



AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE  
DE SÃO PAULO

**COMBUSTÍVEL TIPO PLACA DE DISPERSÃO DE  $UO_2$ -AÇO  
INOXIDÁVEL PARA QUEIMAS ELEVADAS**

**WLADIMIR CECILIO DA SILVA**

**Dissertação apresentada como parte  
dos requisitos para obtenção do Grau  
de Mestre em Ciências na Área de  
Tecnologia Nuclear - Reatores.**

**Orientador:  
Dr. João Manoel Losada Moreira**

**São Paulo  
2001**

**INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES**

*Autarquia associada à Universidade de São Paulo*

**COMBUSTÍVEL TIPO PLACA DE DISPERSÃO  
DE  $UO_2$ -AÇO INOXIDÁVEL PARA QUEIMAS  
ELEVADAS**

**WLADIMIR CECILIO DA SILVA**



Dissertação apresentada ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares como parte dos requisitos para obtenção do grau de “Mestre em Tecnologia Nuclear”

Orientador:

Dr. João Manoel Losada Moreira

São Paulo

2001

*Aos meus pais, minha mulher, meus filhos,  
meus amigos e a todos aqueles que entendem  
que a pesquisa tecnológica é de fundamental  
importância para o desenvolvimento do país.*

## *AGRADECIMENTOS*

Ao IPEN (Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares) pela oportunidade de realizar este trabalho.

Ao Dr. João Manuel Losada Moreira , pelo apoio e orientação desta dissertação.

A todas as pessoas que direta ou indiretamente contribuíram para realização deste trabalho.

# ***COMBUSTÍVEL TIPO PLACA DE DISPERSÃO DE UO<sub>2</sub>-AÇO INOXIDÁVEL PARA QUEIMAS ELEVADAS***

*Wladimir Cecílio da Silva*

## **RESUMO**

Neste trabalho estudou-se o comportamento do combustível tipo placa de dispersão de UO<sub>2</sub> em aço inoxidável buscando estabelecer o limite de “burnup” admissível, sem que haja dano no combustível para frações volumétricas de combustível elevadas e estabeleceu uma especificação deste combustível, apropriado para reatores de pequeno porte e para longos períodos de irradiação e enriquecimento menor que 20 %.

A especificação de um combustível tipo placa de dispersão de UO<sub>2</sub> em aço inoxidável envolve o parâmetro tamanho da partícula do combustível, fração volumétrica do combustível na dispersão, porosidade da partícula de combustível, espessuras do cerne de combustível, do revestimento e da placa, enriquecimento do combustível e uniformidade da dispersão e temperaturas de fabricação e operação.

Determinou-se o comportamento do limite de “burnup” em função da fração volumétrica de combustível, assumindo-se que somente o material da matriz é responsável por garantir as propriedades de resistência mecânica e quanto à irradiação das placas do elemento combustível. Alguns dos resultados do trabalho são que para se conseguir operar um reator de pequeno porte por um período de cerca de 1200 dias em plena potência é necessário um enriquecimento acima de 40% e fração volumétrica de combustível menor que 35 %. Para frações volumétricas mais elevadas atinge-se o limite de “burnup” em tempos menores de operação. Para enriquecimento de 20 % e fração volumétrica de 0,43 leva a um tempo de operação em plena potência em torno de 365 dias sem comprometer o combustível.

# UO<sub>2</sub>-STAINLESS STEEL DISPERSIONS FOR HIGH BURNUP PLATE TYPE FUEL ELEMENTS

*Wladimir Cecilio da Silva*

## ABSTRACT

In this work it has been studied the behavior of a plate type fuel of UO<sub>2</sub> dispersed in stainless steel, aiming to establish the maximum admissible burnup limit, without damage to the fuel for high fuel volumetric fractions. A second objective is to make a specification of this fuel for long irradiation periods and enrichment less than 20%, which is feasible for small power reactors.

The specification of this plate type fuel of UO<sub>2</sub> dispersed in stainless steel involves such parameters as particle size, porosity of the fissile material, fuel volumetric fraction, thickness of fuel meat and cladding, enrichment level, dispersion uniformity, as well as the fabrication and operation temperatures.

It has been determined the burnup limit as a function of the fuel volumetric fraction assuming that the atoms from the matrix (stainless steel) are solely responsible for the mechanical and irradiation resistance of the fuel elements plates. Some of the obtained results are that it is necessary an enrichment of at least 40% and fuel volumetric fraction smaller than 0,30 to make a typical small power reactor to operate for 1200 days at full power. For higher fuel volumetric fractions the maximum burnup limit is reached in shorter periods of time. An enrichment of 20%, and a fuel volumetric fraction 0,43 conducts to a higher period of operation at full power (approximately 365 days) without any damage to the fuel.

## SUMÁRIO

	Página
<b>1 INTRODUÇÃO</b>	<b>1</b>
<i>1.1 Objetivo do trabalho</i>	<i>4</i>
<b>2 COMBUSTÍVEL DE DISPERSÃO DE UO<sub>2</sub> EM AÇO INOXIDÁVEL</b>	<b>8</b>
<i>2.1 Combustíveis tipo dispersão de UO<sub>2</sub> em aço inoxidável</i>	<i>10</i>
<i>2.2 Principais solicitações e modos de falhas de combustíveis de dispersão tipo placa</i>	<i>13</i>
<i>2.3 Desempenho do combustível tipo dispersão UO<sub>2</sub>-aço inoxidável sob irradiação</i>	<i>15</i>
<b>3 COMPORTAMENTO SOB IRRADIAÇÃO DE UM COMBUSTÍVEL TIPO PLACA DE DISPERSÃO DE UO<sub>2</sub>-AÇO INOXIDÁVEL</b>	<b>22</b>
<i>3.1 Tamanho da partícula e fração volumétrica de combustível no cerne</i>	<i>24</i>
<i>3.2 Porosidade da partícula combustível</i>	<i>29</i>
<i>3.3 Uniformidade da dispersão</i>	<i>30</i>
<i>3.4 Enriquecimento do combustível</i>	<i>31</i>
<i>3.5 Espessura do cerne de combustível da placa</i>	<i>33</i>
<i>3.6 Espessura mínima do revestimento da placa</i>	<i>34</i>
<b>4 LIMITE DE BUNUP PARA COMBUSTÍVEIS TIPO DISPERSÃO DE UO<sub>2</sub> EM AÇO INOXIDÁVEL EM FUNÇÃO DA FRAÇÃO DE VOLUME COMBUSTÍVEL</b>	<b>36</b>

<i>4.1 Limite de burnup em função da fração volumétrica de combustível</i>	37
<i>4.2 Potencialidade dos combustíveis tipo placa de UO<sub>2</sub>-aço inoxidável</i>	44
<b>5 ESPECIFICAÇÃO DE UM COMBUSTÍVEL TIPO PLACA DE DISPERSÃO DE UO<sub>2</sub> EM AÇO INOXIDÁVEL</b>	52
<i>5.1 Tamanho da partícula e fração volumétrica de combustível no cerne</i>	54
<i>5.2 Porosidade da partícula combustível</i>	57
<i>5.3 Espessuras do cerne, do revestimento e da placa</i>	58
<i>5.4 Enriquecimento</i>	61
<i>5.5 Uniformidade da dispersão e temperatura máxima de operação</i>	66
<i>5.6 Especificação do combustível tipo placa de UO<sub>2</sub> disperso em aço inoxidável</i>	66
<i>5.7 Análise da especificação proposta</i>	67
<b>6 CONCLUSÕES</b>	74
<b>APÊNDICE 1</b>	78
<b>APÊNDICE 2</b>	83
<b>APÊNDICE 3</b>	86



# 1 INTRODUÇÃO

Reatores de pequeno porte têm sido objeto de estudos no Brasil sob vários aspectos e recentemente houve um interesse sobre o combustível utilizado nesses reatores, principalmente sobre as alternativas de combustíveis para reatores de pequeno porte para propulsão nuclear [1-8]. Estes reatores tem características de reatores de potência da linha PWR e de reatores de pesquisa; os sistemas do reator se assemelham bastante aos de uma planta de geração núcleo-elétrica e o seu combustível normalmente é na forma de placas semelhantes aos usados em reatores de pesquisa.

As alternativas colocadas para se fabricar um combustível apropriado para propulsão nuclear são muitas e envolvem formas de combustíveis que podem ser metálicas, cerâmicas ou dispersões e, também, de compostos de urânio diferentes. Para o Brasil, as alternativas ficam reduzidas a combustíveis que utilizam o composto de urânio  $UO_2$  porque o país já possui nesta área uma experiência importante e uma infra estrutura industrial para a sua fabricação[1,4]. No aspecto da geometria, Silva[5] e Perrotta[6] fizeram estudos que demonstram que a forma de placa favorece a transferência de calor aumentando a área de troca térmica e apresenta grande rigidez estrutural. Perrotta[6], em interessante estudo, argumenta que este tipo de combustível atenderia também aos critérios de segurança passiva para reatores avançados PWR. Os tipos de combustíveis já estudados no Brasil para reatores de potência de pequeno porte são os do tipo caramelo[2,5,6] e os de dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável[3]. A seguir é abordado o nível de conhecimento existente sobre o comportamento destes combustíveis sob irradiação.

A opção de combustível tipo placa na forma de caramelo foi estudada com detalhes em trabalhos anteriores[2,5,6] e constitui-se de plaquetas de  $UO_2$  separadas por uma moldura de zircaloy e todo o conjunto revestido por zircaloy. As diferenças deste combustível para o de pastilha de  $UO_2$  revestida por vareta de zircaloy utilizado em reatores LWR são basicamente a geometria, a espessura do material combustível que tem plaquetas de  $UO_2$  que podem variar de 1,4 a 4 mm (pastilhas de  $UO_2$  tem cerca de 10 mm de diâmetro) e o revestimento colapsado à plaqueta sem nenhum espaço (combustíveis de vareta tem uma folga entre as pastilhas e as varetas de revestimento). Estas diferenças fazem com que o comportamento sob irradiação deste combustível, em comparação com o

combustível tipo dispersão, seja bastante diferente[6]. Este combustível produz um núcleo de reator com bastante reatividade devido a alta densidade de urânio [5,6,4] e permitiria tempos de recarga longos se não fosse o limite de “burnup” estipulado para este combustível.

Silva e Perrotta[5,6] discutem o limite de “burnup” do combustível tipo caramelo. O “burnup” de combustível, produz um aumento de pressão no compartimento da plaqueta do caramelo podendo causar uma separação entre a plaqueta e o revestimento. A pressão limite é normalmente a pressão externa do refrigerante que força a colapso do combustível e o estado de combustível colapsado é importante para se manter condições de transferência de calor adequadas. Após a separação revestimento-plaqueta, a piora nas condições de transferência de calor causa uma pressão ainda maior no interior do compartimento da plaqueta levando a um processo auto-alimentado em direção à falha do combustível na forma de deformação acentuada do revestimento (empolamento). Em baixas densidades de potência e temperaturas, típicas de condições operacionais de reatores de pequeno porte, o “burnup” pode atingir valores de até 50000 MWD/ton U sem a observação de danos no revestimento [5,6,7]. Em condições operacionais adversas, em que a temperatura da plaqueta de combustível e do revestimento atingem valores mais elevados, o limite deve ser inferior. Até temperaturas de 1200 °C no revestimento observa-se que a deformação deste estaria dentro de limites aceitáveis para manter condições de transferência de calor adequadas[6,7]. Assim, toma-se o limite de 30000 MWD/ton U como o limite de “burnup” do combustível tipo caramelo com revestimento de zircaloy[6].

No combustível tipo caramelo o enriquecimento utilizado pode ser inferior a 5 % e, atendendo ao limite de “burnup” mencionado, o tempo de vida de uma carga de combustível pode chegar a quase 10 anos. Em se demonstrando que este combustível pode atingir valores de “burnup” mais elevados por meio de testes de irradiação e, ou utilizando ligas mais modernas para o revestimento [6], os tempos de vida de uma carga de combustível podem ser muito longos com um combustível com enriquecimento abaixo de 20 % [1]. Algumas miniplacas de combustível caramelo foram produzidas no CTMSP e uma delas foi irradiada no reator IEA-R1 para futura análise pós-irradiação [6].

A opção de combustível tipo dispersão de placa de  $UO_2$  em aço inoxidável encontra-se em fase inicial de desenvolvimento tendo sido construída uma miniplaca de

demonstração[3] em que se constatou que o tamanho das partículas de  $UO_2$  era pequeno e que a dispersão apresentava a formação de “strings” em decorrência do processo de laminação. Entretanto os resultados podem ser melhorados com a utilização de equipamentos adequados para o desenvolvimento dos processos de fabricação[3]. Embora os trabalhos em relação ao combustível dispersão  $UO_2$ -aço inoxidável estejam em fase inicial, existe no país experiência com este tipo de combustível, pois são muito utilizados em reatores de pesquisa no mundo inteiro e no Brasil. O reator IEA-R1 utilizou ao longo do tempo vários tipos de combustíveis tipo dispersão e atualmente utiliza combustíveis fabricados pelo IPEN de  $U_3O_8$  dispersos em alumínio[8]. Esta experiência é importante pois as características de projeto e de desempenho no reator dos combustíveis tipo dispersão são semelhantes para os diversos tipos de dispersão[8,9,10].

Verifica-se, entretanto, que há a necessidade de se obter uma especificação para a fabricação das miniplacas de combustível tipo dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável[1,3,4] definindo parâmetros como fração volumétrica de combustível na dispersão, tamanho de partículas de combustível, espessuras das placas de combustível, de cerne e de revestimento. A especificação indicaria ao grupo responsável pela fabricação deste combustível os objetivos a serem perseguidos ligados ao desenvolvimento dos processos de fabricação[3]. Para consegui-la é necessário conhecer o limite máximo de “burnup” deste tipo de combustível. A especificação do combustível deve considerar os fatores importante de ordem operacional do reator, de engenharia e de fabricação. Os requisitos específicos relativos ao objetivo do reator também devem ser considerados.

Estudos iniciais foram realizados sobre a viabilidade neutrônica de um núcleo de reator com combustível tipo dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável. Os resultados principais foram que se consegue um núcleo com excesso de reatividade mediano, devido a absorção de nêutrons pelo aço inoxidável existente no combustível de dispersão e ao enriquecimento inferior a 20 %, e um tempo de vida da ordem de 4 anos[1,4]. Para compensar a baixa reatividade do núcleo do reator considerou-se na análise uma dispersão com fração volumétrica de combustível bastante elevada, da ordem de 0,4. Os estudos mostraram que o projeto do elemento combustível deve minimizar a presença de aço inoxidável para compensar a absorção dos nêutrons neste material [4]. Nesses resultados considerou-se um limite de “burnup” de 50 % dos átomos físseis para o combustível tipo dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável, assumindo-se, sem estudos mais aprofundados, um limite semelhante

ao do combustível de  $U_3O_8$  disperso em alumínio utilizado no reator IEA-R1. O comportamento do combustível tipo dispersão é bastante dependente da fração volumétrica da fase fissil[8,9,10] e isto deve ser considerado, principalmente quando se deseja ter frações volumétricas elevadas da fase fissil para ganhos de reatividade.

### 1.1 *Objetivo do trabalho*

Os objetivos principais deste trabalho são:

- a) tentar estabelecer um limite máximo de “burnup” para combustíveis tipo placa de  $UO_2$  em aço inoxidável para frações de volume de combustível elevadas e
- b) estabelecer uma especificação de combustível tipo dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável para utilização em um reator de pequeno porte para a propulsão nuclear.

Não há muita informação sobre combustíveis de dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável na literatura científica. A maioria das informações e análises deste tipo de combustível está consolidada em publicações dos anos 60 [10-13] e no bom trabalho de revisão apresentado por Snelgrove e Hofman[9]. Em relação a combustíveis de dispersão, para reatores de pesquisa, há, entretanto, uma literatura extensa relatando o grande progresso realizado em anos recentes para a dispersão de diversos compostos de urânio em alumínio, visando os reatores de pesquisa dentro do programa RERTR (Reduced Enrichment for Research and Test Reactors) [14]. O trabalho desenvolvido nesta tese está fortemente baseado nestas referências.

O Capítulo 2 deste trabalho apresenta uma introdução sobre as características dos combustíveis tipo dispersão enfatizando a dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável, as principais solicitações e modos de falha destes combustíveis e uma avaliação do comportamento deste combustível sob irradiação. No Capítulo 3 faz-se um estudo dos fatores que determinam o comportamento do combustível tipo placa de  $UO_2$ -aço

inoxidável em um reator nuclear visando o estabelecimento de uma especificação de fabricação.

Os capítulos 4 e 5 apresentam os resultados obtidos neste trabalho. O Capítulo 4 apresenta um estudo para determinar o comportamento do limite de “burnup” em função da fração volumétrica de combustível. O Capítulo 5 apresenta um conjunto de resultados de parâmetros que caracterizam a especificação de fabricação deste tipo de combustível visando um reator para a propulsão nuclear. Os parâmetros considerados na especificação são tamanho da partícula, fração volumétrica do combustível, porosidade da partícula uniformidade da dispersão, espessuras dos componentes da placa de combustível e temperaturas limitantes.

Finalmente, no Capítulo 6 são apresentadas as conclusões e nos apêndices são incluídas informações obtidas sobre métodos de fabricação deste tipo de combustível, propriedades mecânicas e térmicas e detalhes de alguns cálculos realizados.

## **REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS**

1. João Manoel Losada Moreira, Nanami Kosaka, Alfredo Y. Abe, **“Conclusões sobre os estudos sobre combustível UO<sub>2</sub>-aço inoxidável no workshop sobre combustíveis tipo placa”**, Relatório Interno, CTMSP, 2000.
2. José Augusto Perrotta, **“Desenvolvimento e fabricação de miniplacas de combustível de UO<sub>2</sub> revestido com zircaloy na forma caramelo pelo CTMSP e IPEN, Workshop sobre combustíveis tipo placa para propulsão naval”**, Comunicação Interna, Fevereiro 2000.
3. Wilmar Barbosa Ferraz, Eduardo Gomes da Silva, Marcio Soares Dias, **“Desenvolvimento e fabricação de miniplacas de dispersão de combustível de dispersão de UO<sub>2</sub> em aço inoxidável pelo CDTN”**, Workshop sobre combustíveis tipo placa para propulsão naval”, Comunicação Interna, Fevereiro 2000.
4. João Manoel Losada Moreira e Nanami Kosaka, **“Viabilidade neutrônica dos combustíveis tipo placa nas formas de caramelo (piaquetas de UO<sub>2</sub> revestido por zircaloy) e de dispersão de UO<sub>2</sub> em aço inoxidável para reatores de pequeno porte, Workshop sobre combustíveis tipo placa para propulsão naval”**, Comunicação Interna, Fevereiro 2000.
5. José Eduardo Rosa da Silva, **“Comparação do desempenho do dióxido de urânio sinterizado sob formas placa e cilíndrica para reatores a água pressurizada”**, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares”, Tese de Mestrado, São Paulo, SP, 1989.
6. José Augusto Perrotta, **“Proposta de Um Núcleo de Reator PWR Avançado com Característica Adequadas para o Conceito de Segurança Passiva”**, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Tese de Doutorado, São Paulo, SP, p. 101-102, 1999.

7. J. Delafosse, G. Lestiboudois, G. de Contenson, M. WATTEAU, "**Experience acquise sur les performances de combustibles a eau ordinaire dans le prototype a terre de Cadarache: International!**" Fair and Technical Meeting of Nuclear Industries, October 7-11, 1975 (CEA-CONF-3377).
8. Simões, A V., "**Desempenho sob irradiação de combustíveis a dispersão de MTR, Tese de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares**", Tese de Mestrado, São Paulo, SP, 1993.
9. R. W.Cahn, P. Haasen, E.J. Kramer, Editors, "**Materials Science and Technology, A comprehensive treatment**", Volume 10A, Cap.2, pag. 78, 1997.
10. A. G. Samoilov, A. F. Kashtanov, V. S. Volkov, English translation: A. Aladjem, "**Dispersion fuel nuclear reactor elements**", Jerusalem, Israel, Program for Scientific Translation, Cap. 5 e Cap.6, 1968.
11. J. R. Weir, "**A failure analysis for the low-temperature performances of dispersion fuel elements**", ORNL-2902, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, USA, 1960.
12. Readey, D.W.; Handwerk, J.H. "**Nuclear Fuel Materials** ", p 47-60, Nuclear Science and Technology for Ceramists; Proceedings of the ACS Symposium, Washington, 1966.
13. Keller, D.L. "**Dispersion Fuels**", Reactor Handbook, 2<sup>nd</sup> Edition, v.I. Materials, Interscience Publishers, p. 304 –330, 1960.
14. M. K. Meyer, J. L. Snelgrove, G. L. Hofman, S. L. Hayes," **US-RERTR advanced fuel developments plan**": 1999, Session 2B, 21<sup>st</sup> RERTR Meeting, Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, October 18-23, São Paulo, Brazil, 1998.

## 2 COMBUSTÍVEL DE DISPERSÃO DE $UO_2$ EM AÇO INOXIDÁVEL

O combustível nuclear mais conhecido é o de pastilha de  $UO_2$  em varetas de zircaloy utilizados em reatores de potência da linha LWR para a produção de energia elétrica. Outra forma de combustível nuclear bastante conhecida é aquela utilizada em reatores de pesquisa na forma de placas de combustível, normalmente uma dispersão de um composto de U em um cerne revestido por alumínio. Existem outras formas de combustível menos conhecidas para reatores com objetivos diferentes e a Tabela 2.1 apresenta diversos tipos de compostos de urânio que podem ser utilizados e algumas de suas propriedades. Nesta tabela os compostos estão ordenados em ordem decrescente de densidade de U onde vê-se que o U metálico tem a maior densidade e ligas de urânio e alumínio, utilizadas inicialmente em reatores de pesquisa, a menor. A seção de choque macroscópica de fissão do composto é proporcional a sua densidade de U e ao enriquecimento indicando que compostos que atingem maior densidade de U requerem menor enriquecimento para um dado requisito de reator.

A Tabela 2.2 apresenta as principais formas de utilização dos compostos de U em combustíveis, que podem ser classificados como ligas metálicas de alto e baixo teor de urânio, materiais cerâmicos na forma de óxidos, carbetos e nitretos e dispersões na forma de óxidos dispersos em matriz metálica e na forma de urânio metálico disperso em matriz metálica[1]. Perrotta discute os vários tipos de combustíveis nucleares apresentando suas vantagens e desvantagens [2]. Dentre os mais conhecidos, os combustíveis cerâmicos contemplam a forma  $UO_2$  utilizada em reatores de potência da linha LWR e os combustíveis tipo dispersão contemplam os vários tipos de combustíveis utilizados em reatores de pesquisa como o reator IEA-R1: dispersões de cerâmicas em alumínio,  $U_3O_8$ -Al e  $U_3Si_2$ -Al e dispersão de metal em alumínio, U-Alx.

Materiais cerâmicos dispersos em matriz metálica, comumente conhecidos como “cermets”, reúnem as vantagens do bom comportamento sob irradiação do combustível cerâmico às características de boa condutividade térmica, resistência mecânica e ductilidade da matriz metálica[3].



Tabela 2.1 – Propriedades de compostos de urânio utilizados em combustíveis nucleares.

Composto	Massa específica (g/cm <sup>3</sup> )	% de Urânio (em peso)	Massa específica do U no composto (g/cm <sup>3</sup> )	Temperatura Limite (°C)	$\Sigma_r^*$ (cm <sup>-1</sup> )
U	18,9	100	18,9	1130	0,200
U <sub>6</sub> Fe	17,7	96,1	17,0	815	0,180
U <sub>3</sub> Si	15,6	96,2	15,0	930	0,159
UN	14,3	94,4	13,5	2650	0,143
U <sub>2</sub> C <sub>3</sub>	12,9	93,0	12,0	1775	0,127
U <sub>3</sub> Si <sub>2</sub>	12,2	92,0	11,3	1650	0,120
UC <sub>2</sub>	12,9	90,6	11,7	2500	0,124
UO <sub>2</sub>	10,9	88,2	9,6	2865	0,102
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	8,4	84,5	7,1	2500	0,075
UAl <sub>2</sub>	8,1	81,5	6,6	1580	0,070
UZr <sub>2</sub>	10,3	55,3	5,7	600	0,060
UAl <sub>3</sub>	6,7	73,1	4,9	1350	0,052
UAl <sub>4</sub>	6,0	68,3	4,1	730	0,043

\* Seção de choque macroscópica de fissão para nêutrons de 0,025 eV e enriquecimento do U natural.

