13	1,366	

CALCULO DEL QUEMADO PROMEDIO

Remplazando el valor promedio obtenido en la ecuación (7) se obtiene :

$$\begin{aligned}\text{Quemado} &= 1,424 \cdot e^{-0,0231 \cdot 5,5} \cdot 3,2 \cdot 10^2 \text{ MWd/T} \\ &= 505 \text{ MWd/T}\end{aligned}$$

Como la carga de nucleo consistía en 11,776 Kg de uranio, expresado como metal , el quemado fue de :

$$505 \text{ MWd} \times 0,0118 = 5,95 \text{ MWd}$$

dato que es superior en un 22% al estimado en base a los datos de operación del reactor.

Sabiendo que el tiempo neto de operación del RA-1 con este núcleo fue de 320 días, pueden deducirse los siguientes valores relacionados, [3] :

% de ^{235}U consumido	$x = 0,31$
fisiones totales producidas	$= 1,6 \cdot 10^{22}$
flujo integrado	$\phi t = 4,6 \cdot 10^{18} \text{ n/cm}^2$
flujo promedio	$\phi = 1,6 \cdot 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$

DISCUSION

Entre el menor y el mayor valor de quemado en $\mu\text{Ci}^{137}\text{Cs}/\text{mgU}$ (tabla II), el rango es de 16%. Esto indica una homogeneidad relativamente buena en los valores obtenidos ($\sigma_x = 8\%$ para una medición individual) que en parte puede deberse a haber tomado al azar las placas que componían los lotes. La desviación standart del promedio resulta así de 2,5%.

El mayor error accidental en el dato de quemado corresponde a la determinación de ^{137}Cs por espectrofotometría, que puede estimarse en no menor de 5%, mientras que el de uranio es solo de 1%.

La precisión del dato de quemado promedio obtenido, no justifica refinamientos mayores para eliminar posibles errores sistemáticos. La ecuación (7) por ejemplo supone un tiempo de operación muy corto respecto del período de ^{137}Cs , que no se cumple rigurosamente en el caso presente. El cálculo también podría refinarse teniendo en cuenta los diferentes tiempos de irradiación.

ción y enfriamiento indicados en la tabla I, mientras que aquí solo se ha calculado con un tiempo de enfriamiento promedio. Otro error es la pérdida de ^{137}Cs de las placas durante su conservación bajo agua en la pileta de enfriamiento, debido a que en parte el material fisionable quedó expuesto y en contacto directo con el agua. Esta actividad total de ^{137}Cs en el agua de la pileta se midió y fue del 2% respecto del ^{137}Cs total encontrado en los elementos combustibles, error que no se tuvo en cuenta en los cálculos.

La mayoría de los errores sistemáticos considerados, indican que el valor de quemado hallado es un valor mínimo.

BIBLIOGRAFIA

- [1] Departamento de Reprocesamiento, CNEA, "Métodos analíticos ; Planta reprocesadora de elementos combustibles irradiados" , 1965.
- [2] W.J.Krause y G.A.Dupetit, Determinación de uranio con un titulador coulombimétrico a potencial controlado, CNEA - 192, 1967.
- [3] J.Fleggenheimer, Quemados bajos de combustibles con uranio en reactores térmicos, en impresión.