



CONGRESSO GERAL DE ENERGIA NUCLEAR

24 A 29 DE ABRIL DE 1988

ANAIS - PROCEEDINGS

UTILIZAÇÃO DO CÓDIGO FRAPCON-1 NA ESPECIFICAÇÃO DE PARÂMETROS DE PROJETO DE PASTILHAS UO_2 DE PWRs

Antonio Teixeira e Silva
Adolfo Marra Neto

Divisão de Engenharia do Núcleo (RT-N)
Departamento de Reatores (RT)
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN)
Comissão Nacional de Energia Nuclear-SP (CENEN-SP)

SUMÁRIO

Um conjunto de parâmetros de projeto de pastilhas combustíveis UO_2 de PWRs é analisado para verificar a sua influência nas propriedades básicas do combustível e no seu comportamento sob irradiação. Três grupos de parâmetros são analisados: 1) conteúdo de urânio e impurezas; 2) estequiometria; 3) densidade, morfologia de poros e microestrutura. Uma metodologia é aplicada com o código FRAPCON-1 para especificação destes parâmetros.

ABSTRACT

UO_2 pellet design parameters are analysed to verify their influence in the fuel basic properties and in its performance under irradiation in pressurized water reactors. Three groups of parameters are discussed: 1) content of fissionable and impurity materials; 2) stoichiometry; 3) density, pore morphology, and microstructure. A methodology is applied with the fuel performance program FRAPCON-1 to specify these parameters.

I. INTRODUÇÃO

O projeto de pastilhas combustíveis de dióxido de urânio (UO_2) dos reatores de água leve pressurizada (PWRs) consiste na determinação de um conjunto de parâmetros do combustível. Estes parâmetros dependem das condições de projeto do reator e são quantificados sob a forma de especificações técnicas de projeto para pastilhas UO_2 sinterizadas, como descritas, por exemplo, no documento ASTM C 776-79 /1/. O valor especificado para um parâmetro é determinado através da análise de seus efeitos nas propriedades básicas do UO_2 e, conseqüentemente, no comportamento do combustível sob irradiação. Estes efeitos são interligados e há necessidade de uma análise conjunta de efeitos para a sua quantificação. Esta análise é desenvolvida neste trabalho com o código de desempenho do combustível FRAPCON-1 /2/. Para isto é discutido como os parâmetros do combustível são especificados, a partir do estudo de seus efeitos nas propriedades básicas e no comportamento das pastilhas UO_2 sob irradiação. Três grupos de parâmetros são analisados: 1) conteúdo de urânio e impurezas; 2) estequiometria; 3) densidade, morfologia de poros e microestrutura. Simultaneamente é verificado como estes efeitos são descritos no código FRAPCON-1. Esta verificação permite estabelecer a adequabilidade das correlações de propriedades materiais e modelos analíticos/numéricos do código, a qual é medida pela sua capacidade em simular o efeito de um determinado parâmetro no comportamento do combustível sob irradiação. Se as correlações e modelos são adequados, é possível estabelecer uma metodologia que permita especificar o conjunto de parâmetros das pastilhas UO_2 que melhor se adapta ao projeto do reator. A metodologia consiste em avaliar cada parâmetro do combustível, através de simulações com o código, e verificar o valor que melhor atenda as condições de projeto. Um exemplo é aplicado com o FRAPCON-1 para a especificação da densidade da pastilha UO_2 da vareta combustível da Central Angra-1.