Tabela 2.2 – Formas de combustíveis de urânio mais utilizadas.

### Combustíveis de Urânio

Metálicos	Ligas com alto teor de Urânio	Exemplos: U metálico, U-Mo, U-Ni, U-Zr
	Ligas com baixo teor de Urânio	Exemplos: U-Zr, U-Zr-Hx, U-Al
Cerâmicos		Exemplos: UO <sub>2</sub> , UC, UM
Dispersões	Dispersões de Combustíveis Cerâmicos (Cermets)	Exemplos: UO <sub>2</sub> -Aço Inox., UO <sub>2</sub> - Zry U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> - Al, U <sub>3</sub> Si <sub>2</sub> - Al
	Dispersões de Combustíveis metálicos	Exemplos: UAlx-Al, UZr-Zry-4

Fonte: Ref. 1

Os combustíveis nucleares constituídos de dispersão permitem que se obtenha propriedades físicas, térmicas e mecânicas que não seriam alcançadas utilizando somente o material combustível, aumentando a vida útil de operação no reator. Nesta forma de combustível os danos causados pelos produtos de fissão ficam localizados em uma zona imediatamente adjacente à fase dispersa (contendo elemento fissil), minimizando os danos na matriz metálica e permitindo níveis de “burnup” elevados [4,5]. Assim, vamos estudar a seguir a aplicação deste tipo de combustível, mais precisamente a dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável para reatores de pequeno porte para a propulsão nuclear.

## 2.1 Combustíveis tipo dispersão de $UO_2$ em aço inoxidável

Combustíveis tipo dispersão consistem de partículas contendo combustível dispersas em um meio metálico, cerâmico ou de grafite. As partículas de combustível devem ser de compostos químicos compatíveis com o meio onde ocorre a dispersão, denominado de matriz. Nestes combustíveis, busca-se isolar as partículas combustíveis de tal forma que um volume substancial de material da matriz não sofra danos causados pelos produtos de fissão e mantenha as suas propriedades físicas e mecânicas inalteradas quando irradiados. No combustível de interesse neste trabalho, a partícula de combustível é o composto cerâmico  $UO_2$  e a matriz onde se faz a dispersão é o aço inoxidável.

A densidade de material combustível no cerne depende da fração volumétrica de combustível na dispersão. Considerando o combustível  $UO_2$ -aço inoxidável, chamando  $f_v$  a fração volumétrica da fase de combustível na dispersão, temos que a densidade do cerne deste combustível será

$$\rho^{Cerne} = f_v \rho^{OX} + (1 - f_v) \rho^{SS} \quad (2.1)$$

onde  $\rho^{Cerne}$  é a densidade da mistura de material do cerne,  $\rho^{OX}$  é a densidade do  $UO_2$  e  $\rho^{SS}$  é a densidade da matriz de aço inoxidável. Nota-se que a quantidade de U que vai existir no cerne depende da densidade do composto  $UO_2$ , da sua fração neste composto e da fração volumétrica,  $f_v$ . Uma importante consequência da Eq. (2.1) é que para combustíveis com

baixa fração volumétrica é necessário compensar com um enriquecimento elevado de  $^{235}\text{U}$  para se conseguir manter a reação de fissão em cadeia em um reator nuclear.

A forma mais comum que se encontra os elementos combustíveis tipo dispersão é a placa plana ou curva. Há também referências a combustíveis tipo dispersão na forma de varetas na década de 50,[4] entretanto, a forma de placa se estabeleceu para reatores de pesquisa e de teste de materiais devido fornecerem grande área de troca de calor e permitirem que se atinja altos níveis de fluxo de nêutrons[6]. A dispersão de combustível, denominada cerne, é revestida por placas metálicas de espessuras suficientes para conter o escape de produtos de fissão. No combustível tipo dispersão de aço-inoxidável, o cerne  $\text{UO}_2$ -aço inoxidável em forma plana é revestido por duas placas de aço inoxidável. A forma resultante do combustível é uma placa. O elemento combustível é formado por um conjunto de placas fixadas a uma estrutura lateral formando uma caixa[7,8]. A Figura 2.1 mostra esquematicamente as principais formas de montagem e componentes de um combustível tipo dispersão.

O placa de combustível deve reter produtos de fissão durante o período de operação do reator, uma vez que a liberação de tais produtos para o circuito primário do reator pode causar um aumento nos níveis de dose e de rejeitos. Assim sendo, ambos o revestimento e a matriz devem permanecer em boas condições durante a irradiação no reator. Rupturas no revestimento e trincas na matriz são especialmente perigosas uma vez que podem levar à corrosão do material combustível exposto ao refrigerante. A interação com o refrigerante normalmente conduz a destruição progressiva da placa de combustível, ou um aumento no seu volume[4].

Uma maneira de minimizar o efeito dos danos de irradiação é o revestimento das partículas de combustível com filmes protetores. Este revestimento protege a partícula lhe dando uma forma mais esférica, aumentando sua resistência estrutural e impedindo a fuga de fragmentos de fissão para a matriz. A fragilidade da partícula de combustível associada a sua porosidade é compensada pelo revestimento. Verifica-se que uma camada de revestimento pode proteger a matriz de danos diretos devido aos fragmentos de fissão e limitar a propagação de trincas na placa de combustível.

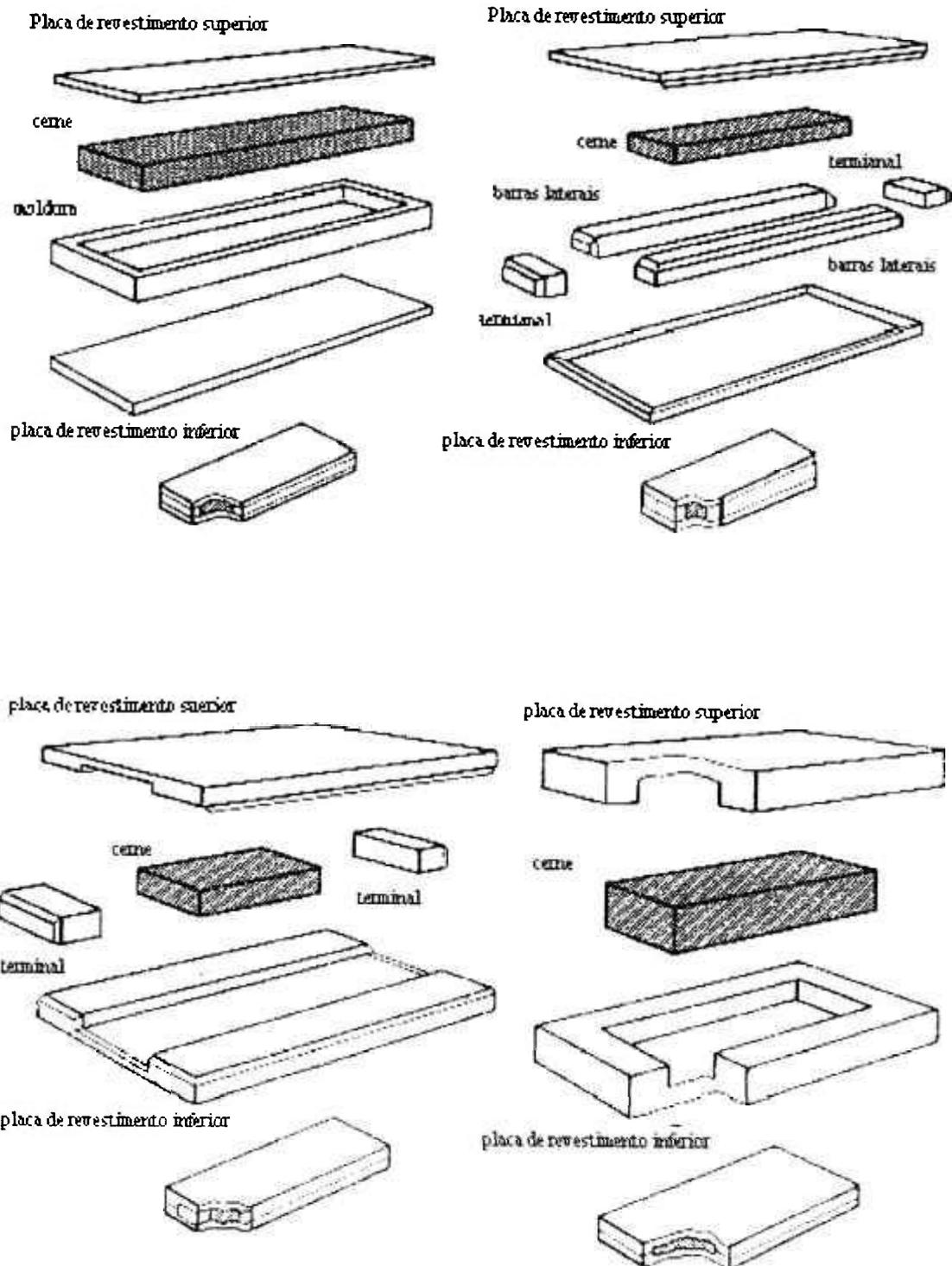


Figura 2.1 – Principais formas de montagem de placas combustíveis tipo dispersão

Fonte: Ref.5.

## ***2.2 Principais solicitações e modos de falhas de combustíveis de dispersão tipo placa***

As condições sob as quais os elementos combustíveis operam como temperatura, gradientes de temperatura dentro do elemento combustível e nível de potência influenciam no seu comportamento[4,8]. A estabilidade sob irradiação depende da sua forma geométrica e das propriedades mecânicas. As falhas em elementos combustíveis tipo vareta ocorrem normalmente devido ao aparecimento de rachaduras longitudinais no revestimento mas, nos elementos tipo placa, surgem trincas no cerne ou no revestimento e bolhas na matriz ou entre a matriz e o revestimento. Para evitar estes problemas os elementos combustíveis de dispersão tipo placa devem ter algumas características que são mencionadas a seguir.

Durante a irradiação são esperadas variações dimensionais e volumétricas que devem ser computadas durante a fase de projeto do combustível. Variações volumétricas, particularmente variações locais causadas pelo inchamento do cerne ou do revestimento, bolhas internas, trincas, assim como flexão ou flambagem (dobra) da placa de combustível, podem conduzir à deterioração das condições de troca térmica (resultando na redução do fluxo de refrigerante ou da espessura da lâmina de refrigerante entre as placas de combustível). Isto pode causar superaquecimento e danos no elemento combustível.

As propriedades mecânicas da placa de combustível dependem primordialmente das propriedades da matriz[4,8]. Estas propriedades dependem em grande parte do método de preparação do combustível tipo dispersão. A resistência mecânica da partícula também tem impacto importante na resistência da placa e durante o processo de fabricação deve ser evitada a fragmentação da partícula. Consequentemente, as técnicas usadas para preparação do elemento combustível tipo dispersão tem consideráveis influências em sua performance no reator. Nos Apêndices 1, 2 e 3 são apresentadas várias técnicas de fabricação deste tipo de elemento combustível e os cuidados necessários para garantir boas propriedades mecânicas.

Embora o combustível tipo dispersão contenha uma matriz que relativamente não é afetada pela irradiação, em algumas regiões localizadas os danos devidos aos produtos de fissão são severos. As fontes potenciais de instabilidade nos combustíveis tipo dispersão

estão relacionadas ao aumento de volume das partículas combustíveis devido ao acúmulo e interação dos átomos dos produtos de fissão. Aumentos volumétricos devido ao acúmulo de produtos de fissão são esperados, a menos que a estrutura da fase dispersa contenha espaços livres para acomodar o aumento volumétrico e exista porosidade microscópica dentro da partícula de combustível para acomodar o aumento volumétrico devido aos produtos de fissão.

Em reatores de potência, os elementos combustíveis atingem altas temperaturas durante a operação de trabalho e devem possuir boas propriedades de transferência de calor. Aumentos na temperatura afetam adversamente as propriedades mecânicas do material da matriz e reduz sua resistência aos danos devido a irradiação. O aumento da temperatura no combustível aumenta a pressão que os produtos de fissão gasosos exercem no cerne do combustível e leva a fase fissil a inchar. O aumento de temperatura também leva a um aumento na taxa de difusão de produtos de fissão gasosos para regiões do cerne como limites de grãos na partícula e interface entre partícula e cerne, tendo como consequência um acúmulo de gases nestes locais, elevação da pressão e inchamento do combustível. A ciclagem térmica que o combustível é submetido devido as variações de potência do reator, principalmente quando é operado intermitentemente como em reatores de pesquisa, de teste ou navais, causa gradientes e variações temporais de temperatura que produzem tensões e deformações irreversíveis na placa de combustível levando eventualmente a fadiga. Para contornar o problema deve-se utilizar um material de matriz dúctil que apresente deformação plástica e diminua tensões internas e previna trincas ou rachaduras.

As principais solicitações e modos de falha dos combustíveis tipo dispersão são causadas na fabricação e durante a operação[4]. As principais são resumidas a seguir:

- tensões associadas à presença das partes necessárias para a suportaç o e manter o espaçamento entre as placas de combustivel no elemento combustivel;
- flambagem ou flex o das placas combustiveis que podem causar uma diminuiç o do escoamento do refrigerante levando a um superaquecimento localizado das mesmas;
- tens es n o convencionais devido   cargas locais tais como as que surgem em funç o das expans es t rmicas localizadas de part culas combustiveis,

inchamento ou variações volumétricas das partículas e matriz, e devido a bolhas de gás;

- tensões não convencionais devido a variações de volume como resultado da interação entre os constituintes do elemento combustível e formação de produtos de baixa densidade e resistência;
- tensões mecânicas devido a tensões e expansões térmicas geradas por gradientes de temperatura causados durante a operação.

Em resumo falhas em um elemento combustível tipo placa podem ser estabelecidas devido a sua configuração, propriedades mecânicas e regime de operação. As falhas são usualmente verificadas através de trincas terminais ou bolhas de gás no cerne entre a matriz e o revestimento.

### ***2.3 Desempenho do combustível tipo dispersão $UO_2$ -aço inoxidável sob irradiação***

A performance de elementos combustíveis tipo dispersão é afetada consideravelmente por variações nas propriedades da matriz. Os danos devido a irradiação podem ser devidos a fluência de nêutrons rápidos na matriz e na placa de revestimento e ao acúmulo de produtos de fissão. Os danos na matriz causados por produtos de fissão, ao contrário que ocorre com aqueles causados pelos nêutrons rápidos, resultam na redução de suas propriedades mecânicas, sendo este efeito mais observável ao redor das partículas de combustível[4]. A extensão do dano ao redor da partícula é aproximadamente igual ao alcance dos fragmentos de fissão dentro do material da matriz. Os principais fatores para a estabilidade irradiativa de elementos combustíveis tipo dispersão estão descritos abaixo:

- a) tamanho das partículas de combustível e fração volumétrica do combustível na dispersão;
- b) forma e densidade destas partículas;
- c) fração volumétrica da fase fissil;
- d) volume de matriz danificada pelos fragmentos de fissão;

- e) estrutura do combustível tipo dispersão (presença ou ausência de compressão “estiramento”) e
- f) uniformidade da distribuição da fase fissil dentro do cerne.

O tamanho e a forma da partícula afeta acentuadamente o escape de produtos de fissão gasosos. Para partículas de um dado diâmetro, dependendo da temperatura, a quantidade de gases que escapa é muito grande. O processo depende da difusão dos gases na fase fissil (partícula de combustível) e na fase metálica (matriz). Partículas esféricas e maiores diminuem o escape de gases de fissão, melhoram a estrutura do combustível e aumentam a estabilidade sob a irradiação.

A porosidade nas partículas fisséis melhoram acentuadamente a estabilidade sob irradiação dos elementos combustíveis tipo dispersão. Uma diminuição na densidade da fase fissil, acompanhada por um aumento na porosidade, é vantajosa sob o ponto de vista de irradiação mas reduz a resistência mecânica das partículas. Poros nas partículas fisséis fornecem espaços livres para o acúmulo de produtos de fissão. Isto é uma vantagem nos elementos combustíveis tipo dispersão onde a porosidade interna pode ser criada e controlada nas partículas da fase fissil para acomodar aumentos volumétricos devido ao inchamento (expansão) causado pelo “burnup”. Tensões internas criadas durante o inchamento da fase fissil podem ser minimizadas se o combustível tipo dispersão contiver espaço livre para acomodar o aumento volumétrico da fase fissil. Entretanto, baixar a densidade favorece o aparecimento de trincas e esmagamento das partículas combustíveis durante a manufatura do elemento combustível levando ao enfraquecimento da estrutura do combustível tipo dispersão.

O desempenho dos combustíveis tipo dispersão está relacionado à sua estabilidade (capacidade de resistir aos danos de irradiação, manutenção da integridade mecânica, ausência de variações dimensionais significativas, etc). Esta estabilidade está intimamente ligada ao nível de “burnup”, a concentração de átomos fisséis e, conseqüentemente ao que é gerado em termos de produtos de fissão. Portanto, em termos de estabilidade, deve ser verificado a influência dos itens a até f citados acima no comportamento do combustível sob irradiação. O estudo da influência destas variáveis permite estimar quais são as melhores combinações de valores para a fabricação do combustível de dispersão. Isto será



feito nos Capítulos 3 e 5 onde uma especificação de combustível de  $\text{UO}_2$ -aço inoxidável é feita para um reator de pequeno porte.

O desempenho de alguns tipos de combustível de dispersão em elementos tipo placa e tipo vareta são demonstrados em experimentos em reatores de testes de materiais e reatores de pesquisa. Um bom exemplo de desempenho de tais combustíveis foi a utilização de cermetes  $\text{U}_3\text{O}_8 - \text{Al}$  no reator HFIR[9]. Segundo Binford[9], 148 elementos combustíveis foram irradiados nesse reator, sendo que os mesmos continham um total de 25303 placas com cermetes de 30,2 % em peso de  $\text{U}_3\text{O}_8$  e 54612 placas de 40,1 % em peso de  $\text{U}_3\text{O}_8$ . O regime operacional no reator foi tal que houve transientes termo-hidráulicos muito mais severos do que os encontrados na maioria dos reatores de pesquisa. No período de 1965 a 1977 o escape de produtos de fissão foi detectado somente uma vez. Martin et al.[10], através de ensaios de irradiação em placas miniaturas de urânio em alumínio concluíram que estas dispersões apresentavam satisfatório desempenho até densidades de fissão da ordem de  $1,5$  a  $2,4 \times 10^{21}$  fissões/ $\text{cm}^3$  em temperaturas que variavam entre 60 e 120 °C.

Para combustíveis de dispersão de  $\text{UO}_2$  em aço inoxidável Saimolov et al.[11] apresenta resultados bastante extensos para uma fração volumétrica de combustível na dispersão em torno de 0,24. Dados sobre testes de irradiação de elementos combustíveis tipo dispersão de  $\text{UO}_2 - \text{aço inoxidável}$  apresentados nesta referência indicam a potencial utilização destes combustíveis a altas temperaturas. Um resumo das informações obtidas através dos testes citados acima é apresentado na Figura 2.2[11] onde o limite de “burnup” é apresentado em função da temperatura da superfície da placa de combustível. A Tabela 2.3 dá uma descrição sucinta dos materiais empregados nas dispersões que foram submetidas aos testes de irradiação. Os elementos combustíveis submetidos às condições de temperatura e “burnup” abaixo da área hachurada não apresentaram trincas, fissuras ou liberação de produtos radioativos e os elementos que foram submetidos a condições de “burnup” acima da referida zona apresentaram falhas. Para as condições de irradiação da zona hachurada não seria possível prever se haveria ou não falha durante a operação.

O limite de “burnup”,  $B^{\text{lim}}$ , na Figura 2.2 é dado em uma unidade diferente da usada normalmente para combustíveis de reatores LWR. A unidade “at %” na Figura 2.2 significa a razão entre o número total de átomos fissionados por unidade de volume de

cerne e o número total de átomos presentes no cerne por unidade de volume de cerne. Esta unidade é apropriada porque o dano em combustível tipo dispersão depende da proporção em relação ao total de átomos existentes na dispersão. Estes combustíveis admitem um “burnup” muito mais elevado em termos de [MWD/ton U] porque a matriz tem uma ampla região não danificada pelos produtos de fissão.

Os resultados apresentados na Figura 2.2 foram obtidos a partir de diversas irradiações para combustíveis com fração volumétrica de combustível no cerne em torno de 0,24 o que equivale a uma fração mássica de  $\text{UO}_2$  de 0,3 no cerne. Como o dano da irradiação nesses combustíveis ficam restritos à região próxima à partícula de combustível tem-se que quanto maior é a fração volumétrica de combustível na dispersão maior será a consequência em termos de dano para um mesmo nível de “burnup”. Os resultados apresentados nesta Figura podem ser considerados conservativos para frações volumétricas de combustível inferiores a 0,24 e como não-conservativas para frações volumétricas mais elevadas que 0,24. Entretanto, os resultados para outras frações de volume de combustível não deve ser muito diferente destes resultados. No Capítulo 4 será estimada a influência da fração volumétrica de combustível no limite admissível de “burnup” em uma tentativa de se extrapolar estes resultados para valores de fração de volume de combustível,  $f_v$ , da ordem de 0,5 ou 0,6.

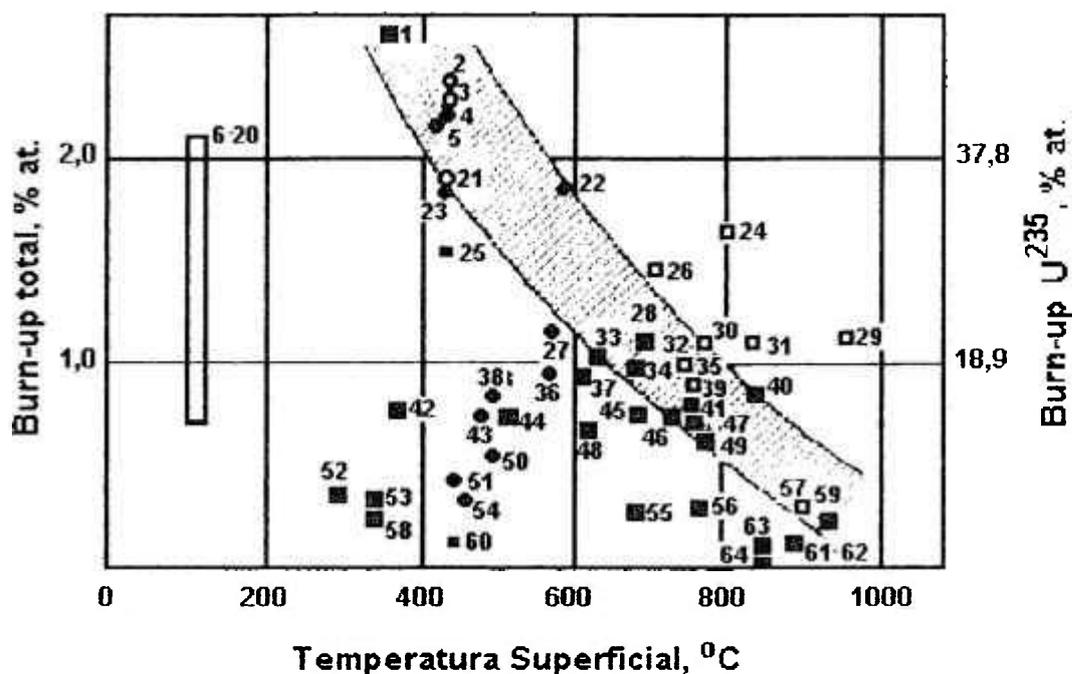


Figura 2.2 - Características de irradiação de combustíveis tipo dispersões de  $UO_2$  - Aço inoxidável, contendo 18 - 30 % em peso de  $UO_2$ , 93 % de enriquecimento

Fonte: Ref. 11

Tabela 2.3 - Descrição sucinta dos materiais empregados nas dispersões combustíveis utilizados na elaboração da Figura

Descrição do Material	Número na figura
1 - Matriz de Aço Inoxidável ( Tipo 304), Revestimento de Aço Inoxidável ( Tipo 304 L ) , conteúdo de $UO_2$ - 17,92 a 26,89 % em peso.	6 - 20
2 - Matriz de pó compactado contendo, 65,5 % de Fe; 18 % de Cr; 14 % de Ni; 2,5 % de Mo, Revestimento de Aço inoxidável (tipo 318), conteúdo de $UO_2$ - 25 a 30 % em peso.	24, 26, 30, 31, 32, 35, 40, 49, 57, 59, 61, 62
3 - Matriz de pó compactado contendo, 73 % de Fe; 18 % de Cr; 9 % de Ni; Revestimento de Aço inoxidável (tipo 318), conteúdo de $UO_2$ - 30 % em peso.	1, 5, 22, 25, 29, 39, 41, 42, 52, 53, 58
4 - Matriz e Revestimento de Aço inoxidável (tipo 310), conteúdo de $UO_2$ - 30 % em peso.	55, 56, 63, 64
5 - Matriz de pó compactado contendo; 60 % de Fe; 23 % de Cr; 17 % de Ni; Matriz de Aço inoxidável (tipo 318), conteúdo de $UO_2$ - 30 % em peso.	28
6 - Matriz de pó compactado contendo; 65,5 % de Fe; 18 % de Cr; 14 % de Ni; 2,5 % de Mo; Revestimento de Aço inoxidável (tipo 318), conteúdo de $UO_2$ - 30 % em peso.	33, 34, 37, 44, 45, 46, 47, 48.
7 - Matriz e Revestimento de Aço inoxidável (tipo 347), conteúdo de $UO_2$ - 23 a 30 % em peso.	38, 50, 51, 54, 60
8 - Matriz de pó compactado contendo; 70 % de Fe, 18 % de Cr, 12 % de Ni; Revestimento de Aço inoxidável (tipo 304), conteúdo de $UO_2$ - 24,5 a 30 % em peso.	2, 3, 4, 21, 23, 27, 36, 43

Fonte: Ref. 11, pags 187-188.

