

COMBUSTÍVEIS PARA REATORES DE ENSAIOS DE MATERIAIS

Lalgudi Venkataraman Ramanathan (1)

Michelangelo Durazzo (2)

Clauer Trench de Freitas (3)

Apresentam-se resultados experimentais correspondentes ao desenvolvimento de combustíveis nucleares destinados a reatores de ensaios de materiais refrigerados e moderados por água. Combustíveis cilíndricos e tipo placa são descritos, nos quais o núcleo é constituído por compostos de U dispersos em Al, com revestimentos de Al. Detalhes de fabricação, envolvendo laminação, forjamento rotativo e compactação a quente, são descritos. Discute-se resultados de ensaios de corrosão e irradiação. A avaliação de desempenho dos diferentes tipos de combustíveis indica que é possível considerar a fabricação no país, de placas com núcleos de U_3O_8+Al , enriquecido a 20%, destinados a uso em reatores já em operação em institutos de pesquisa brasileiros. (autor).

-
- (1) Doutor em Engenharia Metalúrgica - Gerente da Área de Combustíveis Nucleares do Centro de Metalurgia Nuclear - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - SP.
 - (2) Membro da ABM - Engenheiro Metalurgista - Centro de Metalurgia Nuclear - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - SP.
 - (3) Membro da ABM - Doutor em Engenharia Metalúrgica - Centro de Metalurgia Nuclear - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - SP.

1. INTRODUÇÃO

A redução dos níveis de enriquecimento do U disponível no mercado internacional, em bases comerciais, obrigou aos países usuários desse material a um grande esforço no sentido de continuarem a utilizar seus reatores de pesquisa e de ensaios de materiais em bases aceitáveis. A situação revelou-se particularmente delicada para nações como o Brasil, não produtoras de urânio enriquecido.

O reator IEA-R-1, do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN) de São Paulo, que operava com urânio enriquecido a 93%, viu-se assim na necessidade de usar novos combustíveis, enriquecidos a 20%.

Aproximadamente os mesmos níveis de desempenho dos reatores podem ser conseguidos com o material enriquecido a 93 e a 20%. Todavia, a fabricação de combustível enriquecido a 20%, com as necessárias concentrações bem mais elevadas de urânio, não podia até 1978 ser efetuada com tecnologia já comprovada no exterior, em se tratando de configurações de núcleos de reatores usando placas.

Dessa forma, o Centro de Metalurgia Nuclear do IPEN tem - dispendido considerável esforço no sentido de se capacitar a fabricar localmente combustível de baixo enriquecimento que satisfaça as exigências operacionais do reator IEA-R-1 e de outros, de longa data utilizados em institutos de pesquisas brasileiros (1).

Internacionalmente continua o esforço no sentido de conseguir soluções que atendam às centenas de reatores de pesquisa (2,3, 4,5 e 6), parecendo claro que os trabalhos deverão prosseguir por tempo considerável antes que se atinjam resultados plenamente satisfatórios.

Descrevem-se a seguir resultados experimentais de fabricação e caracterização de combustíveis no IPEN, que indicam a possibilidade de se produzir os mesmos localmente no IPEN, atendendo os requisitos operacionais dos reatores de ensaios de materiais existentes no país.

2. Combustíveis desenvolvidos no IPEN, com alta concentração de urânio, destinados a reatores de ensaios de materiais.

Procurou-se concentrar os esforços de desenvolvimento em

combustíveis sobre os quais o Centro de Metalurgia Nuclear já tinha experiência prévia significativa, evitando-se o uso de materiais como o Zircaloy IV ou os silicetos de urânio que, mesmo nos centros nucleares mais avançados do exterior, não tem aplicação prática em reatores de até 10 MW térmicos, como são os de interesse imediato no Brasil.

2.1. Produção de combustíveis tipo placa

Conseguiu-se produzir por laminação combustíveis tipo placa com a necessária concentração de urânio (58% em peso de U_3O_8 , U enriquecido a 20%), com núcleos constituídos por dispersões de U_3O_8 em Al. Usou-se a técnica de molduras (1) com revestimento de Al 1100.

As dimensões requeridas para uso no reator IEA-R-1 são 590 x 63 x 1,57 mm, com revestimento de 0,38 mm, o que veio exigir elevada densidade da dispersão (> 87%), após laminação. Densidades dessa ordem só puderam ser atingidas quando a fase cerâmica U_3O_8 na dispersão tinha inicialmente densidade superior a 92%.

Os seguintes procedimentos foram usados para obter dispersões de alta densidade, antes da laminação.