II. ESPECIFICAÇÕES TÉCNICAS PARA PASTILHAS DE UO_2 E SEU TRATAMENTO PELO FRAPCON-1

II-1 CONTEÚDO DE URÂNIO E IMPUREZAS

O conteúdo de urânio especificado para o UO_2 é de no mínimo 87,7 % em peso a seco. Através desta exigência de pureza, é limitada no UO_2 (conteúdo de 88,15% em peso a seco) na estequiometria nominal de 2,00, uma quantidade de impurezas de 1500 $\mu\text{g/gU}$. O objetivo desta limitação é minimizar as impurezas que podem modificar as propriedades básicas do combustível ou contribuir para a formação de certos mecanismos de defeito na vareta combustível. Na prática, o valor especificado é substituído pela maioria dos fabricantes por um valor de até 88% em peso a seco /3/. Através desta exigência, é limitada no UO_2 uma quantidade de impurezas de 500 $\mu\text{g/gU}$. Em casos isolados o número de elementos especificados e a concentração máxima admissível pode variar de fabricante para fabricante, mas as impurezas consideradas essenciais são as apresentadas na Tabela 1 /1/. Destas impurezas, nove são consideradas interessantes do ponto de vista de operação do reator: hidrogênio (elementar e em todas as ligações), fluor, cloro, nitrogênio, ferro, níquel, carbono, cálcio e silício. Para os com

bustíveis com um conteúdo mínimo de urânio de 88% em peso a seco, é suficiente controlar estas nove impurezas para garantir um controle de qualidade de fabricação adequado. A razão para isto é que o UF_6 é um material puro e muitos dos elementos da Tabela 1 não conseguem penetrar no combustível durante a fabricação. A Tabela 2 apresenta as concentrações máximas admissíveis para os nove elementos neste caso. Os elementos são classificados em duas categorias: 1) elementos que contribuem para certos mecanismos de defeito na vareta combustível (D); 2) elementos que dão indicação dos processos utilizados na conversão do UF_6 (I). Estes últimos servem como indicadores do processo, pois a sua presença pode indicar o desgaste de certos materiais, que devem ser substituídos durante a conversão UF_6/UO_2 . Níquel e ferro são por exemplo elementos indicados para componentes de ligas a base de níquel e aços austeníticos. Cálcio é um indício de água deionizada e carbono de impurezas orgânicas. Dos elementos que contribuem para os mecanismos de defeito na vareta, a maior limitação é determinada para o hidrogênio. Ele conduz, independentemente do seu estado químico na pastilha para a hidretação do revestimento de zircaloy. Se a absorção de hidrogênio é acelerada localmente, formam-se nestas posições uma grande concentração de hidretos que levam a perfuração do tubo. A hidretação ocorre na posição do revestimento onde a camada de óxido passivadora é destruída, por exemplo, quando da interação mecânica entre combustível e revestimento (PCI). Os halogêneos fluor e cloro, assim como o produto de fissão iodo, contribuem para a despassivação da camada de óxido na parede interna do revestimento e são, por esta razão, limitados. O nitrogênio reduz a estabilidade à corrosão do zircaloy e pode contribuir para a hidretação local. Um aumento da taxa de defeitos por hidretos poderia ser imaginado através de inclusões de ferro e níquel na forma elementar, pois partículas desta espécie podem atuar em contato com o revestimento como concentradores de hidrogênio. Tais inclusões, nunca foram, porém, observadas.

O conteúdo de umidade na pastilha é limitado ao total de hidrogênio na Tabela 1. O conteúdo de gases não deve ultrapassar em condições normais de temperatura e pressão a quantidade de 0.05 litros/kg. Os principais gases são o hidrogênio e o nitrogênio. A liberação destes gases aumenta a pressão interna na vareta, diminuindo a condutância da folga entre pastilha e revestimento (especialmente em varetas sem hélio).

O código FRAPCON-1 não possui um modelo para verificar a hidretação do revestimento. Ele possui entre as suas correlações de propriedades materiais para o revestimento a subrotina CHUPTK, que calcula a quantidade de hidrogênio absorvida no zircaloy. Esta subrotina não é utilizada nos modelos de cálculo do FRAPCON-1, sendo assim, a hidretação da vareta não é coberta. Os halogêneos fluor e cloro e os seus efeitos na despassivação da camada de óxido não são previstos, uma vez que a oxidação interna do revestimento não é considerada no código.

A quantidade de hidrogênio e nitrogênio na pastilha é fornecida como dado de entrada do código FRAPCON-1. Esses gases são incorporados à mistura de gases existentes nos volumes livres da vareta e influenciam a condutância da folga entre pastilha e revestimento e a pressão interna na vareta.