## *REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS*

1. Perrotta, J.A, “**Projeto de Elementos Combustíveis de Reatores Nucleares. In: Course on Small Computers in Research Operation and Use**”, Public: IPEN/CNEN-SP, São Paulo, Vol.1,1988.
2. Perrotta, J. A, “**Proposta de Um Núcleo de Reator PWR Avançado com característica Adequadas para o Conceito de Segurança Passiva**”, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – SP, Tese de Doutorado, 1999.
3. American Society for Metals. “ **Metals Handbook** ”, Metals Park, 1980, vol.3, p.353, p.755.
4. Samoilov, A.G.; Kashtanov, A.I. and Volkov, V.S, “**Dispersion-Fuel Nuclear Reactor Elements**”, Israel Program for Scientific translations Ltd., 1968.
5. Keller, D.L. “ **Dispersion Fuels** ”, Reactor Handbook, 2<sup>nd</sup> Edition, v.1. Materials, Interscience Publishers, 1960, p. 304 –330.
6. Cahn, R. W.; Haasen, P.;Kramer, E. J., “ **Material Science and Technology**”, Vol. 10A, Nuclear Materials, Part.1,p.49,1994.
7. Silva, J. E. R. “ **Comparação do Desempenho do Dióxido de Urânio Sinterizado sob a Forma Plana e Cilíndrica para Reatores à Água Pressurizada**”, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – SP, Tese de Mestrado, p.25-27, 1989.
8. A, G. Simões, “ **Desempenho sob Irradiação de Combustíveis a Dispersão de MTR**”, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares- SP, Dissertação de Mestrado, p.10,11,26 e 27, 1993.
9. Binford, F.T.; Knight, R. W. “**The use of U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> - Al Cermet Fuel in Research Reactors**”. Trans. Am. Nucl. Soc., 27: p 834-835, 1977.

10. Martin, M. M.; Richt, A. E.; Martin, W. R. "**Irradiation Behavior of Aluminium-Base Fuel Dispersions**". Oak Ridge, Tenn. Oak Ridge National Lab., May 1973. (ORNL 4856).
11. Samoilov, A.G.; Kashtanov, A.I. and Volkov, V.S, "**Dispersion-Fuel Nuclear Reactor Elements**", Israel Program for Scientific translations Ltd., 1968, p:186-191.

### **3 COMPORTAMENTO SOB IRRADIAÇÃO DE UM COMBUSTÍVEL TIPO PLACA DE DISPERSÃO DE UO<sub>2</sub>-AÇO INOXIDÁVEL**

Neste capítulo vamos analisar os fatores que influenciam a especificação de fabricação de um combustível tipo dispersão de UO<sub>2</sub> em aço inoxidável visando um reator para propulsão naval. Samoilov e outros [1] faz uma extensa análise dos combustíveis tipo dispersão e apresenta os principais fatores que determinam a estabilidade dos combustíveis de dispersão sob irradiação que podem ser resumidos em tamanho da partícula de UO<sub>2</sub> na dispersão, fração volumétrica da fase fissil, uniformidade do sistema de dispersão, efeitos dos processos de fabricação do combustível de dispersão, ciclagem térmica e tempo de irradiação desejado, entre outros. Estes fatores devem ser avaliados e considerados na especificação do combustível de acordo com o objetivo desejado para o reator nuclear e suas condições operacionais.

Os requisitos colocados para um reator naval são parecidos com aqueles para reatores para produção núcleo-elétrica, principalmente os requisitos colocados para reatores avançados a água leve, ALWR[2]. Em relação ao combustível de um reator para propulsão nuclear, pode ser considerado desejável requisitos como simplicidade de projeto, tempo de recarga longa, que neste caso seria em torno de 1200 dias operando em plena potência, ciclagem térmica e baixa taxa de falhas para diminuir a produção de rejeitos e níveis de doses na instalação. Perrotta demonstra que reatores tipo placa atendem a vários requisitos, inclusive outros relacionados a margem térmica de forma melhor que reatores com combustível tipo vareta[2].

Simões[3] desenvolveu um conjunto de especificações para combustíveis de dispersão em U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> em alumínio, U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> e U-Al<sub>x</sub> para reatores de pesquisa apresentando valores limites para vários parâmetros, preocupações e cuidados que se aplicam para combustíveis tipo dispersão em geral. Os principais parâmetros abordados na especificação, semelhantes aos indicados na Seção 2.3, são a fração volumétrica do combustível no cerne, a porosidade, espessura mínima do revestimento, espessura do cerne, espessura da placa de combustível, material de revestimento, defeitos de superfície e tratamento superficial.

Neste capítulo, levando-se em conta os pontos apresentados acima, considera-se os parâmetros apresentados na Tabela 3.1 para a especificação de fabricação. Os fatores que influenciam cada um dos parâmetros, sejam de ordem operacional do reator, de engenharia e de fabricação ou de requisitos para reatores navais são analisados e apresentados a seguir.

**Tabela 3.1 – Parâmetros principais considerados na especificação de fabricação de um combustível tipo placa para reatores a propulsão.**

<b>Parâmetro</b>	<b>Fatores que influenciam a especificação</b>
Tamanho da partícula do combustível	Limite de “burnup” e processo de fabricação
Fração volumétrica do combustível na dispersão	Limite de “burnup” e processo de fabricação
Porosidade da partícula de combustível	Limite de “burnup” e processo de fabricação
Uniformidade da dispersão	Limites térmicos, processo de fabricação e rigidez mecânica
Enriquecimento do combustível	Requisito de projeto e limite de “burnup”
Espessura do cerne de combustível da placa	Limites térmicos, processo de fabricação e limite de “burnup”
Espessura mínima do revestimento	Limites térmicos, processo de fabricação e limite de “burnup”
Espessura da placa de combustível	Limites térmicos e rigidez mecânica
Temperaturas de fabricação e operação	Limites térmicos, rigidez mecânica, limite de “burnup”

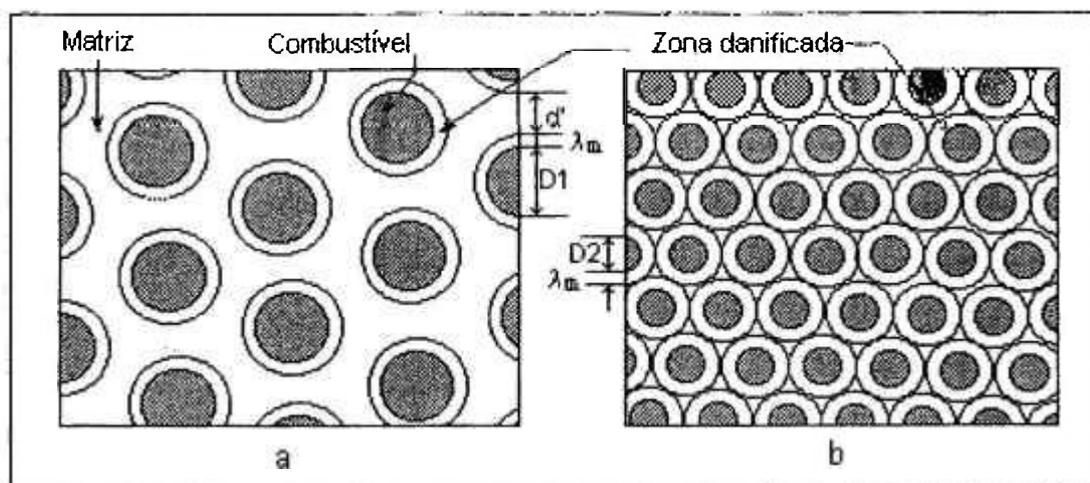
### 3.1 *Tamanho da partícula e fração volumétrica de combustível no cerne*

Em elementos combustíveis tipo dispersão, a estabilidade sob irradiação é determinada pela distribuição geométrica das partículas combustíveis dentro da matriz e pelo nível de solicitação a que ele será submetido no reator. Alguns estudos foram feitos para estabelecer quais são os valores mais vantajosos sob o ponto de vista da irradiação [1,3,4,5] para o tamanho e a fração volumétrica de partículas de combustível e a sua distribuição na matriz. Em um elemento combustível tipo dispersão após a irradiação, devido aos produtos de fissão que escapam da partícula e chegam a matriz, cada partícula combustível será gradualmente circundada por uma região danificada de matriz. O alcance médio dos fragmentos de fissão na matriz determina a espessura da região danificada que, assumindo uma partícula de forma esférica, terá a forma de uma calota esférica. A Tabela 3.2 apresenta o alcance médio dos produtos de fissão em alguns materiais onde nota-se que para o ferro ou aço inoxidável este alcance é de 6,7  $\mu\text{m}$ . A formação de zonas de danos com dimensões determinadas pela penetração dos fragmentos de fissão tem confirmação experimental conforme ilustrado na Figura 3.1. Devido a mudanças nas propriedades materiais promovidas pelo fragmentos de fissão durante o processo de irradiação no reator, o material da matriz pode ser considerado como consistindo de duas partes: danificada e não danificada. Pode-se pensar que o dano global da matriz depende da razão entre os volumes das regiões danificada e não-danificada ou da fração volumétrica ocupada pelas partículas de combustível na dispersão. A continuidade da parte não danificada da matriz é a principal condição para assegurar a preservação das propriedades da matriz [3,4,5].

Tabela 3.2 – *Alcance de fragmentos de fissão em combustíveis e matrizes metálicas.*

Material da matriz	Alcance médio	
	( $\text{mg}/\text{cm}^2$ )	( $\mu\text{m}$ )
U	12,6	6,8
Zr	5,8	9,1
UO <sub>2</sub>	10,0	9,4
Fe	5,2	6,7
Al	3,7	13,7





**Figura 3.1 - Representação esquemática do núcleo de combustível tipo dispersão com a mesma fração volumétrica e tamanho de partículas de combustível diferentes.**

Idealmente, o combustível tipo dispersão deveria ter partículas esféricas de combustível circundadas pelo material da matriz, esféricas porque é a forma geométrica com menor razão entre a superfície externa e o volume de forma que minimiza o escape de produtos de fissão para a matriz. A distribuição das partículas de combustível na matriz deveria ser uniforme formando uma rede para se conseguir maior uniformidade na produção de energia via fissão. A distribuição escolhida para representar a distribuição das partículas na matriz é aquela que fornece a maior densidade em uma célula, o arranjo de partículas na forma cúbica de face centrada mostrado na Figura 3.2 [6]. Em linhas gerais a análise a seguir do combustível tipo dispersão considera que [3].

- as partículas fisséis apresentam diâmetros esféricos idênticos;
- as partículas fisséis estão distribuídas regularmente e espaçadas igualmente entre si;
- a região danificada da matriz está confinada a uma camada de espessura uniforme envolvendo cada partícula fissil;
- e não existe porosidade de qualquer espécie na dispersão.

As partículas devem ficar separadas de uma distância mínima para que se preserve a resistência estrutural da placa de combustível que é dada pela matriz. Chamando  $d$  a distância entre as partículas de combustível, ela é dada por

$$d = d' + 2\lambda_m \quad (3.1)$$

onde  $d'$  é a distância entre as regiões danificadas que circundam a partícula e  $\lambda_m$  é o alcance médio dos produtos de fissão na matriz, conforme mostrado na Figura 3.1. A fração volumétrica do combustível na dispersão é dada pela sua fração volumétrica na célula, que para um empacotamento do tipo cúbico de face centrada é [6]

$$f_v = \frac{\pi}{3\sqrt{2}} \left( \frac{D}{D+d} \right)^3 = 0,74 \left( \frac{D}{D+d} \right)^3 \quad (3.2)$$

onde  $D$  é o diâmetro da partícula de combustível.

A fração volumétrica relaciona-se com a fração mássica pela seguinte equação:

$$\frac{f}{f_v} = 1 + \frac{\rho_{comb.}}{\rho_{matriz}} \left( \frac{f}{f_m} \right) \quad (3.3)$$

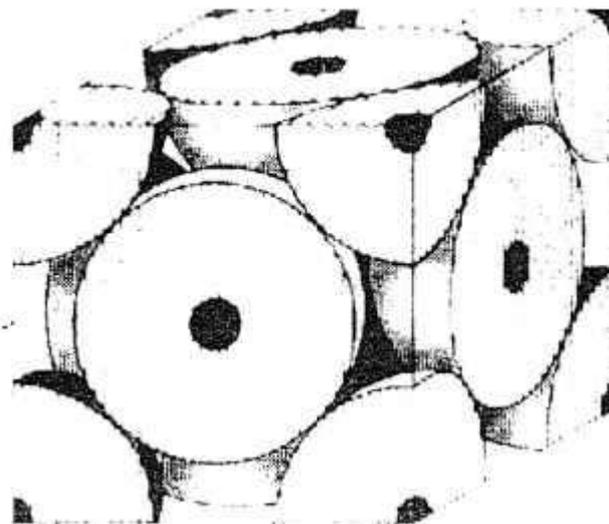
onde  $\rho_{comb.}$  é a densidade do combustível e  $\rho_{matriz}$  é a densidade da matriz.

A distância mínima entre as partículas de combustível para que haja continuidade da região não-danificada é aquela em que as regiões danificadas de partículas vizinhas se tocam, ou seja

$$d \geq 2\lambda_m \quad (3.4)$$

As Eqs. 3.2, 3.3 e 3.4 relacionam o diâmetro da partícula, a distância entre elas e a fração volumétrica para que se consiga manter a região não-danificada contínua. A fração volumétrica de combustível na dispersão também determina a densidade máxima de urânio

que se conseguirá no combustível de dispersão. A distância entre as partículas combustíveis deve ser tal que não ocorra o contato ou superposição entre as partes danificadas de matriz que circundam as partículas de combustível. Esta distância depende da fração da dispersão ocupada pelo combustível. Para um dado volume de combustível as distâncias podem variar em função de seus tamanhos. A Figura 3.1 mostra claramente a dependência da distância entre as partículas e o tamanho das partículas, para uma dada fração volumétrica de combustível. Os dois sistemas diferem somente pelo tamanho das partículas de combustíveis pois a zona de material da matriz danificada pelos produtos de fissão tem a mesma espessura “e” mostrada ao redor de cada partícula. Na representação mostrada na Figura 3.1, em (a) as partes externas danificadas estão distantes uma das outras e em (b), as partes externas danificadas estão em contato. No segundo caso, a continuidade da região da matriz não-danificada está prejudicada e espera-se que haja comprometimento sério das propriedades materiais do combustível durante a irradiação.



**Figura 3.2 – Célula Unitária Cúbica de Face Centrada**

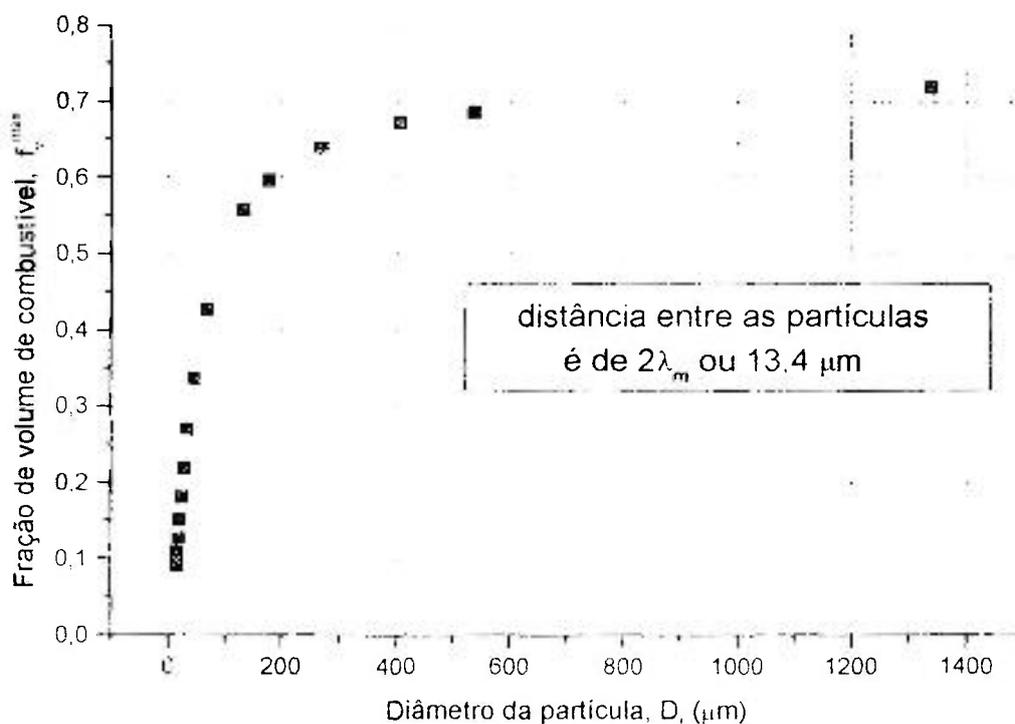
Fonte: Ref.6

A Figura 3.3 mostra o comportamento da fração volumétrica de combustível máxima que pode se conseguir, mantendo a região danificada contínua, em função do diâmetro da partícula de combustível para um combustível de dispersão UO<sub>2</sub>-aço inoxidável. Considera-se aqui a distância mínima admissível entre as partículas dada pela Eq. 3.4, isto é, duas vezes o alcance médio dos produtos de fissão na matriz. Para o aço inoxidável

tomou-se o alcance médio dos produtos de fissão no Fe, isto é  $6,7 \mu\text{m}$ . A análise da Eq. 3.4 e da Figura 3.3 permite dizer que:

- a fração de volume do combustível pode atingir valores máximos em torno de 0,7 para diâmetros de partículas muito grandes ( $>750 \mu\text{m}$ );
- para um determinado tamanho de partícula existe uma fração volumétrica crítica (máxima) de partículas fisséis, acima da qual, a matriz não danificada deixa de ser contínua. Quanto menor for esta fração maior será o volume da matriz não danificado;
- a descontinuidade da matriz não-danificada ocorre abaixo de um tamanho crítico (mínimo) de partícula para uma dada fração volumétrica.

As considerações referem-se às condições ideais assumidas para o combustível. Há uma dependência do tamanho das partículas de combustível e da sua distribuição na matriz e o controle durante a fabricação do tamanho, da fração volumétrica e da distribuição espacial das partículas fisséis na dispersão é de extrema importância.



**Figura 3.3 - Fração volumétrica máxima do combustível mantendo a continuidade da matriz em função do diâmetro da partícula para um combustível dispersão de  $\text{UO}_2$ -aço inoxidável.**

### ***3.2 Porosidade da partícula combustível***

A densidade, na ausência de outros fatores, é uma indicação direta da resistência da partícula e possíveis esforços mecânicos. Partículas mais densas são mais resistentes à fragmentação e portanto preferíveis em combustível tipo dispersão. A diminuição na densidade da fase fissil, acompanhada por um aumento da porosidade, conduz a formação de trincas e rupturas das partículas durante a laminação do combustível, formando “strings” ou regiões e deve prejudicar a estrutura do elemento combustível tipo dispersão. A alta densidade da partícula também favorece o aspecto neutrônico aumentando a taxa de reação de fissão e aumentam a retenção de produtos de fissão.

Embora a alta densidade do combustível seja desejada do ponto de vista estrutural e neutrônico, uma certa porosidade no interior das partículas é benéfica para acomodar os produtos de fissão sólidos e principalmente os voláteis. A porosidade das partículas fisséis melhora significativamente a estabilidade irradiativa de elementos combustíveis tipo dispersão. Como um exemplo, um trabalho sobre elementos combustíveis tipo dispersão de UO<sub>2</sub>-aço inoxidável contendo 30 % de UO<sub>2</sub> (partículas de UO<sub>2</sub> com tamanho de 120 µm) foi estabelecido que uma diminuição da densidade de 95 para 90 % do valor teórico permite um acréscimo no nível de “burnup” por um fator maior que 1,5[8].

A estabilidade de uma placa combustível quando irradiada, está relacionada ao seu inchamento como resultado do acúmulo de produtos de fissão gasosos em certas regiões do combustível. Os produtos de fissão voláteis são acumulados nos vazios (porosidades) existentes nas partículas combustíveis ou migram para a matriz formando bolhas[1,4,5]. Aí, exercem pressão diretamente sobre a matriz provocando visível alteração dimensional. As tensões internas criadas durante o inchamento da fase fissil ou pelas bolhas de gases de fissão na matriz podem ser reduzidas se o combustível tipo dispersão contem volumes livres para acomodar o aumento de volume da fase fissil. Os poros nas partículas fisséis constituem tais volumes livres e são uma vantagem dos elementos combustíveis tipo dispersão nos quais a porosidade interna das partículas da fase fissil podem ser criadas e controladas para acomodar algum tipo de aumento no volume devido ao inchamento.

Normalmente, estabelece-se que a densidade ótima para o  $UO_2$  a ser utilizado em combustíveis tipo dispersão com matriz de aço inoxidável deve ser entre 90 e 95 % da densidade teórica.

### ***3.3 Uniformidade da dispersão***

Uma das operações mais importantes na preparação de cerne de elementos combustíveis tipo dispersão é aquela que garante a distribuição uniforme das partículas fisséis no material da matriz. Se a distribuição das partículas não for uniforme, existirá regiões localizadas no cerne do elemento combustível em que a concentração de combustível será mais alta do que a média. Isto deve causar uma redução na estabilidade sob irradiação e na resistência mecânica do elemento combustível em condições operacionais normais. Os danos devido a radiação podem ocorrer em toda a matriz mas, em locais onde as partículas fisséis estão concentradas, a superposição de zonas danificadas criadas ao redor de cada partícula combustível pode estabelecer regiões onde as propriedades do material da matriz são fragilizadas. Em locais onde a concentração de partículas fisséis é maior, existe também uma liberação de energia mais vigorosa durante a operação do reator, a distribuição não uniforme de fluxo de calor dentro do elemento combustível deve conduzir a tensões térmicas diferenciais no material da matriz conduzindo a danos ainda maiores.

A distribuição uniforme das partículas combustíveis na matriz é o primeiro estágio da fabricação do núcleo do elemento combustível através da mistura dos constituintes na forma de pó. A mistura é feita por métodos bem conhecidos da metalurgia do pó em que vários equipamentos de mistura são utilizados. A velocidade com que dois pós podem ser misturados, assim como o grau de miscibilidade estão diretamente relacionados às características do material particulado, aos equipamentos de mistura e às condições operacionais utilizadas[7].