- 1- Utilização de U_3O_8 em pó, obtido pela desintegração de pastilhas sinterizadas.
- 2- Utilização de U_3O_8 em pó, calcinado por 48 horas a temperatura de 1.450°C.
- 3- Utilização de microesferas de U_3O_8 , com diâmetros entre 120 e 200 μm .
- 4- Compactação a 400°C por 15 minutos

As maiores densidades (atingindo até 97% do valor teórico) foram atingidas por compactação a quente. Os demais procedimentos, para pressões de compactação de até 2,5 t/cm², levaram a densidades entre 82 e 86% do valor teórico. Para esses valores de densidade as dispersões sempre demonstraram comportamento satisfatório durante a laminação, resultando excelente caldeamento entre os núcleos das placas e seus revestimentos. Destaca-se a ductibilidade das dispersões, com mais de 86% da densidade teórica, que permitia reduções substancialmente maiores durante a laminação, relativamente às dispersões de densidades menores.

Conforme será mostrado neste trabalho, as placas produzidas dessa forma tem características adequadas para utilização no reator IEA-R-1.

Na referência (1) apresentam-se trabalhos do Centro de Metalurgia do IPEN, no concernente a placas com núcleos constituídos por dispersões $UAl_x + Al$. Trabalhos subsequentes aos descritos nessa referência, demonstraram que é possível, por tratamento térmico ($400^{\circ}C$ por 60 horas) das placas inicialmente contendo $UAl_x + Al$ ($x=2$ ou 3), obter-se núcleo constituído por $UAl_4 + Al$.

2.2. Produção de combustíveis cilíndricos.

Sob o ponto de vista de Física de Reatores, é possível usar combustíveis cilíndricos, com revestimento de Al, no reator IEA-R-1.

O Centro de Metalurgia do IPEN concentrou seus trabalhos no sentido de, por forjamento rotativo, obter combustíveis cilíndricos constituídos por núcleo de $U_3O_8 + Al$ e revestimento de Al. Utilizou-se U_3O_8 tanto sob a forma de pó, como em microesferas.

A figura 1 mostra a influência da redução no forjamento rotativo sobre a densidade da dispersão. Para reduções acima de 30% as densidades aproximam-se do valor teórico.

Até o presente, a maior dificuldade com o forjamento rotativo de dispersões $U_3O_8 + Al$ reside em se obter revestimentos de espessuras uniformes, inferiores a 1 mm. Para revestimentos de espessuras maiores esses combustíveis podem ser considerados para utilização no IEA-R-1, embora sob o ponto de vista neutrônico sejam menos eficientes que os combustíveis tipo placa, descritos anteriormente. Essa menor eficiência deve-se principalmente à maior quantidade de Al presente em tais combustíveis cilíndricos, que contribui para o aumento da captura parasítica de neutrons no núcleo do reator.

3 - CORROSÃO DE PLACAS COMBUSTÍVEIS COM NÚCLEOS DE CERMETS U_3O_8 -Al

A corrosão de placas combustíveis com núcleos de cermetes ... U_3O_8 -Al tem sido estudada em termos de:

- 1 - Corrosão do núcleo de cermet devido à ruptura do revestimento.
- 2 - Corrosão da placa combustível exposta ao refrigerante do reator fora da zona de radiação.
- 3 - Corrosão da placa combustível num loop de água exposta à radiação.

Com esses estudos será estabelecido o comportamento geral da placa combustível quando exposta às condições de funcionamento do reator IEA-R1.

3.2. Parte Experimental

3.2.1. Fabricação das Amostras

Para os testes de corrosão do núcleo após ruptura do revestimento foram utilizadas amostras miniaturas de placas combustíveis e para os testes de corrosão no reator IEA-R1, dentro e fora da zona de radiação, foram utilizadas placas combustíveis de tamanho normal. Detalhes sobre procedimentos e condições podem ser obtidos na literatura ⁽⁷⁾.

Para investigações relativas à corrosão de cermetes em função da sua densidade, núcleos contendo U_3O_8 e Alumínio na proporção .. 58,11% : 41,89% em peso foram compactados a frio em matriz de 16 mm de diâmetro, tendo 3,2 mm de altura e densidades de 75%, 85% e 95% da densidade teórica. Esses núcleos compactados foram utilizados de maneira convencional para a obtenção de placas combustíveis de espessura de 1 mm (figura 2). A figura 3 mostra a radiografia de placas miniaturas com núcleos de diferentes densidades.

3.2.2. Medidas de Corrosão

3.2.2.1. Corrosão dos núcleos de cermetes

Placas combustíveis miniaturas foram imersas em água deionizada estática de pH 5,9 e resistividade ... $1.17 \times 10^6 \Omega_{cm}$ por 10 minutos para equilíbrio de temperatura e,

subseqüentemente, cortadas ou furadas para a exposição do núcleo (7,8) O H₂ liberado devido à reação do Alumínio do cermet com água foi medido após intervalos regulares de tempo. Amostras correspondendo à cada densidade do cermet foram testadas a 30°C, 50°C. e 70°C. Alguns testes foram realizados a 90°C.

3.2.2.2. Corrosão no Refrigerante do reator

Placas combustíveis de tamanho normal (placa I e placa II) foram desengraxadas, limpas e suspensas no interior da piscina do reator fora da zona de radiação, por 5 meses e 10 meses, respectivamente. As placas foram examinadas e fotografadas periodicamente.

3.2.2.3. Corrosão no loop de água

A figura 4 mostra esquematicamente o loop de água, fabricado no IPEN, usado nesta investigação. Uma placa combustível de tamanho normal, idêntica às placas I e II, recebeu um tratamento superficial (tabela 1) antes da sua introdução no loop.

Água deionizada de alta resistividade circulou através do loop a 1 m/s por 8 horas antes da sua introdução no núcleo do reator numa região com um fluxo de neutrons de 10^{12} neutrons/cm².s. A radioatividade da água na saída do loop foi cuidadosamente controlada. A placa foi irradiada 8 horas por dia, 5 dias por semana por 8 semanas e examinada sob a água através de uma lente telescópica.

3.3. - Resultados e Discussão

3.3.1. - Corrosão dos núcleos de cermets

Resultados de investigações preliminares de corrosão de núcleos de cermets revelaram que o tipo e tamanho da ruptura do revestimento não influi na quantidade de H₂ liberado, embora influencie a velocidade de liberação. Cermets com maior quantidade de Alumínio e alta porosidade liberam maiores quantidades de H₂. Para trazer mais luz sobre a influência da porosidade do cermet na quantidade de H₂ liberado foi mantida constante a proporção de Al e U₃O₈ e variou-se o grau de densificação do cermet. As figuras 5, 6 e 7 revelaram as curvas de evolução de H₂ para cermets de di -

3) diferentes densidades à temperaturas de 30, 50 e 70°C.

Em todos os casos, a liberação de H₂ começa após um certo tempo e aumenta até níveis apreciáveis. O tempo para que se inicie a reação aumenta com a diminuição da temperatura. A liberação de consideráveis quantidades de H₂ é provavelmente causada pela presença de significantes áreas de Al livres de óxido dentro do núcleo devido à severa abrasão entre partículas moles de Al e partículas duras de U₃O₈ durante o processo de laminação. O maior grau de evolução de H₂ em amostras com cermet de menor densidade deve ser atribuído à presença de canais contínuos possibilitando o ingresso da água. Independentemente da densidade do cermet, a quantidade de H₂ liberado aumenta com a temperatura até 50°C, diminuindo à temperaturas superiores. (figura 8).

Essa diminuição na quantidade de H₂ liberado à temperaturas superiores a 50°C deve ser atribuída à provável formação de um hidróxido de Al com maior grau de hidratação o qual, em muitos casos, deve ter bloqueado efetivamente os canais contínuos impedindo o ingresso da água dentro do núcleo.

3.3.2 - Corrosão de placas combustíveis no refrigerante do reator.

A placa I, removida do refrigerante após 5 meses de exposição, revelou cores de interferência na superfície e um grande número de pits de tamanho e profundidade variáveis (figura 9, 10, e 11). As regiões ao redor dos pits apresentaram-se manchadas. Fileiras de pits (figura 9) observadas em algumas regiões indicam heterogeneidades nestas regiões que devem ter sido causadas durante o processo de laminação em termos de inclusões de óxido ou impurezas.

A placa II, fotografada no instante da retirada, ainda molhada, revelou a presença de aglomeração de óxido (figura 12 e 13). Sob essa aglomeração de óxidos foram revelados pits.

3.3.3. Corrosão de placas combustíveis no loop de água

A superfície tratada da placa combustível exposta a 8 semanas de radiação foi examinada e fotografada enquan-

to, ainda estava quente, sob a água. As figuras 14 e 15 revelam regiões com pits. Mesmo com uma limitada resolução fotográfica observou-se que a placa revelou um número de pits consideravelmente reduzido quando comparada com a placa I e II.