Quando dois ou mais sólidos são misturados e os mesmos apresentam partículas compreendidas numa determinada faixa de tamanho, as maiores tendem a permanecer em cima e as menores em baixo da mistura. A segregação ocorre também devido a diferenças

acentuadas de densidades. A experiência com misturas de pós de dióxido de urânio – aço inoxidável ou outras ligas mostra que pode ser conseguida uma distribuição mais uniforme de partículas combustíveis se a mistura é feita em grandes volumes de material bruto (dezenas de metros cúbicos), suficiente para produzir uma grande quantidade de cernes; análises estatísticas mostram que o desvio do conteúdo de urânio da concentração especificada, em vários cernes preparados a partir de uma grande mistura são da ordem de 2 a 3 % [9].

O tamanho da partícula combustível e sua forma também apresentam uma variação que deve ser minimizada. Em combustíveis tipo dispersão aceita-se partículas finas menores que 44  $\mu\text{m}$  numa proporção de 15 a 25 % devido a razões de diminuição nos custos de fabricação [3], entretanto este requisito deve ser estabelecido em função das necessidades de projeto.

### 3.4 *Enriquecimento do combustível*

O enriquecimento do combustível é necessário para se manter o reator operando de acordo com os requisitos colocados para o projeto. Para um reator de pequeno porte para propulsão nuclear naval, os requisitos de tempo de operação e potência são de 1200 dias operando com uma densidade de potência no cerne em torno de 180  $\text{w/cm}^3$ . Isto significa que deve haver uma quantidade de  $^{235}\text{U}$  no reator suficiente para satisfazer requisitos de reatividade tais como compensar o consumo de combustível nesta potência durante 1200 dias, compensar a absorção de pico de xenônio, compensar defeitos de temperatura e de potência e requisitos de controle. Reactores para a geração de eletricidade tem requisitos de eletricidade semelhantes exceto a compensação do pico de xenônio.

Existe, entretanto, um limite máximo de “burnup” para vários tipos de combustíveis. Como foi apresentado no Capítulo 2, o combustível tipo dispersão de  $\text{UO}_2$  em aço inoxidável pode ter como limite aceitável, para temperaturas na superfície da placa de combustível inferiores a 600  $^\circ\text{C}$ ; um “burnup” de 2 % de átomos fissionados sobre o total de átomos na dispersão, isto é  $B^{\text{lim}} = 2 \% \text{ at}$ .

Assim, há um limite de “burnup” de combustível, acima do qual não é seguro operar o reator, que também deve ser considerado. Isto quer dizer que um reator pode ter excesso de reatividade suficiente para continuar operando, entretanto, se algum combustível já atinge o limite de “burnup”, não é seguro continuar operando o reator. O requisito de  $^{235}\text{U}$  para o combustível de um reator nuclear pode ser escrito como

$$F^{\text{req}} = F^{\text{bur}} + F^{\text{crit}} \quad (3.5)$$

onde  $F^{\text{req}}$  é a quantidade de  $^{235}\text{U}$  necessária para o reator atender ao requisito de operar em plena potência por um determinado período,  $F^{\text{bur}}$  é quantidade de  $^{235}\text{U}$  consumida ou queima durante este período e  $F^{\text{crit}}$  é a quantidade de  $^{235}\text{U}$  necessária para manter o reator crítico em qualquer tempo compensando o pico de Xe, defeitos de temperatura e potência e requisitos de controle. Para um combustível tipo dispersão, a unidade de  $F^{\text{req}}$ ,  $F^{\text{bur}}$  e  $F^{\text{crit}}$  é

$$\left[ \frac{\text{átomos de } ^{235}\text{U}}{\text{m}^3 \text{ de cerne}} \right]$$

Em um combustível tipo dispersão a quantidade de U presente no cerne depende da fração volumétrica de combustível na dispersão e na densidade de átomos de U na fase de material combustível. Sejam  $N^{\text{OX}}$  e  $N^{\text{SS}}$  os números totais de átomos por  $\text{m}^3$  nas fases de combustível  $\text{UO}_2$  e de matriz aço inoxidável do combustível de dispersão. Então o número total de átomos por  $\text{m}^3$  de cerne (dispersão),  $N^{\text{TOT}}$  é

$$N^{\text{TOT}} = f_v N^{\text{OX}} + (1 - f_v) N^{\text{SS}} \quad (3.6)$$

O “burnup” máximo possível de se atingir no combustível de dispersão, com segurança, é dado por

$$F^{\text{max}} = N^{\text{TOT}} k^{\text{eff}} \left[ \frac{\text{fissões}}{\text{m}^3 \text{ cerne}} \right] \quad (3.7)$$

Nota-se que o “burnup” máximo permitido para o combustível depende da fração volumétrica de combustível na dispersão. Deve-se procurar uma fração volumétrica de combustível que forneça um “burnup” máximo,  $F^{\text{max}}$ , superior ao requisito de “burnup” de projeto,  $F^{\text{req}}$ . Se  $F^{\text{req}} > F^{\text{max}}$ , não é possível operar o reator pelo tempo desejado com



segurança e este deve ser diminuído. O enriquecimento mínimo do combustível necessário para tal projeto de reator deve ser

$$\varepsilon = \frac{F^{\max} + F^{\text{crit}}}{f_v N^U} \text{ para } F^{\text{req}} > F^{\max}, \quad (3.8a)$$

ou

$$\varepsilon = \frac{F^{\text{req}} + F^{\text{crit}}}{f_v N^U} \text{ para } F^{\text{req}} < F^{\max}, \quad (3.8b)$$

onde  $N^U$  é o número de átomos de U na fase de combustível ou  $\frac{N^{\text{OX}}}{3}$  para o  $\text{UO}_2$ .

### 3.5 Espessura do cerne de combustível da placa

A espessura do cerne de combustível cumpre duas funções importantes: acomodar as partículas de combustível na matriz de aço inoxidável e fornecer rigidez estrutural à placa combustível. A espessura deve ser maior que o diâmetro das partículas de combustível que, de acordo com a Figura 3.3, deve ser da ordem de 200  $\mu\text{m}$  para se conseguir uma fração volumétrica de combustível da ordem de 50 % e ainda assim estar circundadas por material da matriz. Espessuras pequenas permitem que partículas de combustível se localizem fora da região do cerne comprometendo a placa de combustível. Isto significa dizer que a espessura da placa deve ser uma ordem de magnitude maior ou da ordem de alguns milímetros, isto é, superior a 2 mm.

A espessura do cerne fornece a rigidez da placa de combustível por meio do material da matriz. A fase do óxido, segregada em partículas não tem capacidade de fornecer resistência à placa como um todo para atender às solicitações internas e externas. As solicitações internas principais são provenientes de ciclagem térmica e danos devido a irradiação como inchamento devido aos gases de fissão ou deslocamentos de átomos devido aos nêutrons rápidos. As solicitações externas são ligadas a condições de escoamento do refrigerante, que podem causar vibrações e flambagens, e ao tipo de aplicação que se vá dar ao reator. Para reatores para propulsão nuclear há a solicitação de

se atender a um choque equivalente a uma aceleração de 50 g (g – aceleração da gravidade). A placa de combustível deve ser capaz de manter suas características dimensionais no caso deste tipo de solicitação.

Perrotta[2] mostrou que combustíveis tipo placa tem a característica de suportar bem as solicitações oriundas da ciclagem térmica devido aos níveis mais baixos de temperatura atingidos no material combustível. Combustíveis na forma de vareta e pastilhas atingem temperaturas muito altas e não suportam ciclagens térmicas de forma indiscriminada[2]. O atendimento à solicitações externas deve ser demonstrada pelo projeto do conjunto placa de combustível e sua estrutura que forma o o elemento combustível.

### ***3.6 Espessura mínima do revestimento da placa***

O revestimento da placa de combustível deve impedir a fuga de produtos de fissão do combustível de dispersão. Os produtos de fissão tem alcance muito pequeno seja no  $\text{UO}_2$  (9,4  $\mu\text{m}$ ) ou no aço inoxidável (6,7  $\mu\text{m}$ ). Um produto de fissão na periferia da dispersão pode penetrar em média 6,7  $\mu\text{m}$  no revestimento de modo que a espessura deste deve ser pelo menos uma ordem de magnitude maior, ou seja 70  $\mu\text{m}$ , para garantir que nenhum produto de fissão escape.

O revestimento também contribui para a rigidez estrutural da placa de combustível e pode, assim, ter uma espessura ainda maior. O revestimento também afeta a transferência de calor do cerne para o refrigerante, aumentando a temperatura do primeiro para espessuras maiores. Desta forma, a espessura do revestimento não deve ser aumentada desnecessariamente, deixando para o cerne a responsabilidade maior de manter a rigidez estrutural.

## **REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS**

1. Samoilov, A.G., Kashtanov, A.I. and Volkov, V.S. – “ **Dispersion-Fuel Nuclear Reactor Elements**”, Israel Program for Scientific translations Ltd., 1968.
2. Perrotta, J. A., “**Proposta de Um Núcleo de Reator PWR Avançado com Característica Adequadas para o Conceito de Segurança Passiva**”, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares- SP, Tese de Doutorado, 1999.
3. A. G. Simões, “ **Desempenho sob Irradiação de Combustíveis a Dispersão de MTR**”, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares- SP, Dissertação de Mestrado, 1993.
4. Weir, J.R. “**A failure analysis for the low-temperature performance of dispersion fuel elements**”. Oak Ridge National Laboratory. 1960. (ORNL-2902).
5. Canh, R. W.; Haasen, P.;Kramer, E. J., “ **Material Science and Technology**”, Vol. 10A, Nuclear Materials, Part.1-1994.
6. Van Vlack, L. H., “**Elements of Materials Science and Engineering**”, p. 74, Addison-Wesley Publishing Company, Filipinas, 1975.
7. Fan, L. T., Chen, S. J. Watson, C. A. “**Solids Mixing. Ind. Eng. Chem.**” , 1970 ; p. 53-69.
8. A.G. Samoilov, A.I. Kashtanov, and V.S.Volkov – “**Dispersion-Fuel Nuclear Reactor Elements**”, Israel Program for Scientific translations Ltd., p.164, 1968.
9. A.G. Samoilov, A.I. Kashtanov, and V.S.Volkov – “**Dispersion-Fuel Nuclear Reactor Elements**”, Israel Program for Scientific translations Ltd., p.99, 1968.

#### **4 LIMITE DE “BURNUP” PARA COMBUSTÍVEIS TIPO DISPERSÃO DE UO<sub>2</sub> EM AÇO INOXIDÁVEL EM FUNÇÃO DA FRAÇÃO DE VOLUME DE COMBUSTÍVEL**

A Figura 2.2 reproduz resultados apresentados na literatura [1,2] sobre o comportamento do limite de “burnup” máximo permitido para combustíveis tipo placa de dispersão de UO<sub>2</sub> em aço inoxidável, obtido a partir de uma série de experimentos de irradiações com vários tamanhos de partícula e fração mássica de combustível em torno de 0,3. Estes resultados foram sistematizados por Samoïlov et all onde o limite de “burnup” é apresentado em função da temperatura da superfície da placa, evidenciando uma forte dependência deste limite com a temperatura do combustível; em temperaturas mais altas o limite de “burnup” diminui bastante.

Samoïlov et all dividiram o comportamento do combustível sob irradiação em três regiões no plano “burnup”-temperatura como mostra a Figura 2.2: uma primeira região onde não ocorre dano de irradiação, uma segunda região onde alguns experimentos indicaram algum dano e outros não, representando uma região de incerteza quanto a ocorrência de danos de irradiação e uma terceira região onde ocorre dano de irradiação com certeza. A partir desta análise, ele sugere que o limite de “burnup” para combustível tipo placa de dispersão de UO<sub>2</sub>-aço inoxidável, para que se tenha uma operação segura sem danos esperados para o combustível, é a curva que delimita a primeira e a segunda região [1,2].

Conforme foi mostrado nos Capítulos 2 e 3, o dano causado pela irradiação em combustíveis tipo dispersão fica restrito à região ao redor do partícula de combustível e a resistência da placa de combustível é dada pelo material em que se dispersa as partículas de combustível. Combustíveis com a mesma quantidade relativa de material de matriz e semelhantes condições de fabricação tem comportamento sob irradiação semelhante[1,3]. Samoïlov et all afirmam que os resultados apresentados na Figura 2.2 são conservativos para combustíveis tipo dispersão com frações mássicas de UO<sub>2</sub> menores que aquelas utilizadas no experimento (em torno de 0,3); para combustíveis com maior fração mássica

os resultados apresentados seriam não-conservativos, isto é, a região de incerteza quanto a dano de combustível avançaria sobre a região de segurança apresentada na Figura 2.2.

A Figura 4.1 reproduz a curva da Figura 2.2 que delimita as regiões 1 e 2 citadas acima, alterando a unidade do limite de “burnup” de [% de átomos fissionados em relação ao total de átomos na dispersão] para [fissões/m<sup>3</sup> cerne], levando em conta que o combustível tem fração mássica em torno de 0,3 e enriquecimento de 93 % [1,2]. Assim, a Figura 4.1 mostra o limite de “burnup” para as condições citadas acima e apresenta com clareza a magnitude dos níveis de “burnup” que o combustível pode ser submetido em função da temperatura.

Neste Capítulo desenvolvemos um modelo para se conhecer o limite de “burnup” para combustíveis tipo dispersão de UO<sub>2</sub>-aço inoxidável para frações de volume ou de massa de combustível mais elevadas. Inicialmente, é estabelecida a dependência do limite de “burnup” com a fração volumétrica de combustível e a seguir são apresentados resultados de limite de “burnup” para frações de volume mais elevadas. Na Seção 4.2 é feita uma análise sobre a potencialidade deste combustível para reatores de pequeno porte para a propulsão nuclear.

#### **4.1 Limite de “burnup” em função da fração volumétrica de combustível**

A resistência do combustível tipo dispersão a irradiação está ligada a quantidade de material de matriz existente no cerne para acomodar os efeitos causados pela irradiação, principalmente deformações como aumento de volume ou inchamento causado por produtos de fissão sólidos e gasosos. Se considerarmos que a fase matriz é a principal responsável pela sua resistência quanto a irradiação podemos supor que esta resistência seja proporcional ao número de átomos de matriz presente na dispersão. O limite de “burnup” poderia ser considerado como função direta da fração de átomos fissionados em relação ao total de átomos existentes na matriz. Combustíveis com altas frações volumétricas suportariam um nível menor de fissões porque tem um número menor de átomos na fase matriz, o que é confirmado pelas observações experimentais[1]. Assim, o “burnup” limite,  $B^{\text{lim}}$ , expresso em termos desta fração é dado por

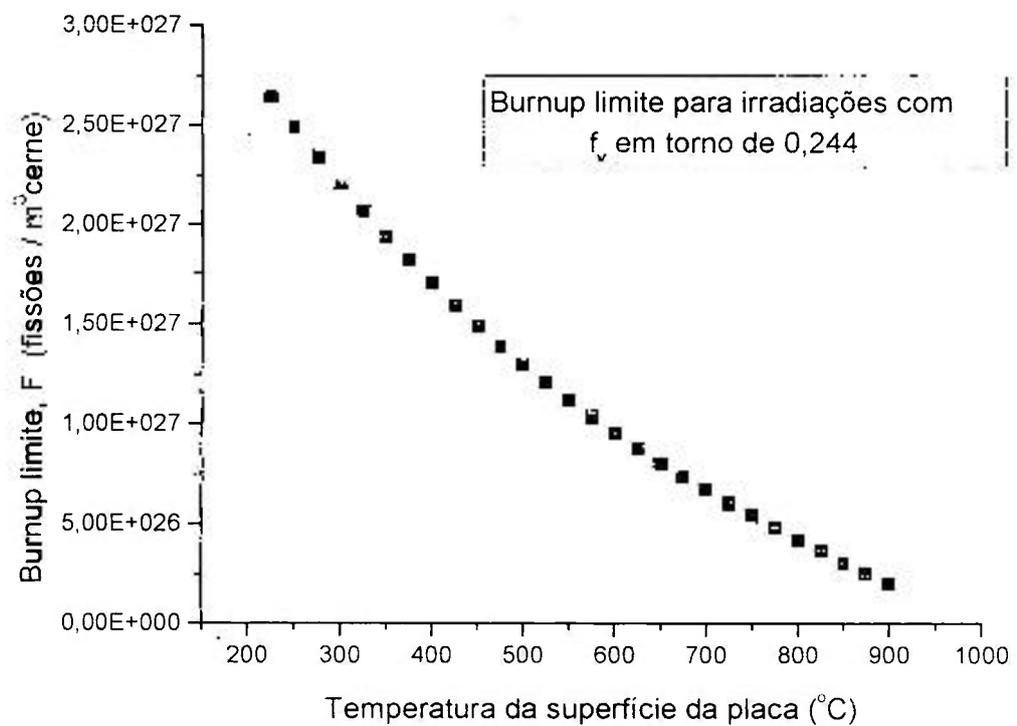


Figura 4.1 - Limite de "burnup" em função da temperatura para combustíveis tipo dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável para frações de massa de combustível em torno de 0,3. Curva extraída dos experimentos apresentados na Fig. 2.2, Ref.1.

$$B^{\text{lim}} = \frac{F}{N^M} \quad (4.1)$$

onde  $F$  é o número máximo de fissões permitido por unidade de volume do cerne

$$\left[ \frac{\frac{\text{fissões}}{m^3 \text{cerne}}}{\frac{\text{número total de átomos no cerne}}{m^3 \text{cerne}}} \right] e$$

$N^M$  é o número total de átomos na matriz por unidade de volume de cerne

$$\left[ \frac{\text{número total de átomos na matriz}}{m^3 \text{cerne}} \right]$$

$N^M$  pode ser expresso em termos da fração volumétrica do combustível na dispersão,  $f_v$ , e da densidade de átomos por  $m^3$  na matriz,  $N^{SS}$  como

$$N^M = (1 - f_v)N^{SS} \quad (4.2)$$

Substituindo a Eq. 4.2 na Eq. 4.1, esta pode ser escrita como

$$F = B^{\text{lim}}(1 - f_v)N^{SS} \quad (4.3)$$

O “burnup” limite  $B^{\text{lim}}$  na Eq. 4.1 pode ser escrito para uma dada fração volumétrica de combustível,  $f_{v0}$  e número máximo de fissões,  $F_0$ , fazendo isto e substituindo o produto  $B^{\text{lim}}N^{SS}$  obtêm-se que a dependência do número máximo permitido de fissões no combustível em relação a fração volumétrica de combustível é

$$F = f_w \frac{(1 - f_v)}{(1 - f_{v0})} \quad (4.4)$$

Uma equação semelhante poderia ser escrita para  $F$  considerando que o “burnup” limite dependeria de todos os átomos presentes na dispersão, supondo que os átomos presentes na fase fissil também contribuem para a resistência da matriz quanto a irradiação. Neste caso, o “burnup” limite seria dado por

$$B^{\text{lim}} = \frac{F}{N^{\text{TOT}}} \quad (4.5)$$

onde  $N^{\text{TOT}}$  é o número total de átomos presentes no cerne por unidade de volume de cerne,  $N^{\text{TOT}} = f_v N^{\text{OX}} + (1 - f_v) N^{\text{SS}}$ . Fazendo um procedimento semelhante, chega-se que o comportamento de  $F$  em relação a  $f_v$ , neste caso seria

$$F = F_o \frac{f_v \frac{N^{\text{OX}}}{N^{\text{SS}}} + (1 - f_v)}{f_{v_o} \frac{N^{\text{OX}}}{N^{\text{SS}}} + (1 - f_{v_o})} \quad (4.6)$$

A partir do desenvolvimento realizado para a obtenção das Eqs. 4.4 e 4.6 pode-se dizer que a primeira é mais conservativa porque considera apenas a contribuição da matriz na resistência aos danos da irradiação enquanto a segunda equação considera também os átomos da fase de combustível. A Figura 4.2 apresenta o comportamento de  $F$  segundo as duas equações considerando  $f_{v_o} = 0,244$  para um combustível de  $\text{UO}_2$  disperso em aço inoxidável. As densidades de átomos nas fases de combustível e matriz foram obtidas a partir dos dados de densidade apresentados na Tabela 4.1. A Eq. 4.4 fornece uma queda drástica do número de fissões máxima permitível a medida que a fração volumétrica do combustível aumenta enquanto a Eq. 4.6 apresenta um valor quase constante. Para uma fração volumétrica de combustível de 50 % na dispersão, o “burnup” máximo permitido cairia segundo o modelo da Eq. 4.4, cerca de 30 % em relação a uma fração volumétrica de 0,244, que corresponde à fração mássica de 0,3 (igual à da maioria dos combustíveis irradiados que compuseram a curva limite da Figura 4.1).

A fração volumétrica de combustível máxima possível de se conseguir, mantendo-se a fase da matriz contínua, é em torno de 0,7 conforme se mostrou no Capítulo 3. O comportamento do limite de “burnup” do combustível para frações volumétricas, próximas a 0,7 e maiores que 0,7 não deve seguir as características verificadas nos experimentos que compuseram a Figura 4.1, pois o contato de regiões danificadas da matriz certamente o fragilizaria de maneira irremediável. Para valores menores que 0,7, o comportamento do “burnup” limite deve seguir o comportamento apresentado pelo modelo da Eq. 4.1, considerando métodos de fabricação semelhantes.



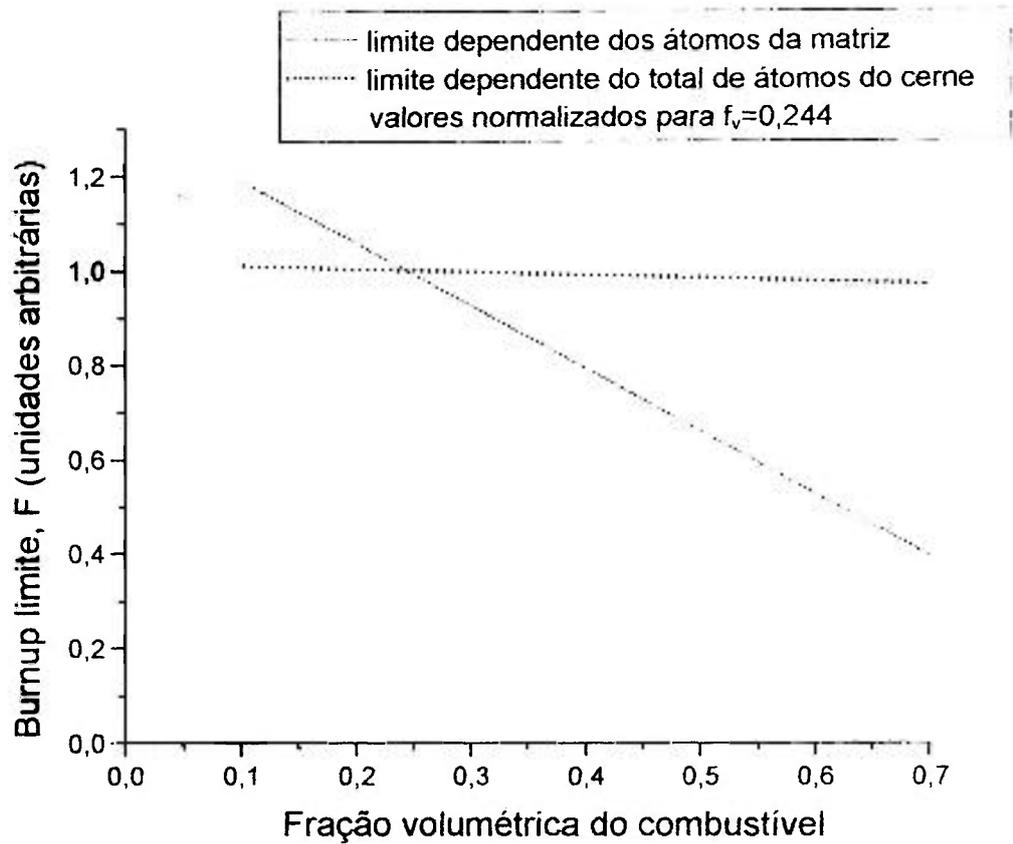
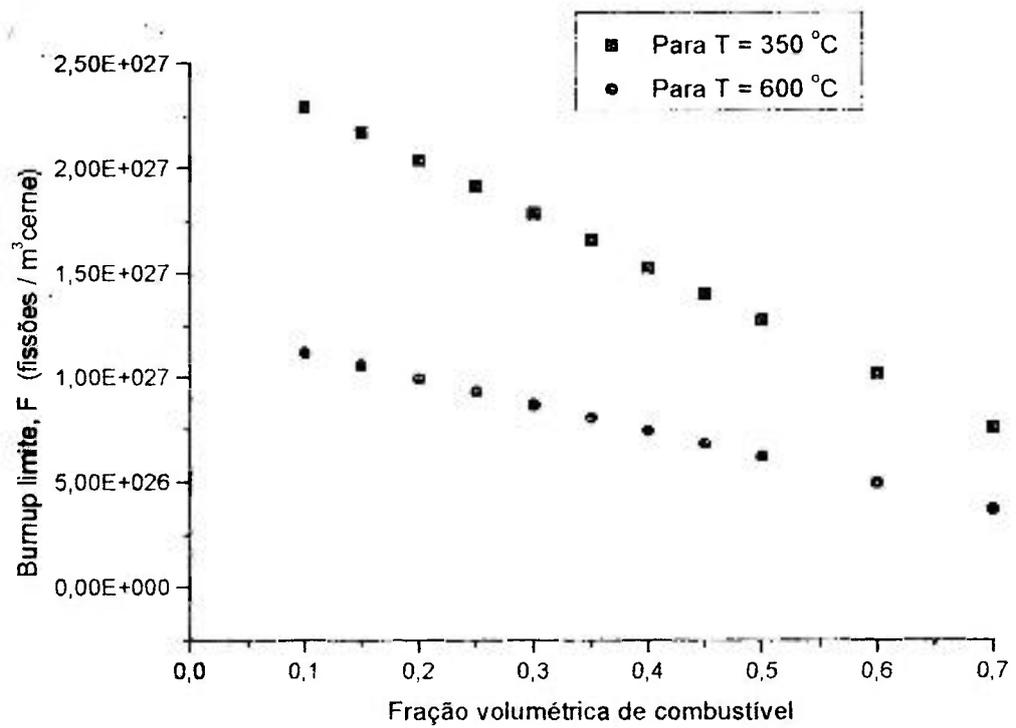


Figura 4.2 - Comportamento do "burnup" limite em função da fração volumétrica do combustível de acordo com os modelos de dependência sobre o total de átomos da matriz e do cerne.