4. CONCLUSÕES

1. Demonstrou-se que é possível fabricar placas combustíveis - contendo a quantidade necessária de urânio enriquecido a 20% para operação do reator IEA-R-1 em níveis de potência de até 5 MW térmicos.
2. É viável a produção de combustíveis cilíndricos utilizando núcleos constituídos por microesferas de U_3O_8+Al , mediante forjamento rotativo.
3. A ductilidade de núcleos de U_3O_8+Al , pode ser consideravelmente melhorada quando se promove densificação acima de 90% do valor teórico, mediante compactação a quente ou por meio de uso de U_3O_8 de alta densidade. Este U_3O_8 tanto pode ser obtido mediante calcinação a elevadas temperaturas, como pelo uso de microesferas.
4. Usando dispersão de urânio em Al, é possível obter núcleos de placas combustíveis com até 80% de U sob a forma de UAl_4 , mediante tratamento térmico a $500^{\circ}C$ por 60 h, após a laminação.
5. O nível total de corrosão do núcleo e do revestimento das placas combustíveis contendo U_3O_8+Al , pode ser consideravelmente reduzido mediante: a) aumento da densidade da dispersão; b) severo controle durante a seleção das placas de Al destinadas a laminação; c) extremamente cuidadosos procedimentos de manuseio das placas durante processamento; d) adoção de tratamentos superficiais das placas após laminação.
6. Ensaio preliminares em dispositivo de irradiação no reator IEA-R-1 do IPEN, indicaram que a corrosão de placas combustíveis contendo núcleos de U_3O_8+Al pode ser mantida em níveis aceitáveis.

REFERÊNCIAS

1. BRESSIANI, J.C. - Dissertação de Mestrado, IPEN, São Paulo, 1979.
2. SNELGROVE, J.L. - IAEA-SR-77/24, Seminar on Research Reactor operation and use, Jülich, Alemanha, Setembro, 1981.
3. THAMM, G. - IAEA-Sr-77/50, Seminar on Research Reactor operation and use, Jülich, Alemanha, Setembro, 1981.
4. TRAVELLI, A., IAEA-SR-77/22, Seminar on Research Reactor operation and use, Jülich, Alemanha, Setembro, 1981.
5. JOLY, F., IAEA-SR-77/41, Seminar on Research Reactor operation and use, Jülich, Alemanha, Setembro, 1981.
6. CHESWORTH, R.H., e WEST, G.B., IAEA-SR-77/19, Seminar on Research Reactor operation and use, Jülich, Alemanha, Setembro, 1981.
7. DURAZZO, M., RAMANATHAN, L.V. e de FREITAS, C.T., Proceedings of the 8th International Congress on Metallic Corrosion, Mainz, Alemanha, setembro 1981, v. 2, p. 1731.
8. BRESSIANI, J.C., DURAZZO, M., RAMANATHAN, L.V. e de FREITAS, C.T., Anais do XXXV Congresso Anual da ABM, v. 3, p. 597

Abstract

Experimental results related to the development of nuclear fuels for reactors cooled and moderated by water have been presented. Cylindrical and plate type fuels have been described in which the core consists of U compounds dispersed in an Al matrix and is clad with aluminium. Fabrication details involving rollmilling, swaging or hot pressing have been described. Corrosion and irradiation test results are also discussed. The performance of the different types of fuels indicates that it is possible to locally fabricate fuel plates with U_3O_8+Al cores (20% enriched U) for use in operating Brazilian research reactors. (author)

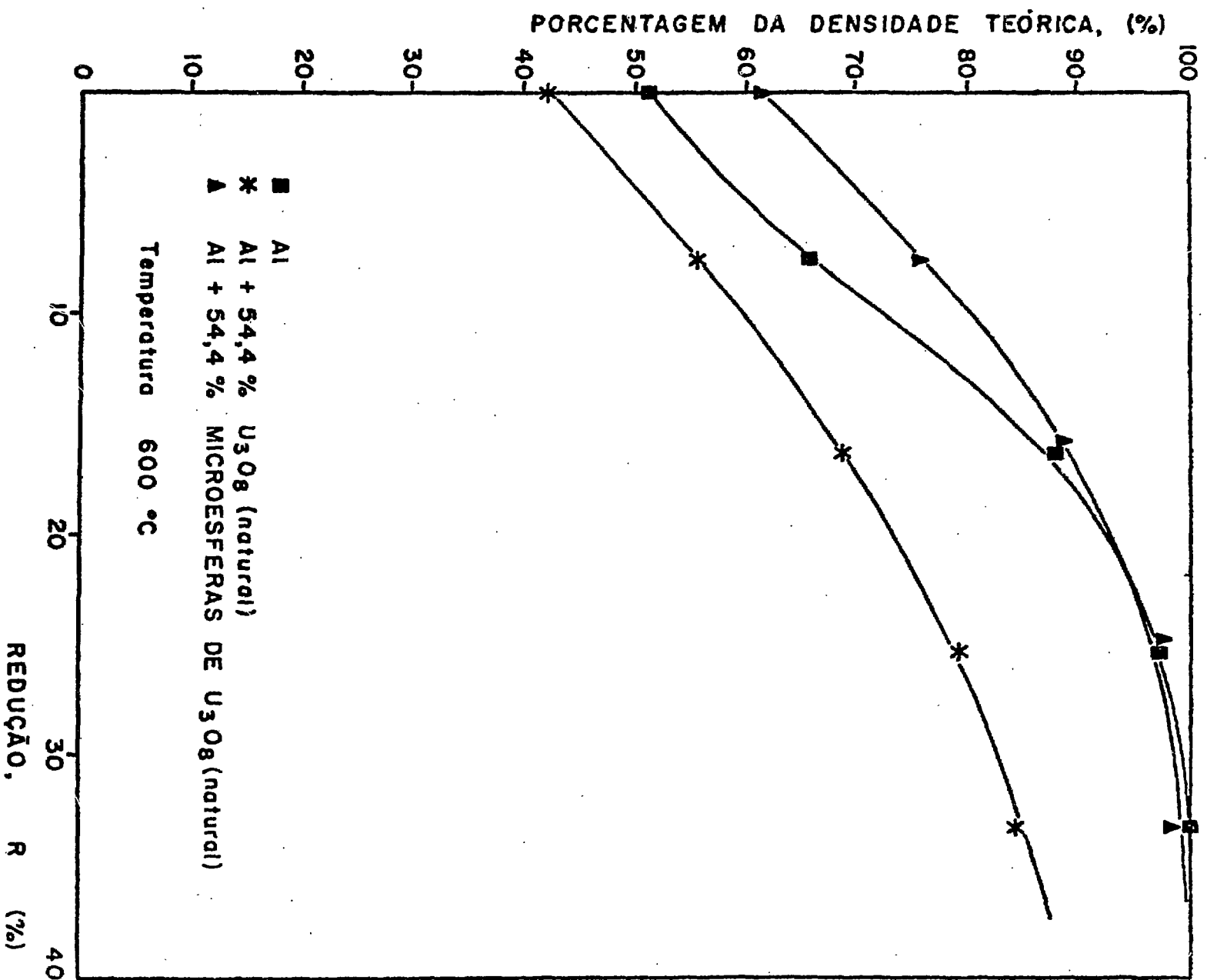


Figura 1 - Densificação de cermetes U₃O₈+Al, com a fase cerâmica em forma de pó e de microsferas, em porcentagem de densidade teórica apresentada em função da redução.

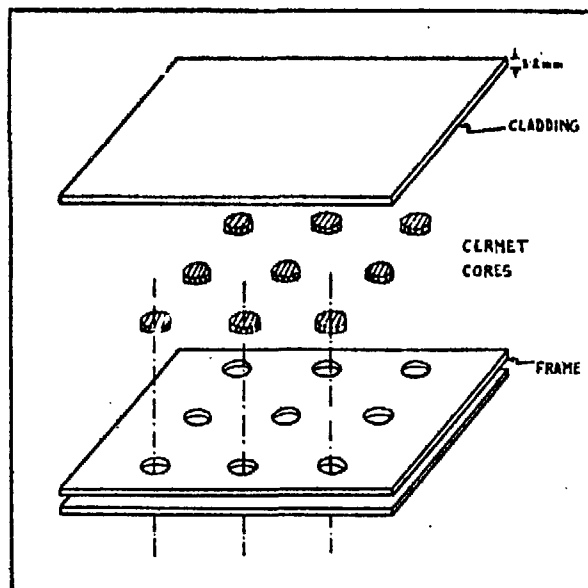


Figura 2 - Esquema utilizado para obtenção de amostras (montagem núcleo-moldura-revestimento)