A Figura 4.3 apresenta o comportamento esperado para o limite de “burnup” em função da fração volumétrica de acordo com o modelo da Eq. 4.4 para as temperaturas da superfície da placa de combustível de 350 °C e 600 °C. Estas temperaturas podem ser consideradas as temperaturas da superfície da placa de combustível para as condições de operação normal e de acidente. As retas apresentadas na Figura 4.3 são tomadas como o “burnup” máximo permissível do combustível, nas temperaturas de superfície de placa indicadas. Valores acima das retas indicariam alguma probabilidade de falha do combustível.

**Tabela 4.1 – Parâmetros que caracterizam o núcleo de um reator de pequeno porte para a propulsão nuclear**

PARÂMETRO	VALOR
Densidade de potência nominal média no cerne, $p_{\text{cerne}}$	180 MW/m <sup>3</sup>
Fator de pico total, $F_q$	3
Temperatura da superfície da placa de combustível em operação normal	< 350 °C
Excesso de reatividade mínimo durante a operação, $\Delta\rho$	4500 pcm
Reatividade diferencial média do átomo de <sup>235</sup> U, $\kappa$	$2,567 \times 10^{-24} \frac{\text{pcm}}{\text{atomo } ^{235}\text{U} \cdot \text{m}^3 \text{cerne}}$
Densidade média do aço inoxidável da matriz do cerne	$7,86 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$
Densidade média da partícula de UO <sub>2</sub>	$10,96 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$



**FIGURA 4.3** – “burnup” limite em função da fração volumétrica de combustível para as temperaturas de superfície da placa de 350 °C e 600 °C.

## 4.2 Potencialidade dos combustíveis tipo placa de UO<sub>2</sub>-aço inoxidável

Uma vez que se estabeleceu o limite de “burnup” em função da fração volumétrica de combustível no cerne pode-se verificar a potencialidade deste combustível em núcleos de reatores de pequeno porte para a propulsão nuclear. Para se fazer esta análise considera-se os parâmetros neutrônicos típicos destes reatores apresentados na Tabela 4.1 [3,4]. Os parâmetros são bastante conhecidos cabendo esclarecer que a reatividade diferencial média do átomo de <sup>235</sup>U foi extraída de cálculos neutrônicos[4] deste tipo de reator e significa a sua contribuição para manter a reação em cadeia neste tipo de reator.

A primeira informação importante que se pode extrair das curvas de “burnup” limite é o tempo de operação em plena potência que se consegue atingir nos reatores de pequeno porte com as características indicadas na Tabela 4.1. Considerando o reator operando em condições normais, isto é, com temperatura na superfície do revestimento da placa de combustível inferior a 350 °C, o número de dias de operação em plena potência (“equivalent full power days”), EFPD, é dado por

$$EFPD = \frac{\gamma}{p_{\text{cerne}} F_q} \frac{F_o(350)(1 - f_v)}{(1 - f_{vo})} \quad (4.7)$$

onde o subscrito “o” significa a fração volumétrica do combustível de 0,244,  $\gamma$  é a energia liberada por fissão,  $3,7 \times 10^{-22}$  MWD/fissão,  $p_{\text{cerne}}$  é a densidade de potência nominal média do reator por unidade de volume de cerne de combustível e  $F_q$  é o fator de pico.

A Figura 4.4 apresenta o tempo de operação máximo que se pode conseguir em função da fração volumétrica de combustível. Para frações volumétricas de combustível inferiores a 25 % pode-se chegar a EFPD acima de 1250 dias e para frações volumétricas em torno de 50 % pode-se chegar a EFPD em torno de 870 dias.

Deve ser salientado que estes valores indicam o número máximo de dias de operação possível com baixa probabilidade de ocorrer dano no combustível e que, para viabilizar tais EFPD, o núcleo deve ter reatividade suficiente que deve ser conseguida por meio do enriquecimento do combustível. O enriquecimento é determinado de forma a fornecer um inventário de material fissil para atender dois requisitos: gerar a potência necessária ao

longo do tempo desejado e manter a reação em cadeia no reator de forma controlável. A primeira parcela é dada pelo limite de “burnup”,  $F$ , e a segunda parcela é dada por  $\frac{\Delta\rho}{\kappa}$ , reatividade diferencial média do átomo de  $^{235}\text{U}$  no reator (ver Tabela 4.1). O enriquecimento em percentagem de átomos,  $\varepsilon$ , é, então, dado por

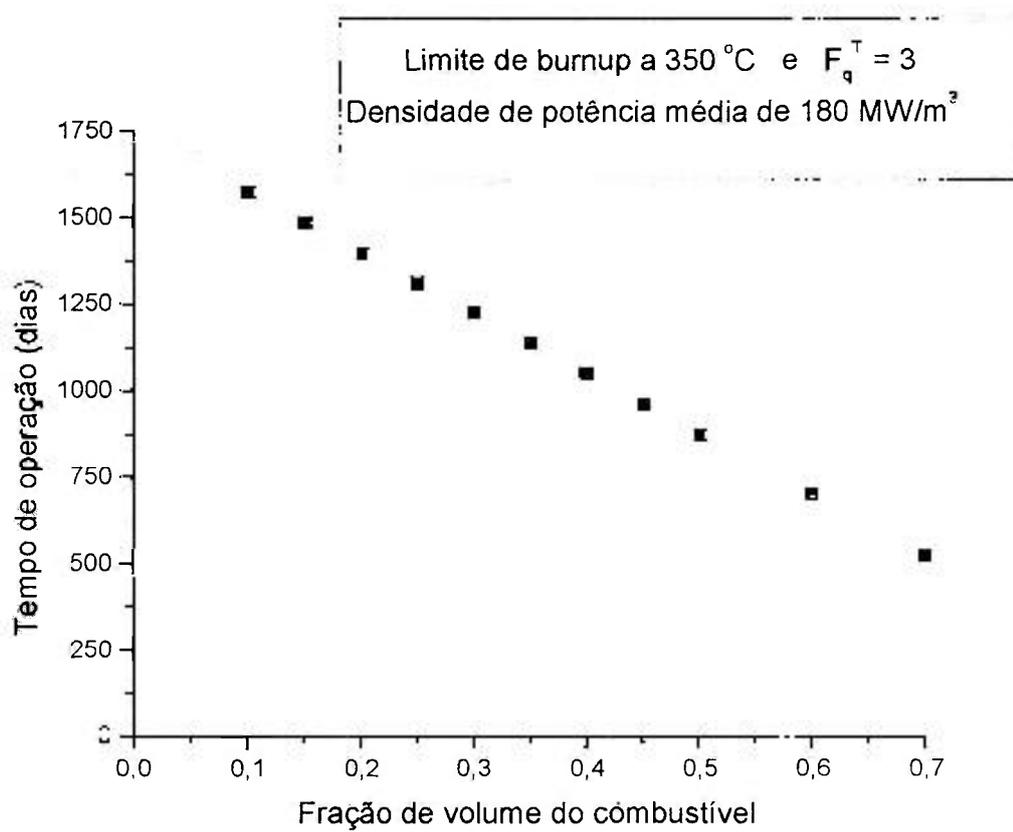
$$\varepsilon = \frac{F + \frac{\Delta\rho}{\kappa}}{f_v \cdot \frac{N^{\text{OX}}}{3}} 100 \quad (4.8)$$

onde  $N^{\text{OX}}$  é o número de átomos por  $\text{m}^3$  na fase de óxido ou combustível dos quais  $1/3$  é U.

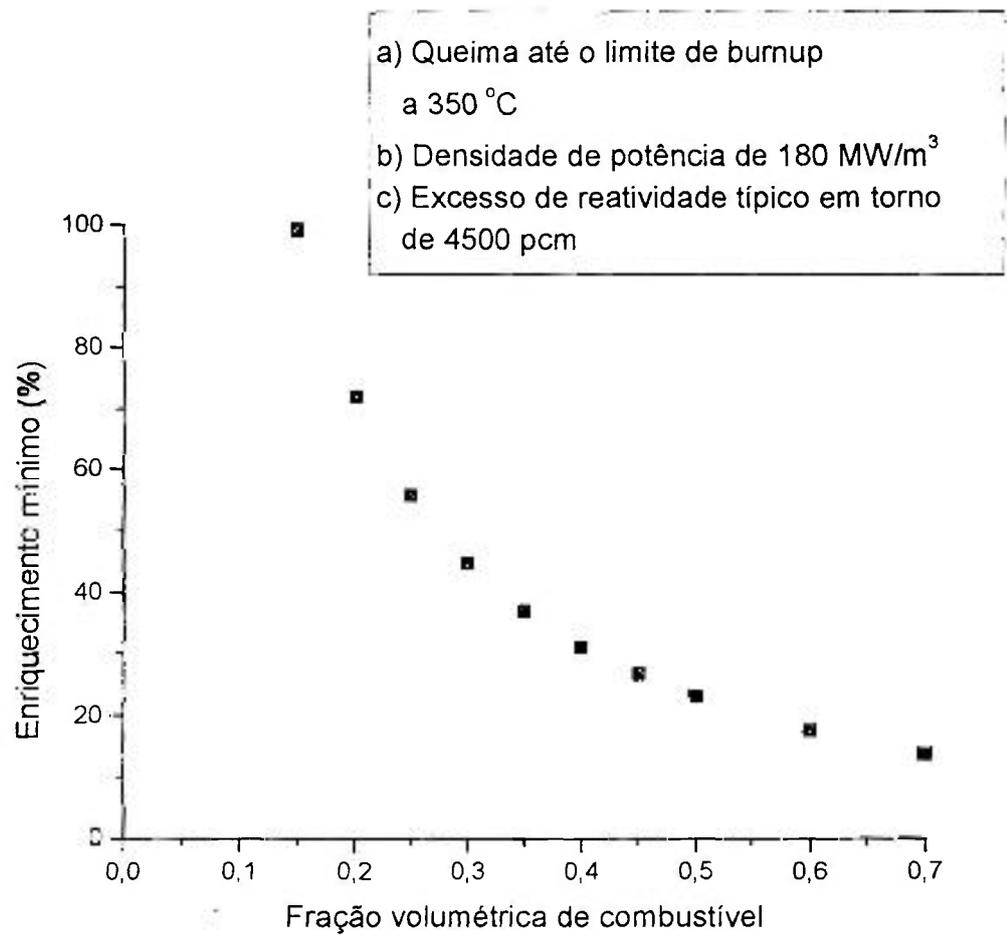
O parâmetro  $k$  é dependente do reator e tem uma influência grande no resultado, pois uma variação de 1% no seu valor pode alterar o enriquecimento mínimo necessário em até 0,5%. Assim os resultados que se obtêm com a Eq.4.8 são valores indicativos para as necessidades de enriquecimento; para resultados mais precisos é necessário se fazer cálculos neutrônicos detalhados.

A Figura 4.5 apresenta o enriquecimento mínimo do combustível necessário para se operar o reator até o limite de “burnup” seguro em função da fração volumétrica de combustível. Para uma fração volumétrica de combustível em torno de 20 % é necessário um enriquecimento superior a 80 % para se utilizar toda a capacidade do combustível e se atingir tempos de operação em plena potência acima de 1250 dias. Para frações volumétricas em torno de 50 %, um enriquecimento em torno de 30 % seria suficiente para se utilizar toda a capacidade do combustível e se atingir tempos de operação em torno de 870 dias em plena potência.

A Figura 4.6 apresenta o enriquecimento necessário para se atingir diversos tempos de operação em plena potência. A figura mostra que este tipo de reator atingiria quase 1500 dias de operação em plena potência se o combustível fôsse enriquecido a 100 %. Para 1250 dias de operação em plena potência, o enriquecimento mínimo necessário é em torno de 45 % e a fração volumétrica do combustível não pode exceder 35 % pois haveria chances de ocorrer dano no combustível.



**Figura 4.4 – Tempo de operação em plena potência possível de se atingir em função da fração de volume de combustível para queimas até o “burnup” limite.**



**Figura 4.5 – Enriquecimento mínimo do combustível necessário para se operar o reator até o limite de “burnup” seguro em função da fração volumétrica de combustível.**

A Tabela 4.2 resume os resultados sobre a potencialidade do combustível de  $\text{UO}_2$  disperso em aço inoxidável para um reator de pequeno porte típico de propulsão nuclear, mostrando para várias frações de volume de combustível, o burnup máximo que se pode atingir com segurança, o número de dias de operação que se pode atingir em plena potência e o enriquecimento necessário para o combustível. A análise foi realizada considerando o reator operando em condições normais; considerando fatores de segurança para condições de acidentes os limites “burnup” diminuem de acordo com a Figura 4.3. A fração volumétrica máxima de combustível na dispersão sem que se espere dano no combustível é em torno de 0,6, pois valores maiores do que esse se aproximaria muito do máximo fator de empacotamento da partícula na matriz que é de 0,74; o “burnup” máximo permissível é de  $2 \times 10^{27}$  fissões / $\text{m}^3$  cerne que ocorre com fração volumétrica em torno de 20 %. O tempo máximo de operação em plena potência é em torno de 1400 dias com fração volumétrica de combustível de 0,2, enriquecido acima de 71 % demonstrando que o aço inoxidável tem uma grande absorção parasita de nêutrons. Tempos de operação de 1000 dias em plena potência podem ser conseguido com combustível com enriquecimento em torno de 30 % e fração volumétrica de 0,4 e com enriquecimento máximo de 20 % pode-se atingir no máximo 700 dias de operação em plena potência mas com um combustível com uma altíssima fração volumétrica, 0,6.

A Tabela 4.2 indica o máximo enriquecimento que deve ser colocado no reator acima do qual haveria excesso de reatividade desnecessário pois o combustível teria atingido o limite de “burnup”. Naturalmente, este limite pode variar de acordo com a reatividade diferencial do átomo de  $^{235}\text{U}$  que se consiga em um projeto de núcleo. Os resultados apresentados aqui são estimativas que apreciam muito desta reatividade diferencial. Para estimativas de maior precisão é necessário realizar cálculos neutrônicos detalhados, entretanto estes resultados mostram a potencialidade e os limites do combustível de  $\text{UO}_2$  disperso em aço inoxidável.



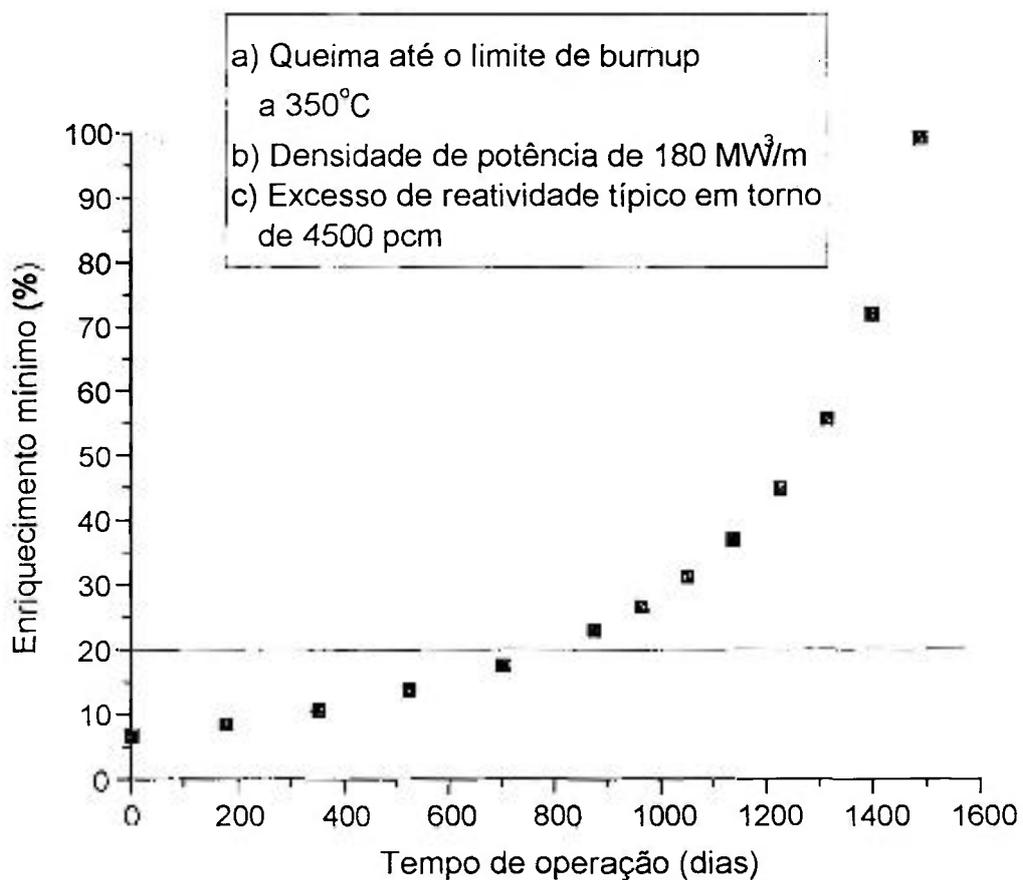


Figura 4.6 – Enriquecimento necessário para se atingir tempos de operação em plena potência.

Tabela 4.2 – *Resumo dos resultados sobre a potencialidade do combustível de UO<sub>2</sub> disperso em aço inoxidável.*

Fração Volumétrica	“burnup” Limite, F (x10 <sup>27</sup> fissões/m <sup>3</sup> cerne)	EFPD (dias)	Enriquecimento (%)
0,2	2,04	1400	77
0,25	1,92	1310	60
0,4	1,53	1050	34
0,5	1,28	870	25
0,6	1,02	700	19

### **REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS**

- 1 A. G. Samoilov, A. F. Kashtanov, V. S. Volkov, English translation: A. Aladjem, **“Dispersion fuel nuclear reactor elements”**, Jerusalem, Israel, Program for Scientific Translation, Cap. 5 e Cap.6, 1968.
- 2 R. W. Cahn, P. Haasen, E.J. Kramer, Editors, **“Materials Science and Technology,, A comprehensive treatment”**, Volume 10A, Cap.2, pag. 78, 1997.
- 3 Perrotta, J. A, **“Proposta de Um Núcleo de Reator PWR Avançado com Característica Adequadas para o Conceito de Segurança Passiva”**, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Tese de Doutorado, São Paulo, SP, p. 101-102, 1999.
- 4 Moreira, J. M. L. e Kosaka, N., **“Viabilidade neutrônica dos combustíveis tipo placa nas formas de caramelo (plaquetas de  $UO_2$  revestido por zircaloy) e de dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável para reatores de pequeno porte, Workshop sobre combustíveis tipo placa para propulsão naval”**, Comunicação Interna, Fevereiro 2000.

## **5 ESPECIFICAÇÃO DE UM COMBUSTÍVEL TIPO PLACA DE DISPERSÃO DE $UO_2$ EM AÇO INOXIDÁVEL**

A especificação de um combustível tipo placa de dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável envolve os parâmetros apresentados na Tabela 3.1 que podem ser agrupados em 5 grupos para fins de especificação: tamanho da partícula do combustível e fração volumétrica do combustível na dispersão; porosidade da partícula de combustível; espessuras do cerne de combustível, do revestimento e da placa; enriquecimento do combustível; uniformidade da dispersão e temperaturas de fabricação e operação. Há uma ligação entre os parâmetros pois para se manter a integridade da placa de combustível, cuja responsabilidade maior recai sobre a fase matriz ou aço inoxidável, é necessário garantir sua resistência ao longo da irradiação.

Conforme foi apresentado no Capítulo 3, os grandes esforços que o combustível tipo placa estará submetido são a pressão que os gases de fissão que escapam da partícula de combustível e se acumulam na matriz fazem sobre ela, causando bolhas e inchamentos na placa; o aumento de volume das partículas de combustível durante a irradiação pressionando a matriz; e esforços externos provenientes do uso que será dado no reator. A resistência da placa de combustível depende, assim, da espessura do cerne do combustível, da distância média entre as partículas de combustível, que deve ser maior que a região da matriz danificada pelos fragmentos de fissão, o tamanho da partícula de combustível e da fração volumétrica do combustível.

A determinação desses parâmetros envolve uma análise integrada de resistência mecânica da placa, de produção de gases de fissão, de inchamentos da partícula [1,4] que não será feita neste trabalho. Para a determinação desses parâmetros será adotado um procedimento que se baseia fortemente na experiência de irradiação dos combustíveis tipo placa apresentada na literatura, buscando se especificar uma placa de combustível com características semelhantes a daquelas que atendem aos limites de “burnup” apresentados no Capítulo 4 [5,6].

A Tabela 5.1 apresenta os requisitos que norteiam esta especificação. O primeiro requisito busca levar a uma especificação de combustível que tenha características já comprovadas com a experiência operacional que se encontra na literatura. Esta experiência encontra-se apresentada na Figura 2.2 e busca-se, então, especificar um combustível que mantenha as características técnicas daqueles apresentados naquela figura.

O segundo requisito está ligado a restrições de salva-guarda sobre materiais nucleares que coloca várias dificuldades quando se trata de enriquecimentos mais elevados. Como o enriquecimento não é limite técnico, serão abordados, também, as possibilidades de um enriquecimento mais elevado.

O terceiro requisito, sobre tempo de operação em plena potência para reatores visando a propulsão nuclear, deve ser acima de 10 anos com um fator de utilização de 25 %. Isto significa que ao longo de 10 anos a potência média do reator será 25% da potência nominal. Um combustível com este limite de enriquecimento exigiria, conforme mostra a Tabela 4.2, uma fração volumétrica de combustível na dispersão muito elevada e não existe experiência operacional com combustíveis com estas características. Assim, o requisito de tempo de operação em plena potência foi colocado em um valor baixo, de 1 ano, mas deve ficar claro que o desejável é um tempo mais longo.