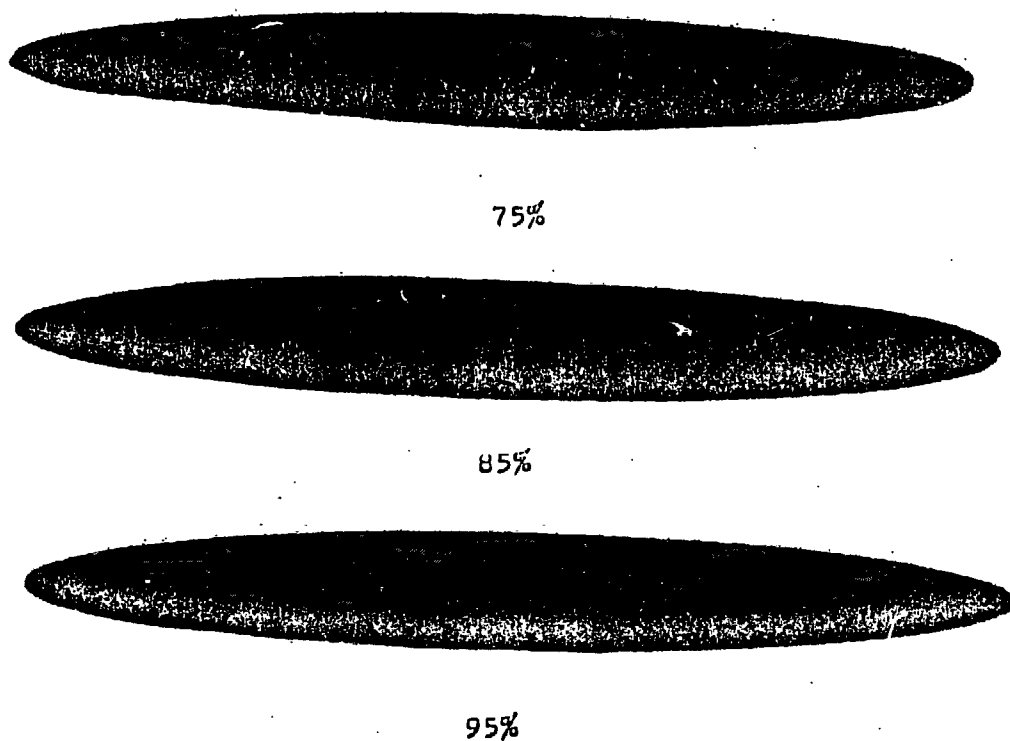


Figura 3 - Radiografias das placas miniaturas de densidades 75%, 85% e 95% da densidade teórica do Cermet.

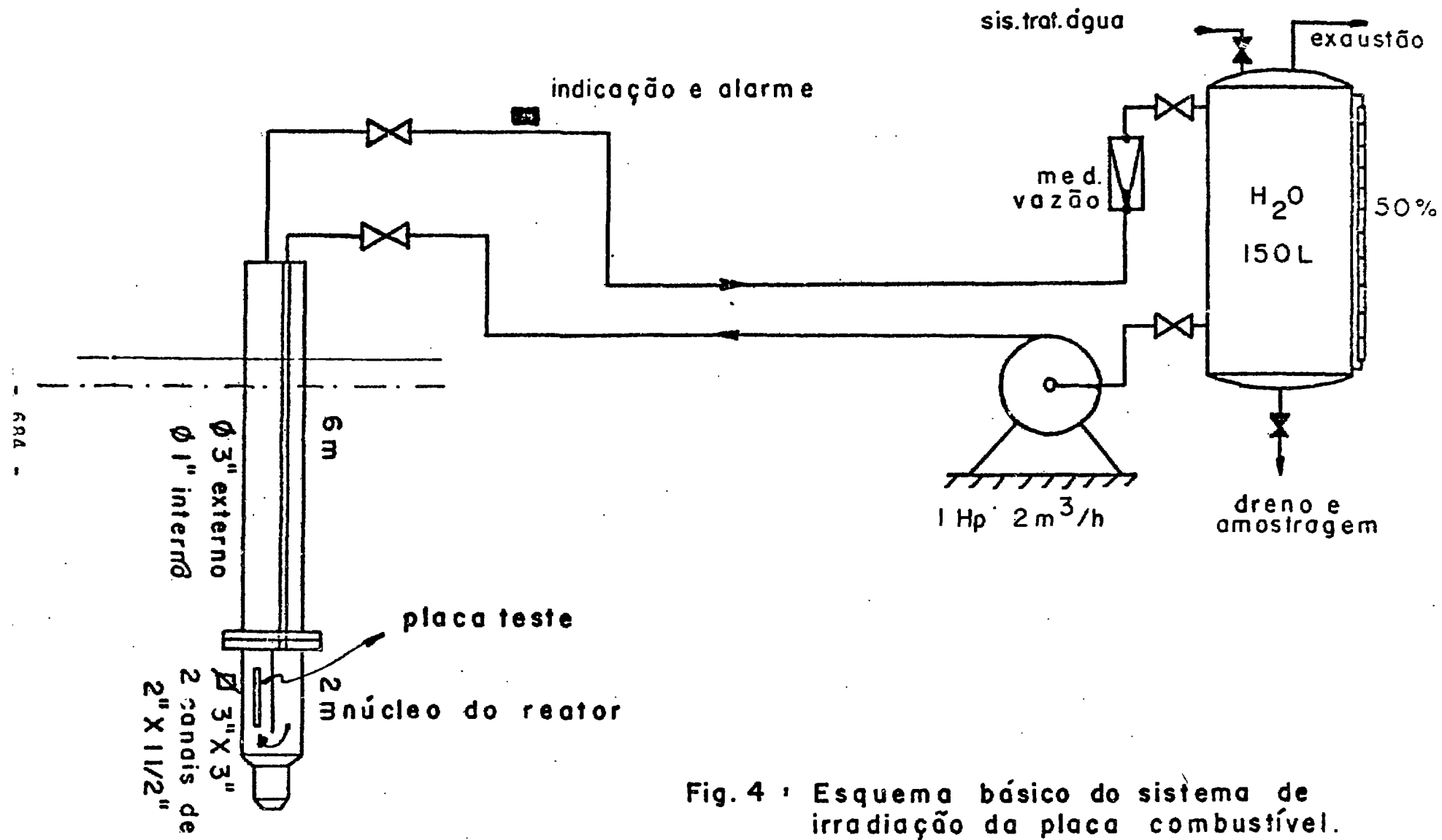


Fig. 4 : Esquema básico do sistema de irradiação da placa combustível.

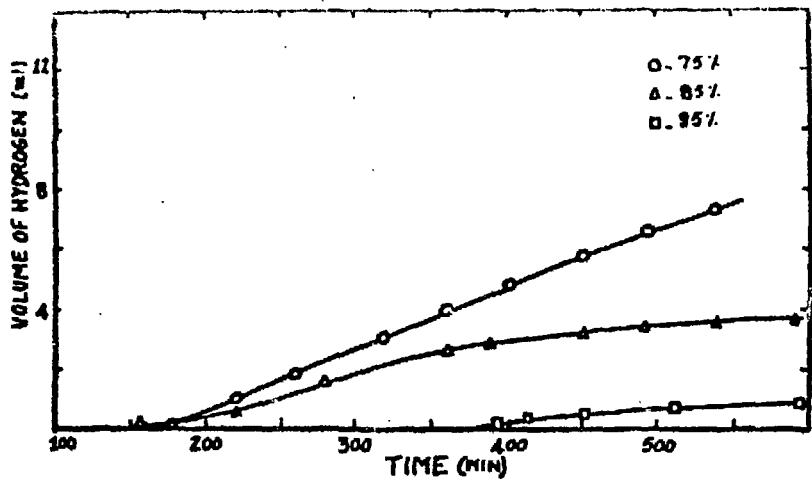


Figura 5 -
Curva de liberaçao
de H₂ à 30°C

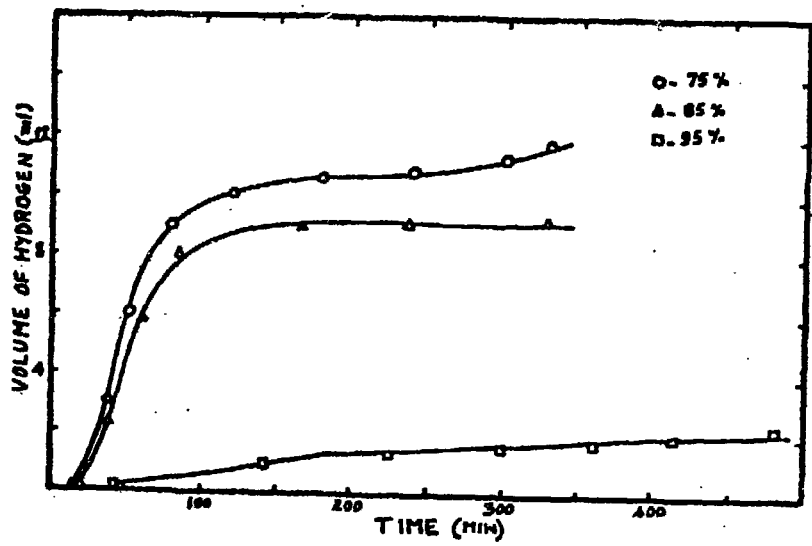


Figura 6 -
Curva de liberaçao
de H₂ a 50°C.

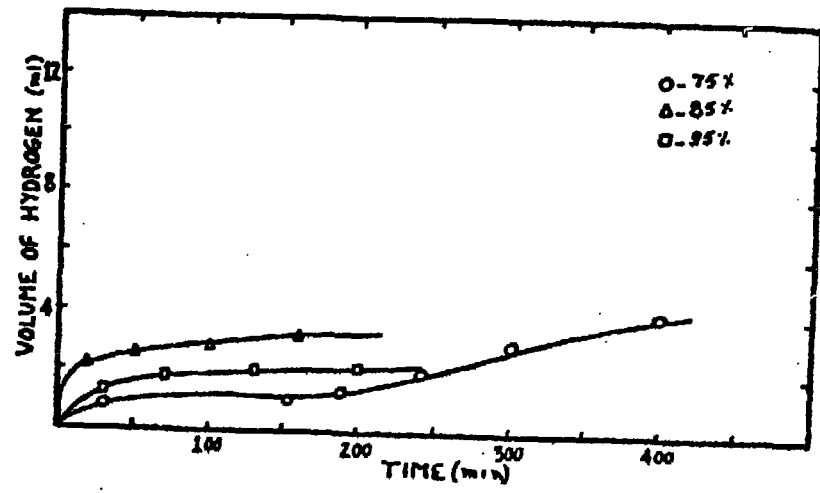


Figura 7 -
Curva de liberaçao
de H₂ a 70°C.