Uma solicitação mecânica externa que se considera, quando o objetivo é a propulsão nuclear, é que o combustível resista a acelerações elevadas de até 50 g (aceleração da gravidade). Atende-se a tal requisito aumentando-se a espessura da de acordo com a necessidade. Outro requisito que se impõe na direção contrária é o limite na espessura da placa de combustível para manter baixas as temperaturas no combustível. Estes requisitos não são abordados neste trabalho.

**Tabela 5.1 - Requisitos do reator de pequeno porte para propulsão nuclear.**

PARÂMETRO	VALOR
Combustível com experiência operacional	características semelhantes aos que compuseram a Figura 2.2
Enriquecimento máximo	20 %
Tempo de operação em plena potência	> 365 dias

### **5.1 Tamanho da partícula e fração volumétrica de combustível no cerne**

A Figura 2.2 apresenta o limite de “burnup” obtido a partir de vários testes de irradiação de combustíveis tipo dispersão de  $UO_2$  em matriz de aço inoxidável [5,6]. Esta figura foi construída a partir de uma série de experimentos de irradiação com diferentes frações de massa de combustível e diâmetros de partícula de combustível. Utilizaremos essas informações para determinar valores médios do diâmetro da partícula e da fração de massa de combustível que sabemos que atendem os limites de “burnup” da Figura 2.2 e discutidos no Capítulo 4. Este procedimento está de acordo com o primeiro requisito apresentado na Tabela 5.1.

Inicialmente levantamos na Ref.6 a distribuição de frequência de diâmetro de partícula e de fração mássica de combustível utilizadas no experimentos de irradiação. A Tabela 5.2 apresenta esta distribuição onde a coluna “identificação” segue a mesma identificação da Ref.6.

Os experimentos “2” tinham partículas que apresentavam diâmetros variando entre 75 e 150  $\mu m$ , fração mássica de 0,25 e totalizaram 7 experimentos de irradiação. Não há informações na Ref. 6 sobre a distribuição de diâmetros das partículas no combustível mas apenas o intervalo em que se encontravam. Assim, consideramos que a distribuição dos

diâmetros das partículas nos vários combustíveis era a de uma distribuição normal com a faixa indicada representando um intervalo de  $\pm 3\sigma$ .

Ainda na identificação “2” a Ref.6 apresenta 13 experimentos com partículas no mesmo intervalo de diâmetro mas com fração mássica de 0,30. Adotou-se o mesmo procedimento atribuindo uma distribuição normal com a faixa indicada representando um intervalo de  $\pm 3\sigma$ .

Na identificação “7” temos um intervalo de diâmetro entre 44 e 74  $\mu\text{m}$ , correspondendo a  $\pm 3\sigma$ , fração mássica de 0,30 e um número total de experimentos igual a 3.

Na identificação “4” encontramos 3 experimentos com partículas com diâmetros maiores que 105  $\mu\text{m}$ , não havendo informações sobre o limite superior para eles, e fração mássica de 0,3. Adotamos o valor superior para os diâmetros das partículas de combustível nestes experimentos como 200  $\mu\text{m}$  baseando-se no fato de que em outras partes da mesma Ref.6 não há menção de fabricação de combustíveis com partículas maiores que este valor. Assim, consideramos as mesmas hipóteses feitas para os outros experimentos.

Em outros experimentos com identificação “4” e nos de identificação “3” e “5” encontramos um total de 12 experimentos com partículas com diâmetros maiores que 44  $\mu\text{m}$  e fração mássica de 0,30. Neste caso, novamente não há informações sobre o limite superior da distribuição de diâmetros das partículas de combustível[6]. Entretanto, por se tratar de partículas pequenas próximas do limite inferior do intervalo considerado adequado para este tipo de combustível, adotamos o limite superior do intervalo como sendo de 100  $\mu\text{m}$ , que a distribuição de diâmetros segue uma distribuição normal e que o intervalo represente  $\pm 3\sigma$ .

A partir das média e desvios padrões da Tabela 5.2 pudemos obter a distribuição de diâmetros para os vários experimentos, conforme mostrado na Figura 5.1, e também os resultados médios de vários parâmetros que caracterizam um combustível tipo dispersão com bom desempenho sob irradiação. A Tabela 5.3 apresenta os resultados obtidos de

diâmetro médio das partículas de combustível, a fração mássica de combustível média da dispersão, a fração volumétrica de combustível média, calculada através da Eq. 3.3 e a distância média entre as partículas, calculada através da Eq. 3.2. Os dados de materiais foram obtidos da Tabela 4.1.

Combustíveis tipo dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável com os parâmetros mostrados na Tabela 5.3 tem bom desempenho sob irradiação. A distância média entre as partículas de  $46\ \mu\text{m}$  garante uma boa resistência a placa para suportar os esforços devido a inchamentos e gases de fissão. Esta distância também é muito maior que a região danificada da matriz ao redor das partículas que tem uma espessura de  $13,4\ \mu\text{m}$ , conforme mostrado no Capítulo 3, permitindo que haja uma grande massa contínua de matriz no cerne para lhe conferir resistência. Podemos, assim, considerar que a distância entre as partículas de combustível de  $46\ \mu\text{m}$  é tal que garante o bom comportamento do combustível sob irradiação.

No Capítulo 3 foi apresentada a Figura 3.3 que mostra a fração de volume do combustível em função do diâmetro da partícula para uma distância entre elas de  $13,4\ \mu\text{m}$ , isto é, uma distância que permite que as zonas danificadas de partículas vizinhas se toquem. Com auxílio da Eq. 3.2 pode-se obter uma figura semelhante tendo como distância entre as partículas  $46\ \mu\text{m}$  de forma que se obtenha valores de fração volume de combustível e diâmetro da partícula que produzam um combustível tipo dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável com bom comportamento sob irradiação. A Figura 5.2 apresenta a fração volumétrica do combustível em função do diâmetro das partículas de combustível, mantendo-se a distância entre partículas em  $46\ \mu\text{m}$  e utilizando a Eq. 3.2.

Observando a Figura 5.2 temos que para uma fração volumétrica de combustível de 0,6 o diâmetro da partícula deve ser da ordem de  $620\ \mu\text{m}$ ; de 0,5 o diâmetro deve ser da ordem de  $330\ \mu\text{m}$ ; de 0,4, o diâmetro deve ser da ordem de  $200\ \mu\text{m}$ ; de 0,3, o diâmetro deve ser da ordem de  $125\ \mu\text{m}$ ; e de 0,25, o diâmetro deve ser da ordem de  $100\ \mu\text{m}$ . Para a faixa de fração volumétrica acima de 0,4 as partículas devem ser grandes e possuir diâmetros superior a  $200\ \mu\text{m}$ . Deve-se notar que a medida que a partícula de combustível tem o seu diâmetro aumentado a distância de  $46\ \mu\text{m}$  tem menor capacidade de conferir a



resistência necessária à placa. A espessura da placa deverá aumentar para compensar este problema.

## 5.2 Porosidade da partícula combustível

Como foi exposto no Capítulo 3, há efeitos positivos e negativos ao se ter uma densidade elevada de  $UO_2$  nas partículas de um combustível tipo dispersão. Estabelece-se que a densidade para o  $UO_2$  a ser utilizado em combustíveis tipo dispersão com matriz de aço inoxidável deve ser entre 90 e 95 % da densidade teórica.

**Tabela 5.2 – Distribuição de frequência dos experimentos de irradiação reportados na Ref.6.**

Identificação	Fração mássica	Diâmetro médio ( $\mu\text{m}$ )	Desvio padrão $\sigma$ ( $\mu\text{m}$ )	Frequencia total
2 (75-150 $\mu\text{m}$ )	0,25	112,5	12,5	7
2 (75-150 $\mu\text{m}$ )	0,3	112,5	12,5	13
7 (44-74 $\mu\text{m}$ )	0,3	59	5	3
4 (>105 $\mu\text{m}$ )	0,3	152,5	15,8	3
3,4,5 (>44 $\mu\text{m}$ )	0,3	72	9,3	12

\* Identificação segundo a Ref.6.

**Tabela 5.3 – Parâmetros médios obtidos dos experimentos de irradiação apresentados na Ref.6, que apresentam bom comportamento sob irradiação.**

Parâmetros	Valor
Diâmetro médio da partícula de combustível ( $\mu\text{m}$ )	99
Fração mássica média do combustível na dispersão	0,29
Fração volumétrica média do combustível na dispersão	0,236
Distancia média entre partículas de combustível ( $\mu\text{m}$ )	46

### **5.3 Espessuras do cerne, do revestimento e da placa**

Conforme foi colocado no Capítulo 3, a espessura do cerne deve acomodar pelo menos dez partículas de combustível para conferir à placa resistência mecânica, quantidade suficiente e boa distribuição de combustível no núcleo do reator. Como cada partícula tem a sua volta uma quantidade de matriz de espessura de  $46 \mu\text{m}$ , de acordo com a seção 5.1, a espessura mínima do cerne deve ser  $t_{\text{cerne}} = 10(D + 46) \mu\text{m}$ , onde D é o diâmetro da partícula.

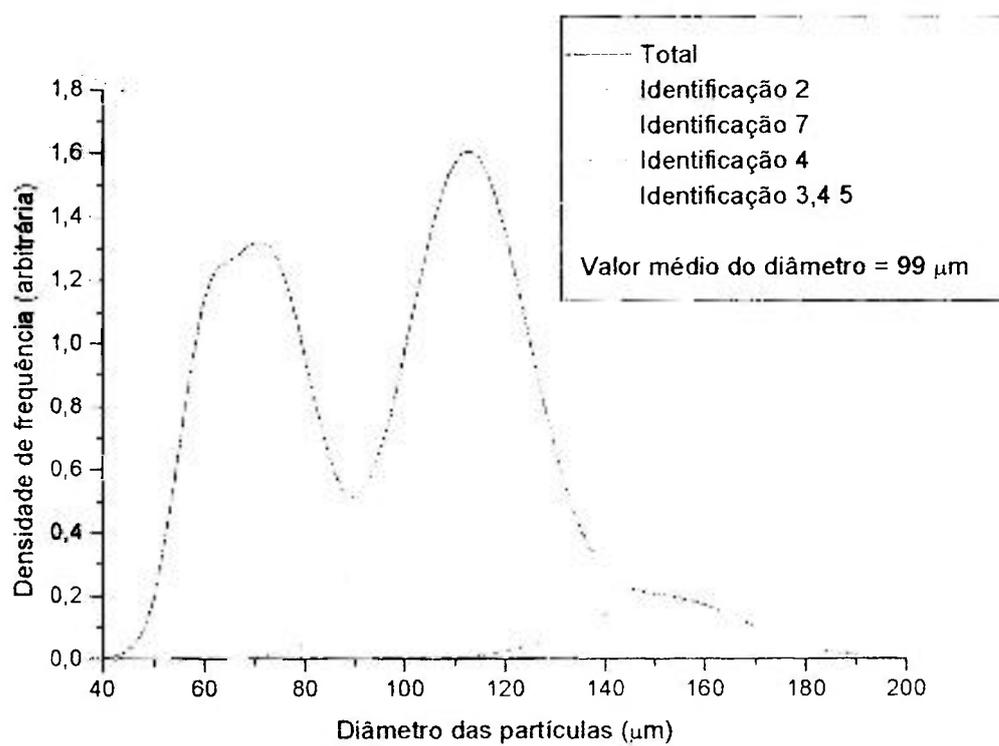
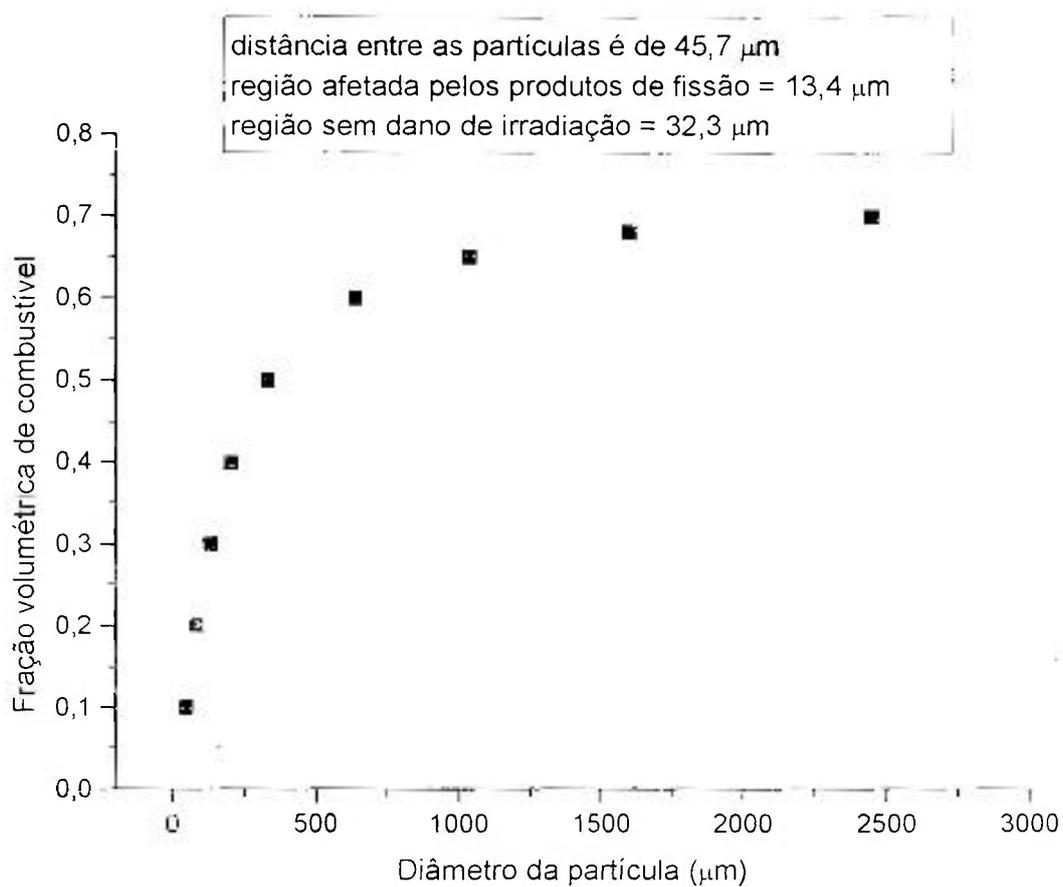


Figura 5.1- *Distribuição de diâmetros das partículas para vários experimentos reportados por Samoilov*



**Figura 5.2** – *Fração volumétrica máxima de combustível em função do diâmetro da partícula mantendo-se uma distancia segura entre as partículas de 46  $\mu\text{m}$ .*

A espessura do revestimento deve ser capaz de reter os produtos de fissão que escapam da partícula de combustível. No Capítulo 3 estabelecemos que uma espessura de 70  $\mu\text{m}$  tem condições de reter os produtos de fissão que tem no aço inoxidável um alcance médio de 6,7  $\mu\text{m}$ . No caso particular de haver uma partícula de combustível localizada justamente na interface entre o cerne e o revestimento, a espessura do revestimento fará as vezes do cerne para conter as expansões volumétricas e pressão dos gases de fissão produzidos por esta partícula. Assim, a espessura do revestimento deve ser superior a 46  $\mu\text{m}$  e a 70  $\mu\text{m}$ , sendo normalmente da ordem de 150  $\mu\text{m}$ .

A espessura final da placa de combustível é dada pela soma das espessuras do cerne e duas vezes a espessura do revestimento. Ocorre que, dependendo do diâmetro da partícula que seja necessário para o projeto do combustível, esta espessura não atenda aos requisitos de choque que venham ser colocados. Neste caso a placa de combustível deve ter sua espessura aumentada, seja pelo aumento da espessura do cerne ou do revestimento, até que se tenha a resistência mecânica desejada. A especificação da espessura da placa está condicionada ao atendimento dos requisitos mecânicos impostos pelo projeto.

A Tabela 5.4 apresenta as espessuras mínimas necessárias para o cerne, revestimento e placa para combustíveis tipo dispersão de aço inoxidável para frações volumétricas elevadas. Combustíveis com fração volumétrica de combustível menor que 0,3 podem ter bom comportamento sob irradiação com espessuras de placa inferiores a 2 mm. Para uma fração volumétrica de 0,5 a espessura mínima deve ser de 4 mm. Frações volumétricas em torno de 0,6 exigem partículas de grande diâmetro e espessuras da ordem de 7 mm. Tais espessuras de placa de combustível são muito elevadas pois o combustível atinge altas temperaturas durante a operação do reator.

#### **5.4 *Enriquecimento***

O requisito de  $^{235}\text{U}$  para o combustível de um reator nuclear deve atender às necessidades de tempo de operação em plena potência e de manter a criticidade e controlabilidade do reator. A Eq. 4.8 apresenta o enriquecimento necessário em função da fração volumétrica e do nível de “burnup” desejado,  $F$ , do combustível. O tempo de

operação em plena potência que se pode atingir pode ser estimado pela Eq. 4.7 com os vários parâmetros definidos no Capítulo 4. A Figura 5.3 mostra o enriquecimento necessário em função do tempo de operação em plena potência que se deseja atingir para várias frações volumétricas de combustível. As curvas são apresentadas para as várias frações volumétricas de combustível. A curva marrom apresenta o limite de “burnup” permissível, sem que haja dano no combustível, para as várias frações volumétricas de combustível. O ponto de interseção da curva marrom com as retas indica o tempo máximo de operação em plena potência, para um dado enriquecimento e fração volumétrica de combustível. Nota-se que para se conseguir operar por 1200 dias em plena potência é necessário enriquecimento acima de 40 % em combustível com fração volumétrica de combustível menor que 0,30. Para frações volumétricas mais elevadas atinge-se o limite “burnup” máximo em tempos menores de operação.

A Tabela 5.5 mostra o tempo de operação máximo em plena potência que se consegue e o respectivo enriquecimento necessário para combustíveis com diferentes frações volumétricas do combustível. Vê-se que com um enriquecimento em torno de 20 % pode-se atingir uma EFPD de 750 dias com uma fração volumétrica de 0,55. Para frações volumétricas mais elevadas o combustível tem um limite de “burnup” menor que é atingido com menos dias de operação em plena potência. Deve-se salientar que estes tempos de operação apresentados na Tabela 5.5 são aproximados pois dependem da reatividade diferencial do átomo de  $^{235}\text{U}$  que varia de núcleo para núcleo, entretanto, dão uma idéia clara da potencialidade destas várias opções.

A Figura 5.4 apresenta as mesmas informações para frações volumétricas entre 0,4 e 0,6 e enriquecimento em torno de 20%; neste enriquecimento a fração volumétrica em torno de 0,4 leva a um tempo de operação maior (em torno de 250 dias) sem comprometer o combustível; a fração volumétrica de combustível de 0,43 leva a um tempo de operação de 350 dias e a fração volumétrica do combustível de 0,55 leva a um tempo de operação em torno de 750 dias. Assim, vê-se que o aumento da fração volumétrica de combustível influi fortemente no tempo de operação em plena potência. Elevar de 0,43 para 0,55 permite que o tempo de operação em plena potência seja o dobro.

**Tabela 5.4 – Espessuras mínimas do cerne, revestimento e placa de combustível em função da fração de volume de combustível, resistentes à irradiação, para combustíveis tipo  $UO_2$  disperso em aço inoxidável.**

Fração Volumétrica do combustível	Diâmetro da partícula de combustível ( $\mu\text{m}$ )	Espessura do revestimento (mm)	Espessura do cerne (mm)	Espessura da placa* (mm)
0,24	100	> 0,07	1,46	1,6
0,3	125	> 0,07	1,71	1,85
0,4	200	> 0,07	2,46	2,6
0,5	330	> 0,07	3,76	3,9
0,6	620	> 0,07	6,66	6,8

\* Deve ser avaliada para verificar se atende aos requisitos de solicitação mecânica externa.

**Tabela 5.5 - Tempo de operação máximo em plena potência e enriquecimento necessário para várias frações de volume de combustível.**

Fração de volume do combustível	Tempo de operação em plena potência* (dias)	Enriquecimento necessário (%)
0,15	1500	98
0,25	1300	55
0,35	1140	38
0,43	1000	28
0,55	780	21
0,60	700	17,5

\* Valores aproximados que dependem da reatividade diferencial do átomo de  $^{235}\text{U}$ .

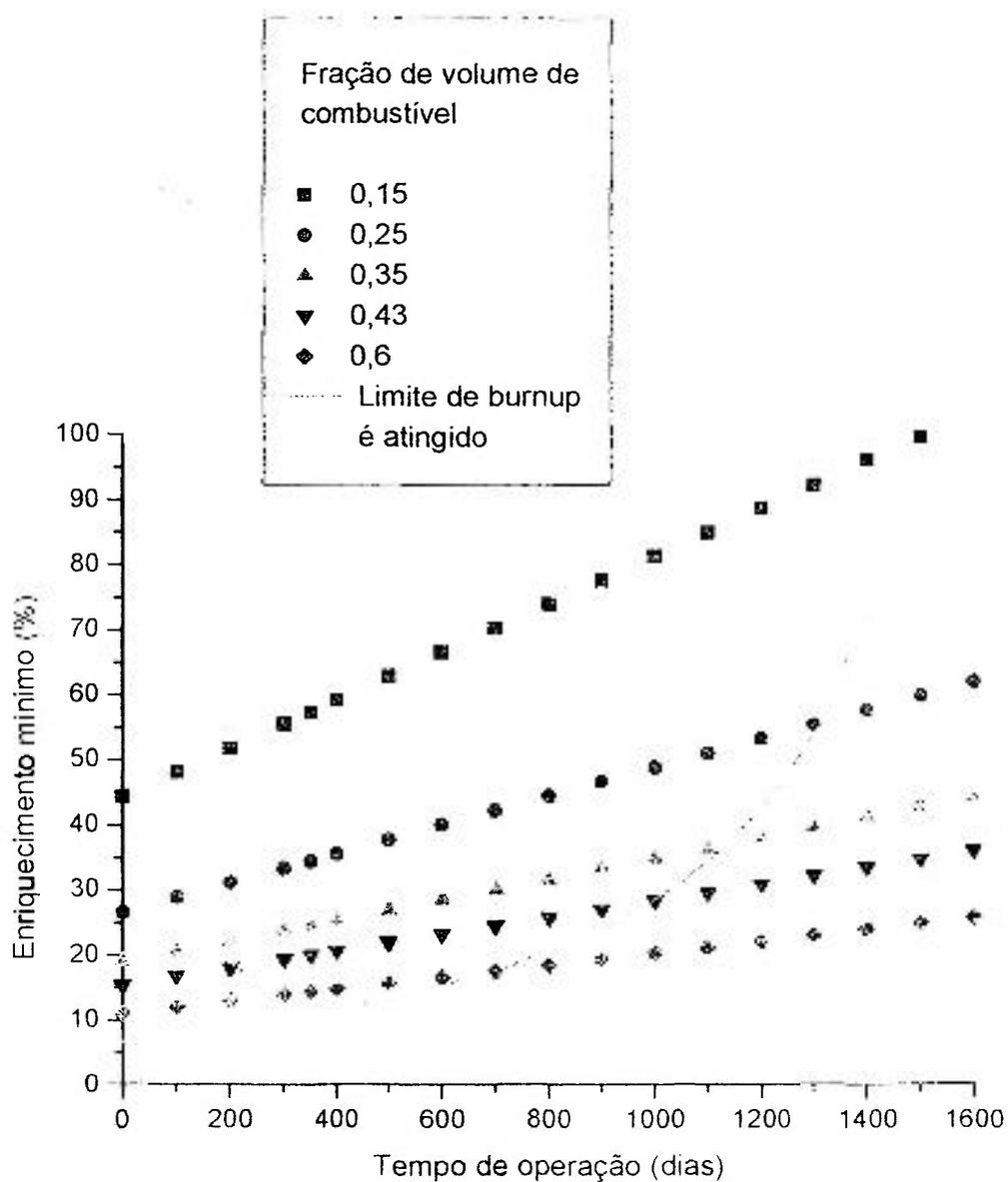


Figura 5.3 – Enriquecimento necessário em função do tempo de operação em plena potência que se deseja alcançar para várias frações volumétricas de combustível.