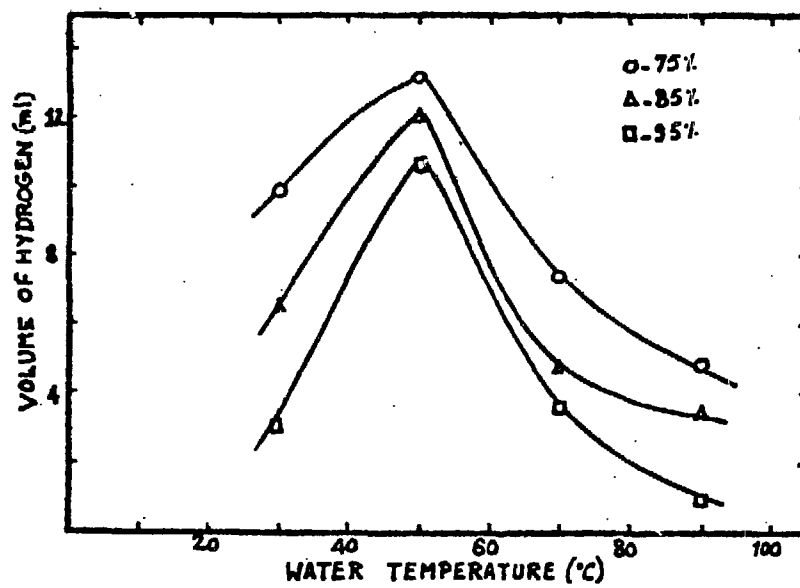


Figura 8 - Variação da quantidade de H_2 liberado em função da temperatura (24 horas de ensaio).

Figura 9 - Placa I
Tres pits em seqüência.



Figura 10 - Placa 1
Detalhe do pit central
da figura 9.



Figura 11 - Placa I
As regiões claras e fora
de foco são devidas pro-
vavelmente ao Al_2O_3 .





Figura 12 - Placa II - Aglomerações de óxido.

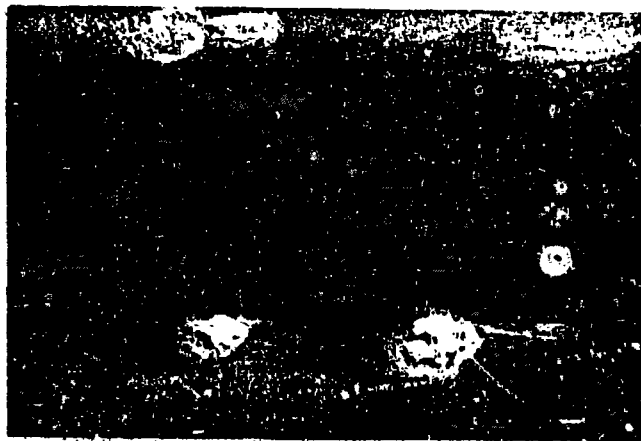
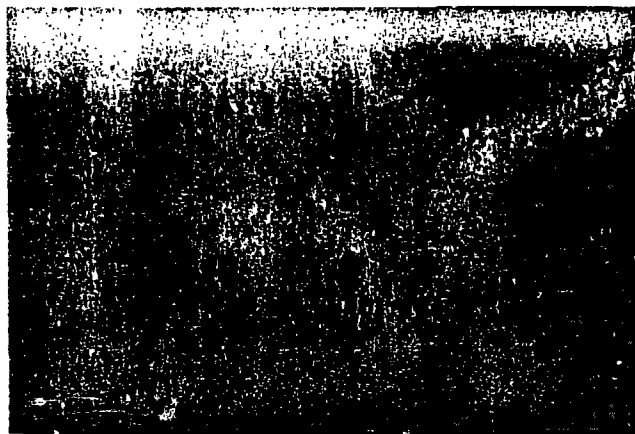


Figura 13 - Idem à figura 12.



Figuras 14 e 15 - Detalhes da superfície da placa combustível exposta à radiação por 8 semanas no loop de água do reator IEA-R1.

TABELA I - Tratamento superficial utilizado na placa teste antes da sua introdução no loop.

- Desengraxar em vapor de percloroetileno.
- Tratar em NaOH 6-10% à 60°C por 1 minuto.
- Lavar em água morna corrente por 1 minuto.
- Neutralizar em HNO₃ 30-50% (densidade 1,2 - 1,3 g/cm³) por 1 minuto.
- Lavar em água fria corrente por 5 minutos.
- Lavar em água deionizada morna corrente (35-40°C) por 15 minutos.
- Imergir em HNO₃ frio (10%) por 1 minuto.
- Lavar em água fria corrente por 5 minutos.
- Lavar em água desmineralizada fria corrente por 5 minutos.
- Secar em ar.

Elemento Combustível: Antes da inspeção visual final todos os elementos combustíveis são lavados com álcool.

Antes da montagem todas as partes são de sengraxadas e tratadas.