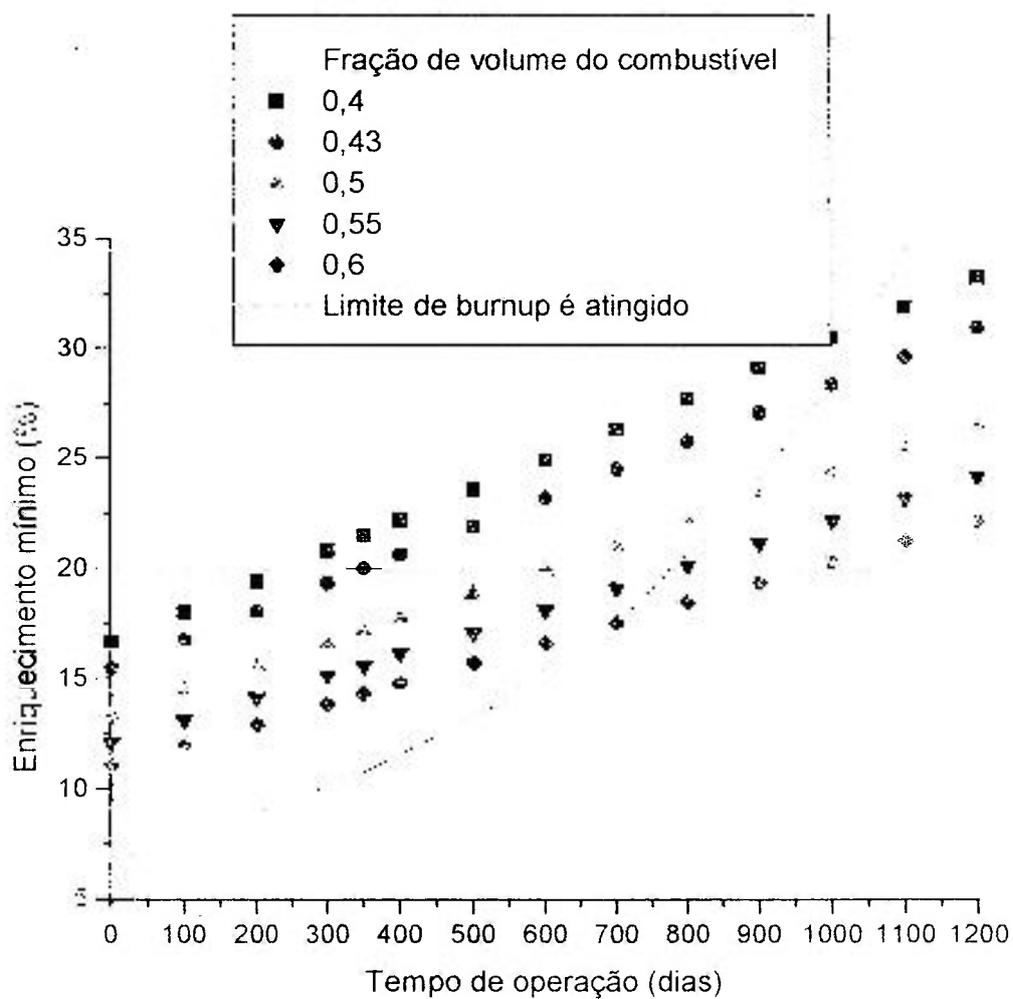


Figura 5.4 – Enriquecimento necessário em função do tempo de operação em plena potência que se deseja alcançar para várias frações volumétricas de combustível.

### ***5.5 Uniformidade da dispersão e temperaturas máximas de operação***

Conforme se mencionou no Capítulo 3, a dispersão de combustível deve ser a mais uniforme possível. Em relação ao diâmetro da partícula é importante se evitar a presença de partículas finas pois há uma deterioração forte do combustível quando irradiado. Admite-se entre 10 e 15 % de partículas menores que 250  $\mu\text{m}$  que corresponde a uma pequena deterioração do desempenho do combustível.

Em relação à temperatura, durante a operação temperaturas mais elevadas que 900 °C devem ser evitadas.

### ***5.6 Especificação do combustível tipo placa de $\text{UO}_2$ disperso em aço inoxidável***

Para atender aos requisitos colocados na Tabela 5.1 como enriquecimento máximo do combustível é de 20 %, tempo de operação em plena potência maior que 365 dias e combustíveis com experiência operacional de bom desempenho sob irradiação, a especificação que este trabalho indica para um combustível tipo placa de  $\text{UO}_2$  disperso em aço inoxidável é apresentada na Tabela 5.6. Tempos de operação em plena potência maiores dificilmente podem ser conseguidos com combustíveis enriquecidos a 20 % e com bom desempenho sob irradiação.

**Tabela 5.6 – Especificação do combustível tipo placa de  $UO_2$  disperso em aço inoxidável**

PARÂMETRO	VALOR
Enriquecimento (%)	20
Fração Volumétrica do combustível	0,43
Diâmetro da partícula de combustível ( $\mu\text{m}$ )	250
Densidade da Partícula de $UO_2$	Entre 90 e 95 % da densidade teórica
Espessura do revestimento (mm)	> 0,07
Espessura do cerne (mm)	2,96
Espessura da placa* (mm)	3,10
Uniformidade do diâmetro da partícula	15 % das partículas com diâmetro menor que 250 $\mu\text{m}$
Temperatura máxima de operação	900 °C

\* Deve ser avaliada para verificar se atende aos requisitos de solicitação mecânica externa.

### 5.7 Análise da especificação proposta

A especificação dada na Tabela 5.6 foi baseada na experiência de irradiação de elementos combustíveis que experimentaram níveis de “burnup” onde não foram constatadas falhas e devem atender os requisitos de um reator de pequeno porte para propulsão nuclear, conforme Tabela 5.1. A fração volumétrica de combustível assim como o diâmetro da partícula especificado, permitem a existência de uma zona entre o material fissil e a matriz onde os produtos de fissão são acumulados durante o tempo de serviço do elemento combustível, mantendo-se a região danificada da matriz a uma distância segura de outras regiões danificadas, garantindo a integridade da matriz.

Para se conseguir um longo tempo de operação (maior que 365 dias) com enriquecimento máximo de 20 % é necessário uma dispersão com fração volumétrica de combustível muito elevada em torno de 0,55 e partículas com diâmetros também elevados,

470  $\mu\text{m}$ . A obtenção de um combustível com esta especificação requer um desenvolvimento de processos de fabricação bastante elaborado: fabricar partículas com cerca de 500  $\mu\text{m}$  com boa esfericidade, porosidade de 10 % e resistentes o suficiente para não serem esmagadas durante o processo de laminação. Outro ponto importante que requer uma análise específica para tal fração volumétrica de combustível tão elevada diz respeito à espessura do cerne e da placa de combustível pois o valor de 5 mm é muito elevado e pode causar gradientes de temperatura elevados que diminuem a resistência da placa ao “burnup” e à ciclagem térmica.

Assim, estes resultados são indicativos da tendência que o esforço de desenvolvimento deste combustível tipo dispersão de  $\text{UO}_2$  em aço inoxidável deve seguir para enriquecimentos máximos de 20 %. Para enriquecimentos maiores a dispersão com partículas em torno de 100  $\mu\text{m}$  e fração de volume de combustível menor que 0,3 tem bom comportamento sob irradiação.

Os principais métodos utilizados na fabricação de elementos combustíveis tipo dispersão utilizam-se da laminação e tratamento térmico (sinterização) dos cernes para aumentar a densidade, reduzir sua porosidade e impor os valores requeridos de densidade, resistência, condutividade térmica, etc. O apêndice 3 apresenta os principais passos necessários para se fabricar um combustível tipo dispersão de  $\text{UO}_2$  em aço inoxidável.

A partícula combustível deve possuir uma determinada resistência mecânica, para evitar a sua desintegração durante o processo de fabricação do elemento combustível. A densidade relativamente baixa da partícula especificada não deve ser obstáculo para sua produção, uma vez que a densidade está relacionada ao processo de sinterização a que deverá ser submetida e que, portanto, pode ser controlada através da temperatura e tempo utilizados neste processo.

Alem da densidade, a área de superfície específica das partículas a serem utilizadas na dispersão combustível, deve ser minimizada através de processos físico-químicos de forma a aumentar sua resistência à fragmentação. Partículas de combustível com formas irregulares, de cantos vivos, com porosidade aberta e superfície rugosa, são menos resistentes à fragmentação e têm maior superfície específica do que partículas arredondadas, superficialmente lisas e de alta densidade aparente[13]. Assim, partículas de dióxido de

urânio com estas características permitem a produção de cernes de elementos combustíveis tipo dispersão com uma estrutura próxima a isotrópica e com maior estabilidade sob a irradiação.

Partículas com faixas granulométricas da ordem de 100 a 500  $\mu\text{m}$  podem ser obtidas através de uma variedade de métodos físico-químicos entre os quais descrevemos alguns a seguir. Um dos principais métodos envolve a produção de partículas esféricas por atomização de soluções contendo urânio como uma solução de nitrato de uranila pulverizada dentro de um vaso quente. Partículas esféricas de trióxido de urânio são produzidas quando gotas de solvente são evaporadas e o nitrato de uranila se decompõe. O pó de trióxido de urânio é reduzido à dióxido de urânio em hidrogênio a temperaturas entre 1000 e 1800  $^{\circ}\text{C}$ , as partículas do pó retêm sua forma esférica original. Este método produz pós de dióxido de urânio com um tamanho de partícula na ordem de centenas de microns e com densidade relativamente baixa [7].

Outro método de produção de partículas esféricas de dióxido de urânio envolve a precipitação de poliuranatos, seguido de pirólise e sinterização do produto à 1800  $^{\circ}\text{C}$  em atmosfera de argônio – hidrogênio. Acetona ou ácido sulfúrico, que favorecem a formação de partículas esféricas é adicionada à solução preparada para o estágio de precipitação. O processo produz pós com partículas de tamanho de 20 a 800  $\mu\text{m}$ , densidade de partículas da ordem de 98% do valor teórico e de forma aproximadamente esféricas[8].

Pós com melhores características podem ser obtidos se as partículas com os tamanhos adequados são formadas antes da sinterização. Tais pós são adequados para serem utilizados em elementos combustíveis tipo dispersão. Existem vários métodos de formar mecanicamente partículas de dióxido de urânio de tamanhos e formas adequadas. Num destes métodos, o dióxido de urânio é comprimido, depois ele é retirado para produzir partículas nas dimensões especificadas. Para se obter partículas com boa esféricidade, os pós passam por um moinho de bolas e são, então, sinterizados em temperaturas variando de 1600 a 1750  $^{\circ}\text{C}$ [13]. Pós consistindo de partículas esféricas densas com tamanhos de 100 a 500  $\mu\text{m}$  são preparados a partir de pós granulados separados por peneiras vibratórias de partículas, seguido de sinterização. No processamento vibratório, as partículas adquirem forma esférica como resultado do desgaste mecânico devido ao atrito de uma com as outras

e com a superfície do aparato vibratório que é revestido com resina epóxi contendo pó de carbono e silício. As partículas obtidas por este método são sinterizadas a 1600°C em um forno elétrico em bandejas de molibdênio e atmosfera de amônia dissociada. A sinterização causa a aglomeração das partículas, mas os aglomerados são principalmente quebrados quando o produto sinterizado é peneirado. As partículas de dióxido de urânio produzidas apresentam uma densidade de 10,55 g/cm<sup>3</sup>, sua forma é aproximadamente esférica com tamanho de 80 a 150 μ quando sinterizadas por 48 horas[7].

Partículas com boa esfericidade podem ser obtidas com o processo sol-gel, o qual foi desenvolvido para se obter esferas de UO<sub>2</sub> para o reator HTGR ( dispersão de esferas combustíveis em matriz de grafite) sendo a tecnologia mais relevante na obtenção de combustível no formato esférico.

Técnicas de revestimento de partículas fisséis com várias substâncias (alumina, aço inoxidável, grafite, tungstênio, níquel, cromo, etc), tem possibilitado aumentar as temperaturas de fabricação e operação de combustíveis tipo dispersão, facilitando o processo de fabricação e atribuindo uma série de vantagens a nível de estabilidade sob irradiação ao elemento combustível tipo dispersão[9].

O revestimento de partículas combustíveis em sistemas de dispersão melhora as propriedades destes sistemas por produzir uma distribuição mais uniforme das partículas combustíveis dentro do material da matriz e por prevenir a interação do material combustível com o material da matriz em sistemas termodinamicamente instáveis. O mesmo, previne a interação entre o combustível e o refrigerante do circuito primário do reator numa eventual ruptura do elemento combustível durante a operação, eliminando a possibilidade de contaminação radioativa do refrigerante. Desta forma o uso de partículas combustíveis revestidas resulta num aumento da vida útil do elemento combustível tipo dispersão e reduz o custo de utilização do combustível nuclear[10].

As partículas de pós sinterizados são usualmente submetidas a um processo de revestimento com camadas metálicas, cerâmicas ou gráficas. A seleção do material de revestimento é estabelecida levando-se em consideração a sua compatibilidade física e química com os materiais do elemento combustível e refrigerante. Partículas de dióxido de urânio revestida com camadas de cromo em uma matriz de zircaloy-2 e dióxido de urânio

revestido com uma camada de óxido de alumínio em matriz de grafite de reatores de altas temperaturas são exemplos deste tipo de utilização. Técnicas para revestimento de partículas incluem o revestimento produzido por decomposição ou redução de vapor de haletos, deposição a vácuo, métodos eletrolíticos e eletrostáticos, precipitação química de soluções e polimerização de soluções[11].

Metalização a vácuo também é usada para revestir partículas de dióxido de urânio com ferro, cromo, níquel e molibdênio. Os métodos são baseados na vaporização rápida de alguns metais quando aquecidos em alto vácuo. As temperaturas utilizadas durante o processo de produção são usualmente abaixo dos pontos de fusão do material da matriz e do combustível. Nessas temperaturas, os constituintes num grande número de sistemas são compatíveis e o número de materiais que podem ser usados para o núcleo de elementos combustível é correspondentemente ampla[12].

## **REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS**

1. Weir, J. R., “**A failure analysis for the low-temperature performances of dispersion fuel elements**”, ORNL-2902, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, USA, 1960.
2. Silva, J. E. R., “**Comparação do desempenho do dióxido de urânio sinterizado sob formas placa e cilíndrica para reatores a água pressurizada**”, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares”, Tese de Mestrado, São Paulo, SP, 1989.
3. Simões, A. V., “**Desempenho sob irradiação de combustíveis a dispersão de MTR, Tese de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares**”, Tese de Mestrado, São Paulo, SP, 1993.
4. Perrotta, J. A., “**Proposta de Um Núcleo de Reator PWR Avançado com Característica Adequadas para o Conceito de Segurança Passiva**”, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Tese de Doutorado, São Paulo, SP, p. 101-102, 1999.
5. Cahn, W., Haasen, P., Kramer, E.J., Editors, “**Materials Science and Technology,, A comprehensive treatment**”, Volume 10A, Cap.2, pag. 78, 1997.
6. Samoilov, A. G., Kashtanov, A. F., Volkov, V. S., English translation: A. Aladjem, “**Dispersion fuel nuclear reactor elements**”, Jerusalem, Israel, Program for Scientific Translation, Cap. 5 e Cap.6, 1968.
7. Samoilov, A. G., Kashtanov, A. F., Volkov, V. S., English translation: A. Aladjem, “**Dispersion fuel nuclear reactor elements**”, Jerusalem, Israel, Program for Scientific Translation, 1968,p.83.
8. “**Preparation and Processing of Particulate Nuclear Fuels**”, CONF – 117, METALS, CERAMIC, AND MATERIALS; Proceedings of a Symposium held at New York, September 9, 1964, p : 45 – 65.



9. **“Preparation and Processing of Particulate Nuclear Fuels”**, CONF – 117, METALS, CERAMIC, AND MATERIALS; Proceedings of a Symposium held at New York, September 9, 1964, p : 11 – 19; 103 – 123.
10. **“Preparation and Processing of Particulate Nuclear Fuels”**, CONF – 117, METALS, CERAMIC, AND MATERIALS; Proceedings of a Symposium held at New York, September 9, 1964, p : 104-126, p:149-179.
11. Cahn, R. W.; Haasen, P.;Kramer, E. J., **“ Material Science and Technology”**, Vol. 10A, Nuclear Materials, Part. I, 1994.
12. Readey, D.W.; Handwerk, J.H. **“Nuclear Fuel Materials ”**, p 47-60, Nuclear Science and Technology for Ceramists; Proceedings of the ACS Symposium, Washington, 1966.
13. Stenquist, D. R., **“Note on Correlation of Surface Characteristics of Uranium Dioxide Powder with their Sintering Behavior”** , Journal of American Ceramic Society, v. 41, n° 7, 1958, p. 733-740.

## 6 CONCLUSÕES

Neste trabalho estudou-se o comportamento do combustível tipo placa de dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável buscando estabelecer o limite de “burnup” admissível sem que haja dano no combustível para frações volumétricas de combustível elevadas. Também estabeleceu uma especificação deste combustível para longos períodos de irradiação e enriquecimento menor que 20 %.

Para se estabelecer o limite de “burnup” admissível do combustível tipo dispersão considerou-se que a fase matriz é a principal responsável pela sua resistência quanto a irradiação e que esta resistência seja proporcional ao número de átomos de matriz presente na dispersão. Assim, o limite de “burnup” foi considerado como função direta da fração de átomos fissionados em relação ao total de átomos existentes na matriz. A partir destas considerações foi possível estabelecer um limite de “burnup” admissível a partir de um conjunto de dados experimentais para a fração de volume de combustível de 0,244. O limite de “burnup” em função da fração volumétrica para duas temperaturas diferentes do combustível encontra-se na Figura 4.3. Estes resultados permitiram estabelecer a especificação do combustível que tenha um bom comportamento sob irradiação.

A especificação de um combustível tipo placa de dispersão de  $UO_2$  em aço inoxidável considerou os parâmetros tamanho da partícula de combustível, fração volumétrica do combustível na dispersão, porosidade da partícula de combustível, espessuras do cerne de combustível, do revestimento e da placa, enriquecimento do combustível, uniformidade da dispersão e temperaturas de fabricação e operação.

Para se obter os parâmetros que caracterizam um combustível com bom desempenho sob irradiação analisou-se os experimentos apresentados por Samoïlov et all. Determinou-se que uma distância de 46  $\mu m$  entre as partículas de combustível forneceu boas características de resistência mecânica.

Em relação ao diâmetro da partícula e a fração volumétrica de combustível na dispersão, para se obter combustíveis tipo placa com bom desempenho sob irradiação para uma fração volumétrica de combustível de 0,6 o diâmetro da partícula deve ser da ordem de 620  $\mu\text{m}$ ; de 0,5 o diâmetro deve ser da ordem de 330  $\mu\text{m}$ ; de 0,4, o diâmetro deve ser da ordem de 200  $\mu\text{m}$ ; de 0,3, o diâmetro deve ser da ordem de 125  $\mu\text{m}$ ; e de 0,25, o diâmetro deve ser da ordem de 100  $\mu\text{m}$ . Para a faixa de fração volumétrica acima de 0,4 as partículas devem ser grandes e possuir diâmetros superiores a 200  $\mu\text{m}$ . Deve-se notar que a medida que a partícula de combustível tem o seu diâmetro aumentado a distância de 46  $\mu\text{m}$  tem menor capacidade de conferir a resistência necessária à placa. A espessura da placa deverá aumentar para compensar este problema.

Para se conseguir operar por 1200 dias em plena potência com combustíveis tipo placa de  $\text{UO}_2$  em aço inoxidável é necessário um enriquecimento acima de 40 % em combustível com fração volumétrica de combustível menor que 0,30. Para frações volumétrica mais elevadas atinge-se o limite “burnup” máximo em tempos menores de operação.

A especificação do combustível tipo placa de dispersão de  $\text{UO}_2$  em aço inoxidável para um tempo de operação em plena potência de aproximadamente 365 dias é a seguinte: enriquecimento de 20 %, fração volumétrica do combustível de 0,43, diâmetro da partícula de combustível de 250  $\mu\text{m}$ , espessura do revestimento mínima de 0,07 mm, espessura do cerne de 2,96 mm e espessura da placa de combustível de 3,1 mm, devendo as espessuras serem confirmadas com cálculos de resistência mecânica.

Conforme discutido no trabalho é muito importante realizar novos estudos com o objetivo de se especificar o combustível em dispersão com placas de menores espessuras de maneira que possa permitir uma minimização do gradiente térmico e uma maior eficiência na transferência de calor. Sugere-se, também, empregar menores carregamentos da fase fissil com partículas de menores diâmetros, o que possibilitaria uma maior resistência mecânica do cerne e uma maior homogeneidade da fase fissil. Neste sentido possibilitar-se-a obter combustíveis com desempenho ainda maior.

### *Recomendações para trabalhos futuros*

O desempenho dos combustíveis tipo dispersão está relacionado à sua estabilidade definida como capacidade de resistir aos danos de irradiação, manutenção da integridade mecânica, ausência de variações dimensionais significativas, etc. Esta estabilidade está diretamente ligada ao “burnup”, à concentração de átomos físeis e conseqüentemente aos produtos de fissões gerados. Portanto estudos futuros devem analisar o gradiente de temperatura na placa combustível focalizando a região composta pelo centro da partícula e as regiões adjacentes a ela. O gradiente de temperatura nesta região aumenta a medida que se aumenta o diâmetro da partícula e o “burnup”. Nesta análise, é importante considerar a existência de gases de fissão ao longo do “burnup”, estimar com maior precisão a quantidade de produtos de fissões que recuam ou se difundem para as regiões adjacentes às partículas e determinar com maior precisão os valores das temperaturas nestas e nas demais regiões da placa combustível.

A irradiação de partículas combustíveis de  $UO_2$  dispersas em matriz metálica leva inicialmente a uma densificação inicial do material combustível (sinterização prematura com desaparecimento de poros) que causa a formação de regiões vazias entre a partícula e a matriz devido a sua diminuição de volume. A altos “burnups” os poros reaparecem, provavelmente como precipitação de gases de fissão para formar bolhas e vazios, e uma expansão volumétrica é observada. Estudos referentes aos mecanismos de precipitação de bolhas e vazios no material físil e na matriz metálica indicariam, de forma mais segura, o limite de “burnup” para estes combustíveis, uma vez que a causa básica de falhas nestes combustíveis estão relacionadas ao surgimento de uma pressão altíssima de gás entre a partícula combustível e a matriz adjacente, ocasionando a formação de trincas. O gradiente de temperatura e temperaturas atingidas nesta região influem diretamente na pressão exercida pelos gases sobre a matriz metálica. A quantidade de gases formados e acumulados em certas regiões, em função do “burnup”, a uma dada temperatura podem tencionar a matriz metálica a valores que excedem o seu limite de resistência à fratura iniciando o processo de trinca.

Estudos referentes ao revestimento de partículas também é de grande importância no desenvolvimento de tais combustíveis. Revestimentos adequados permitiriam o

isolamento da partícula do material da matriz evitando reações químicas, o mesmo poderia prover espaço para o acúmulo de produtos de fissão, permitindo a operação a temperaturas maiores e menor tensão na matriz. Permitiria também, com a escolha do material adequado, uma melhor condutividade térmica da região danificada pelo uso de um material altamente condutor de calor que compensaria a baixa condutividade térmica dos gases nesta região. O conhecimento das características destes revestimentos e dos processos de fabricação devem ser objetos de estudo nesta área.

## APÊNDICE 1

### 1 *Preparação química do pó de dióxido de urânio*

Existem muitos compostos de urânio adequados para serem usados como materiais combustíveis em elementos combustíveis tipo dispersão. Todavia, detalhes da produção de pós adequados para uso em sistemas de dispersão tem sido elaborado para um pequeno número destes compostos. Estes incluem dióxido de urânio ( $\text{UO}_2$ ), óxido de urânio ( $\text{U}_3\text{O}_8$ ), mono-carbeto de urânio (UC). O Dióxido de Urânio devido suas propriedades é o mais utilizado destes compostos.

Devido a correlação existente com este trabalho e pelo fato do  $\text{UO}_2$  ser o material combustível de maior utilização em reatores nucleares de potência, é apresentado a seguir vários métodos químicos de obtenção do material, alguns apenas de interesse laboratorial. Por conveniência estes métodos foram agrupados nas seguintes categorias:

- oxidação do urânio metálico através de oxigênio, vapor d'água, gás carbônico e monóxido de carbôno.
- redução de óxidos em estado mais oxidado:  $\text{UO}_3$ ,  $\text{UO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{U}_3\text{O}_8$ ,  $\text{UO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ [2,3]
- decomposição térmica seguida de redução de diuranatos ( $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ ), poliuranatos (até  $(\text{NH}_4)_2\text{U}_7\text{O}_{22}$ ), carbonatos de urânio ( $(\text{NH}_4)_4\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$ )[2,3]
- decomposição térmica e redução do nitrato de urânio hexahidratado  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , do fosfato de urânio ( $(\text{UO}_2)_3(\text{PO}_4)_2$ ), do sulfato de urânio ( $\text{UO}_2\text{SO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ )[3]
- via oxidação dos haletos de urânio: hidrólise do  $\text{UF}_6$  seguida de precipitação de DUA ou TCAU, conversão a seco do  $\text{UF}_6$  a  $\text{UO}_2\text{F}_2$  seguida de redução a  $\text{UO}_2$ ; preparação a partir de cloretos ( $\text{UCl}_4$ ), de oxicloretos ( $\text{UOCl}_2$ ), de cloretos de urânio ( $\text{UO}_2\text{Cl}_2$ ), decomposição de iodetos e brometos de urânio[3]
- descarboxilação de compostos de urânio e ácidos carbônicos via decomposição de : formato de urânio ( $\text{U}(\text{HCOO})_4$ ), diformato de urânio ( $\text{UO}_2(\text{HCOO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ), diacetato de urânio ( $\text{UO}_2(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ), tetracetato de urânio

$(U(CH_3COO)_4)$ , oxalato de urânio  $(U(C_2O_4)_2 \cdot 6H_2O)$ , oxalato de urânio  $(UO_2C_2O_4 \cdot 3H_2O)$ [3]

- preparação hidrometalúrgica de  $UO_2$  a partir de soluções de sais de urânio: nitrato de urânio: carbonato de urânio, nitrato de urânio[2,3]
- eletrolise de haletos de urânio: decomposição catódica de  $UO_2Cl_2$ , dissolvidos em banhos de LiCl-KCl ou NaCl-KCl [2,3]

A experiência estabelece que o material particulado denso de dióxido de urânio pode ser obtido da seguinte forma:

a – usando pós contendo partículas de tamanhos bem pequenos associadas a uma grande área superficial por unidade de volume, o que facilitará a compactação e sinterização.

b– usando pós formados através da redução de altos óxidos de urânio densos precipitados quimicamente.

Tabela A1.1 - Técnicas de preparação química para obtenção de dióxido de urânio[4]

Tipo	Condições de redução			redução		Densidade do pó $\text{g/cm}^3$	Razão Oxigênio para Urânio
	Atmosfera	Temp., °C	Tempo, h	Área superficial por unidade de volume, $\text{m}^2/\text{m}^3$	Área superficial por unidade de peso, $\text{m}^2/\text{g}$		
<b>Nitrato de Urânio</b>							
Pirólise e denitração do UNH à $\text{UO}_2$	$\text{H}_2$	750 - 800	4-8	6,0	0,5		2,00 - 2,03
Pirólise e denitração do UNH em leito fluidizado	$\text{H}_2$	700	6	30	2,8		2,07
Combustão Atmosférica do MCW $\text{UO}_2$ para $\text{U}_3\text{O}_8$ (800 °C. por 24 h)	$\text{H}_2$	780	15	5,4		10,35	2,01
Combustão Atmosférica do MCW $\text{UO}_2$ para $\text{U}_3\text{O}_8$ (740 °C por 48 h)	$\text{H}_2$	800	16	5,7		10,03	2,02
<b>Diuranatos</b>							
Diuranato precipitado do Hidróxido de Amônia	$\text{H}_2$	850 - 950	4 - 32	37,4	3,4	11,11 10,82	2,07
Combustão Atmosférica (500 °C) do Diuranato Precip. do Hidróxido de Amônia p/ $\text{U}_3\text{O}_8$	$\text{H}_2$	800	32	59,9		11,09 10,77	2,14
Combustão Atmosférica (800 °C) do Diuranato Prep. do Hidróx. de Amônia p/ $\text{U}_3\text{O}_8$	$\text{H}_2$	900	25	9,7	0,9	10,61 10,71	2,02
Diuranato ,Precipitado de Amônia	$\text{H}_2$	900	56	4,8	3,7	10,85	2,05
Diuranato ,Precipitado de Ureia	$\text{H}_2$	800	16	42,1	3,8	10,74	2,08
Comb. Atmosférica (500 °C) do Diuranato Precip. de Ureia para $\text{U}_3\text{O}_8$	$\text{H}_2$	900 - 1050	32	60,4		11,34 10,47	2,11
Combustão Atmosférica (800 °C) do Diuranato Precip. de Ureia para $\text{U}_3\text{O}_8$	$\text{H}_2$	900	40	6,0		10,55 10,43	
Diuranato precipitado de Carbonato de Amônio	$\text{H}_2$	900	56		3,3	10,3	2,05
Combustão Atmosférica (500 °C) do Diuranato Precip. de Carbonato de Amônio para $\text{U}_3\text{O}_8$	$\text{H}_2$	900	110	36,2		10,5	2,05
Combustão Atmosférica (1000 °C) do Diuranato Precip. de Carbonato de Amônio para $\text{U}_3\text{O}_8$	$\text{H}_2$	900	16	14,1		10,46	2,02
<b>Oxalatos</b>							
Oxalato de urânio	$\text{H}_2$	900	64	7,3	0,7	10,61	2,01
Combustão atmosférica do Oxalato de Urânio para $\text{U}_3\text{O}_8$	$\text{H}_2$	900	62	30,4	2,8	10,68	2,03
<b>Peróxido</b>							
Peróxido de Urânio	$\text{H}_2$	900	56	12,0	1,1	11,00 10,78	2,08
Combustão atmosférica do Peróxido de urânio para $\text{U}_3\text{O}_8$	$\text{H}_2$	900	56	11,9	1,1	10,44	2,02
<b>Óxidos hidratados</b>							
$\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	$\text{H}_2$	850	6	0,8	0,8	10,25	2,01
$\text{UO}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ crescidos hidrotérmicamente em autoclave	$\text{H}_2$	1700	2		0,01	10,34 10,37	2,01
<b>Oxidação metálica</b>							
Oxidação do urânio, vapor a alta pressão (2200 psig, 343 °C. 72 h)				12,0	1,2	10,92 10,75	1,97
Oxidação do urânio vapor a baixa pressão (3,5 - 7,5 psig, 150 °C, 24 h, vácuo, 700 °C, 8 h)				2,4	0,2	10,85 10,91	2,02
Oxidação do urânio vapor a baixa pressão não controlada (3,5 - 7,5 psig, 350 °C, 5 h)	$\text{H}_2$	900	5	29,0	0,8	10,92 10,85	2,03



## 2 Composição química de pós metálicos

A composição química de vários pós metálicos está listada na Tabela A1.3. O tamanho das partículas de pós usados como material da matriz não excede usualmente à 40  $\mu$ .

**Tabela A1.2 – Composição química de pós para matrizes a serem utilizadas como núcleo ou base dos elementos combustíveis tipo dispersão**

Material	Composição Química, %										
	Fe	Cr	Ni	Mo	Si	Mn	Mg	Cu	Co	Sn	Zr
Ferro (1)	tara	0,005	0,5	0,01	0,005	0,005	0,01	0,01	?	-	-
Ferro (2)	Tara	0,001	0,1	0,005	0,001	0,005	0,005	0,03	0,01	-	-
Cromo	0,01	tara	0,005	0,01	?	0,01	0,002	0,03	?	-	-
Níquel (2)	0,1	0,005	Tara	?	?	?	?	?	?	-	-
Molibidênio	0,01	?	0,01	Tara	0,001	?	?	?	?	-	-
Aço Inoxid.	Tara	18,58	8,86	-	1,05	0,59	-	-	-	-	-
Aço Inoxid.	Tara	17,72	11,09	2,47	2,44	0,89	-	-	-	-	-
Aço Inoxid.	Tara	18,20	11,31	2,34	2,44	0,01	-	-	-	-	-
Aço Inoxid.	Tara	24,76	20,73	-	2,00	0,98	-	-	-	-	-
Zircaloy-2	0,20	0,15	0,08	-	-	-	-	-	-	1,7	Tara
Zircaloy-4	0,18	0,15	0,007	-	-	-	-	-	-	1,7	Tara

### ***REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS***

- 1 Belle, J. "**Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications**", United States Atomic Energy Commission, July 1961.
- 2 Mandil, I.H.; Scott, R.G. "**Uranium Dioxide and its Applications to Nuclear Power Reactor**", 1961.
- 3 "**Preparation and Processing of Particulate Nuclear Fuels**", CONF - 117, METALS, CERAMIC, AND MATERIALS; Proceedings of a Symposium held at New York, September 9, 1964, p : 45 - 65.
- 4 Stenquist, D. R., "**Note on Correlation of Surface Characteristics of Uranium Dioxide Powder with their Sintering Behavior**" , Journal of American Ceramic Society, v. 41, nº 7, 1958, p. 733-740.

## APÊNDICE 2

### 1 *Revestimento de partículas combustíveis*

As partículas de pós sinterizados são usualmente submetidas a um processo de revestimento com camadas metálicas, cerâmicas ou graficas[1]. A seleção do material de revestimento é estabelecida levando-se em consideração a sua compatibilidade física e química com os materiais do elemento combustível e refrigerante[2,4]. Partículas de dióxido de urânio revestida com camadas de cromo ou carbono em uma matriz de zircaloy-2 e dióxido de urânio revestido com uma camada de óxido de alumínio em matriz de grafite de reatores de altas temperaturas são exemplos deste tipo de utilização[3]. As técnicas para revestimento de partículas incluem:

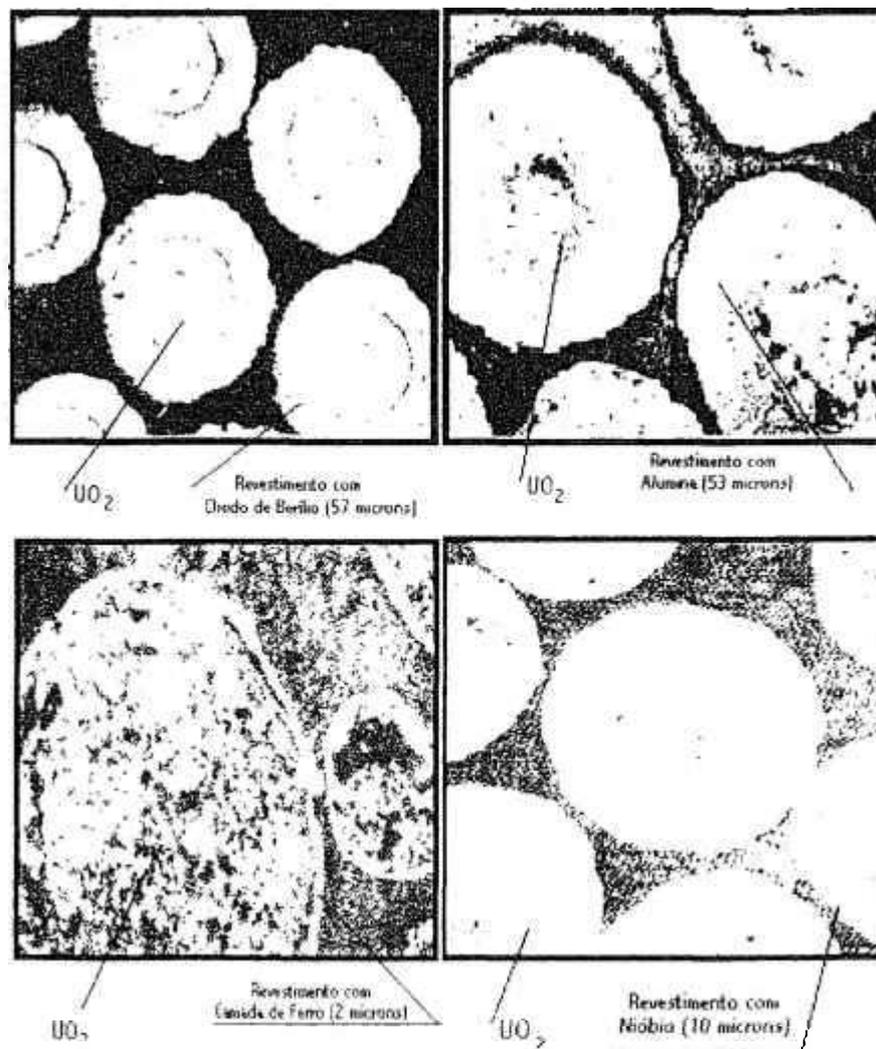
- o revestimento produzido por decomposição ou redução de vapor de haletos,
- deposição a vácuo,
- métodos eletrolíticos e eletrostáticos,
- precipitação química de soluções e polimerização de soluções.

As condições de processo mantidas durante a deposição de alguns metais estão listadas na Tabela A2.1.

**Tabela A2.1 – Condições de processo para a deposição de metais na fase vapor em partículas combustíveis.**

Condição	Metal para revestimento				
	Al	Mo	W	Si	Si
Composto inicial	Tri-isobutil Alumínio	Mo(CO) <sub>6</sub>	WCl <sub>6</sub>	SiH <sub>4</sub>	SiH <sub>4</sub>
Reação	Decomposição térmica	Decomposição térmica	Redução	Decomposição térmica	Decomposição térmica
Temperatura no Evaporado, °C	160	100	280	280	Gás
Temperatura de Decomposição, °C	270	250	800-900	700-1200	850-1370

Estes métodos são usados para revestimento de partículas de dióxido de urânio com finas camadas de metais dos grupos V, VI e VII, Nióbio, Vanádio, Tântalo, cromo, molibdênio, tungstênio, ferro e níquel. Mais ainda, é possível obter revestimento de silicone, ligas de nióbio contendo vanádio e níquel cromo. A FIG.A1.1 mostra a microfotografia de da seção de corte de partículas de dióxido de urânio revestida com alguns tipos de materiais diferentes. A metalização a vácuo também é usada para revestir partículas de dióxido de urânio com ferro, cromo, níquel e molibdênio. Os métodos são baseados na vaporização rápida de alguns metais quando aquecidos em alto vácuo. O metal a ser vaporizado é aquecido ( direta ou indiretamente) por corrente elétrica a uma temperatura com a qual a vaporização ocorre rapidamente. O pó de dióxido de urânio é colocado na câmara, sendo a distância do pó à vaporização do metal ajustado de forma que a temperatura do dióxido não exceda 300 °C. Para que as partículas sejam revestida uniformemente de metal condensado, as mesmas são continuamente vibradas.



*Figura A.2.1 – Revestimento de Partículas - Fonte Ref.1*

As especificações técnicas para vários materiais de revestimento, assim como testes de aderência e determinação da espessura de revestimento metálicos estão dispostos na Ref.

2.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. **“Preparation and Processing of Particulate Nuclear Fuels”**, CONF – 117, METALS, CERAMIC, AND MATERIALS; Proceedings of a Symposium held at New York, September 9, 1964.
2. American Society For Testing and Materials. **“Compressibility of Metal Powder in Uniaxial Compaction”**, Designation: B331-85 : In: 1986 annual book of ASTM standards, Vol.2.05. p: 173 – 175.
3. Cahn R.W, Haasen. P, Kramer, E. J. **“ Materials Science and Technology”**, Volume 10. Nuclear materials B, Part 2 – 1994.
4. Mandil, I.H.; Scott, R.G. **“ Uranium Dioxide and its Applications to Nuclear Power Reactor ”**, 1961.

## APÊNDICE 3

### 1 *Preparação do Cerne do Elemento Combustível Tipo Dispersão*

A matriz do cerne do elemento semi-acabado é usualmente preparada através de pós metálicos que devem estar de acordo com as especificações gerais de pós para fabricação.

Uma das mais importantes operações na preparação de cernes de elementos combustíveis tipo dispersão é a distribuição uniforme das partículas físeis no material da matriz. A distribuição uniforme das partículas combustíveis na matriz é estabelecido como o primeiro estágio da fabricação do núcleo do elemento combustível através da mistura dos constituintes na forma de pó. A mistura é feita por métodos bem conhecidos da metalurgia do pó, nos quais vários equipamentos misturadores são utilizados[1].

Tem sido estabelecido que a uniformidade da composição depende em grande parte do tamanho dos diâmetros das partículas dos componentes. Uma melhor uniformidade da mistura é obtida quando os tamanhos das partículas do material da matriz forem iguais ou menores do que a do material combustível, em geral, o pó do material da matriz deve apresentar na prática um tamanho de partícula menor que 44  $\mu$ .

### 2 *Processos de Compactação e Sinterização de Núcleos de Elementos Combustíveis*

A compactação é necessária para impor ao material particulado a forma e densidade especificada e dar a resistência mecânica necessária. Normalmente, a sinterização do material compactado causa um aumento na densidade, um aumento na área de contato das partículas na matriz e recristalização.

A compactação de misturas de pós para núcleos de elementos combustíveis semi-acabados é conduzida por vários métodos, incluindo prensagem em matriz de aço endurecido, prensagem isostática, prensagem hidrostática, extrusão, laminação a frio, laminação a quente, estampagem, etc.

O método deve ser selecionado levando-se em consideração as propriedades das misturas a serem compactadas, a forma e a densidade das peças a serem produzidas e os requerimentos quanto as especificações relativas à estrutura, densidade, resistência, etc. As propriedades físicas dos cermets dependem diretamente do processo de compactação. Neste processo a temperatura e a pressão são primordiais. Além desses fatores, outros devem ser levados em consideração como por exemplo: o tempo de residência da pressão aplicada, a relação das áreas de atrito e de compactação, o uso de lubrificantes adequados, etc.

Quanto às partículas, os fatores que influem no processo são: a) a distribuição dos tamanhos das partículas – devido à variação da área específica e, conseqüentemente, do atrito entre as partículas metálicas e entre as partículas cerâmicas; b) a deformação plástica das partículas metálicas e elástica das partículas cerâmicas, especialmente em cermets com grande concentração de fase cerâmica, onde a fase metálica está no limite de se tornar descontínua, neste caso, a aplicação de pressão faz com que as partículas cerâmicas sofram esforços elásticos crescente. Com a retirada da carga, as deformações são aliviadas, ocorrendo o aparecimento de trincas no compactado; c) o encruamento das partículas metálicas.

### **3 *Prensagem em Matriz de Aço Endurecido***

Prensagens mono e bidirecionais de pós em matrizes de aços endurecidos são os métodos de compactação de misturas de pós mais amplamente utilizados para produção de cernes de elementos combustíveis. O trabalho é feito numa prensa, utilizando várias pressões de trabalho. As prensas são sempre equipadas de caixas com luvas para facilitar o manuseio de materiais radioativos.

Como exemplo, a Tabela A3.1 apresenta as pressões utilizadas na compactação de vários materiais e Tabela A3.2 mostra a densidade e a resistência obtidas em placas planas fabricadas por misturas de pós de aço inoxidável e de dióxido de urânio em função da pressão de compactação.

**Tabela A3.1 – Pressões usadas na compactação de várias misturas de dispersão combustível**

Mistura	Pressão aplicada, $\times 10^8$ newtons/m <sup>2</sup>
Aço inoxidável – 25 % em peso de UO <sub>2</sub>	5,1
Mo, Nb, níquel cromo – UM	7,9
YH <sub>3</sub> -UO <sub>2</sub>	7,8
Al-UO <sub>2</sub>	5,2
Al – U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	0,5

**Tabela A3.2 – A influência da pressão aplicada na densidade e na resistência de placas de dióxido de urânio 17,94 % em peso – aço inoxidável**

Pressão Aplicada, $\times 10^8$ newtons / m <sup>2</sup>	Densidade, g / cm <sup>3</sup>	Resistência, $\times 10^8$ newtons / m <sup>2</sup>
5,2	6,15	88
7,9	6,8	128
10,2	6,9	215

Testes de compressibilidade podem ser efetuados segundo norma da ASTM [2]. Deve-se ressaltar que o estudo de compressibilidade pode definir as melhores condições e/ou as melhores características morfológicas e superficiais dos pós constituintes de forma a obter-se maiores densidades e menores pressões de compactação. A redução da pressão de compactação implica diretamente na redução da fragmentação das partículas cerâmicas e, conseqüentemente, na melhoria da qualidade dos cermets.

#### 4 Prensagem Hidrostática

Este método possui várias vantagens, ele estabelece a distribuição uniforme da pressão através de todo o volume do material a ser prensado, uma vez que na compactação uniaxial, a existência de uma distribuição de tensões intermediária entre o estado de tensão puramente uniaxial e o estado tripla induz ao surgimento de uma “textura de compactação” e gradientes de densidade no material[3,4,5,6].



## ***5 Principais passos para a preparação de partículas de $UO_2$ para combustíveis de dispersão***

A fabricação de cernes de elementos combustíveis utiliza técnicas da metalurgia do pó e envolve as seguintes etapas principais:

- Preparação de pós para fabricação do material combustível;
- Preparação de misturas de pós usados como componentes do sistema de dispersão;
- prensagem dos pós para obtenção de núcleos de elementos combustíveis semi-acabados nas formas e tamanhos especificados;
- Tratamento térmico (sinterização) dos núcleos semi-acabados prensados para reduzir sua porosidade e impor os valores requeridos de densidade, resistência, condutividade térmica, etc.

O processo de sinterização é o principal estágio na compactação do material pulverizado em um sólido. Dois processos básicos ocorrem no material durante a sinterização: o primeiro leva a coesão das partículas e densificação do material por difusão no sólido e o segundo produz recristalização, com a criação de novas superfícies de grãos e uma nova estrutura no corpo do material. Estes dois processos são usualmente interrelacionados e são fortemente afetados por muito fatores, determinado pelas condições em que o material a ser sinterizado são preparados.

Na sinterização de materiais de elementos combustíveis para reatores, atenção deve ser dada às características da atmosfera na qual o tratamento térmico é conduzido. O meio gasoso escolhido deve prevenir a formação de óxidos na superfície do produto. Tem sido verificado que a sinterização de misturas baseadas em aço inoxidável, apresentam melhores resultados quando a operação é conduzida à vácuo pois favorece a remoção de impurezas gasosas (dióxido de carbono, nitrogênio e hidrogênio). As condições aplicadas em vários tipos composições de dispersão são mostradas na Tabela A3.3. Como regra, a porosidade residual do produto sinterizado é de 5 a 10 %.

Tabela A3.3 – Sinterização de misturas de dispersões: condições de processo

Dispersão	Condições de Sinterização		
	Temperatura (°C)	Tempo (h)	Atmosfera
UO <sub>2</sub> – Nb (Mo)	1750 – 2000	-	Vácuo
17,94 % UO <sub>2</sub> – Aço inoxidável	1350	16	Hidrogênio seco
UO <sub>2</sub> – Aço inoxidável	1180	1,25	Hidrogênio seco
25 % UO <sub>2</sub> – Aço inoxidável	1350	2	Hidrogênio seco
25,98 % UO <sub>2</sub> – Aço inoxidável	1180	1,25	Hidrogênio seco
30 % vol. UO <sub>2</sub> – Mo ( Nb, V, Níquel-cromo, Nb –40 % (em liga de Ti)	1200	4	Vácuo
UO <sub>2</sub> – Nb	950 – 980	-	-
UO <sub>2</sub> – YH <sub>3</sub>	1100	-	Vácuo
UO <sub>2</sub> – Mo	1770	14	-
20 % UO <sub>2</sub> – Mo	1400	0,5	Hidrogênio
PuO <sub>2</sub> -Th	1300	2	Vácuo (133 x 10 <sup>-3</sup> N/m <sup>2</sup> )
PuO <sub>2</sub> – Mo	1600	12	-
UO <sub>2</sub> – Aço inoxidável	1200	1	Vácuo
U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> – Al	580	-	Argônio

Fonte: Samoilov (pag-109)