II.2 ESTEQUIOMETRIA

A relação oxigênio/urânio (O/U) das pastilhas UO_2 é especificada na faixa entre 2,00 e 2,02. Esta exigência tem como objetivo garantir as propriedades básicas do combustível e minimizar a oxidação interna do revestimento. As propriedades do UO_2 influenciadas pela relação O/U são: condutividade térmica, calor específico, resistência mecânica, fluência, módulo de elasticidade e mobilidade de gases de fissão. A condutividade térmica do $UO_{2,02}$ cai para 95% daquela do urânio estequiométrico. Já para o $UO_{2,06}$, ela cai para aproximadamente 75% /4/. Pastilhas estequiométricas possuem pequena ou nenhuma plasticidade a temperaturas de 1000 C. Pastilhas de $UO_{2,06}$ e $UO_{2,16}$ podem ser deformadas plasticamente a temperaturas de aproximadamente 800 C /5/. A presença de oxigênio reduz o módulo de elasticidade do material. Um aumento na razão estequiométrica aumenta a taxa de fluência do material e a constante de difusão dos gases nobres na pastilha /2/.

A relação O/U das pastilhas de UO_2 é fornecida como dado de entrada do código FRAPCON-1. As propriedades materiais do UO_2 influenciadas pela relação estequiométrica no código são calor específico, módulo de elasticidade, fluência e pressão de sinterização. O código não leva em consideração a influência da estequiometria em algumas das propriedades descritas anteriormente. Como a relação O/U é limitada na fabricação entre 2,00 e 2,02, esta influência é mínima e não altera de maneira significativa o comportamento do combustível sob irradiação. A influência da estequiometria na oxidação interna do revestimento não é descrita, já que este fenômeno não é tratado no código.

II.3 DENSIDADE, MORFOLOGIA DE POROS E MICROESTRUTURA

Um grupo de propriedades básicas do combustível UO_2 , entre elas, a condutividade térmica, o módulo de elasticidade, a dureza e a fluência são dependentes de sua densidade e estrutura de poros. A densidade e a estrutura de poros na pastilha são parâmetros que possibilitam alcançar certa estabilidade dimensional do combustível com relação aos efeitos do inchamento e da densificação sob irradiação. Uma densidade a mais alta possível permite uma maior concentração do elemento físsil, maior condutividade térmica e uma menor liberação de produtos de fissão. Entretanto, uma porosidade mínima é necessária para compensar o inchamento da matriz até a queima exigida. A estrutura de poros é caracterizada por poros abertos e fechados, forma, arranjo e distribuição dos tamanhos dos poros. A fração de poros abertos exerce influência na liberação de gases de fissão, embora não seja uma grandeza crítica para o comportamento do combustível. A quantidade de porosidade aberta está diretamente relacionada com o processo de fabricação do pó de UO_2 e com a densidade desejada da pastilha sinterizada. Uma pastilha sinterizada a 94% da densidade teórica, cujo pó tenha sido produzido pelo processo AUC, apresentará aproximadamente 4% de porosidade aberta, que é a quantidade máxima especificada para pastilhas UO_2 . Atualmente, quantidades menores de poros abertos são obtidas independente da densidade final desejada da pastilha. Para isto, são utilizados formadores de poros, como apresentado na Figura 1 /3/. A forma e o arranjo, as

sim como a distribuição dos tamanhos dos poros, dependem dos procedimentos de fabricação da pastilha UO_2 . Uma distribuição de tamanho de poros típica para pastilhas UO_2 é aquela obtida da conversão AUC (Fig. 2). Esta figura apresenta uma distribuição de tamanho de poros com estrutura homogênea, que segue uma distribuição normal antes e após a irradiação. Os tamanhos dos poros estão distribuídos na faixa entre 1 e $10\mu m$ e sofre pouca variação durante a irradiação. Pastilhas com grande população de poros inferiores a $1\mu m$ são menos instáveis sob irradiação, pois levam a uma maior densificação do combustível. Uma distribuição de tamanho de poros na faixa entre 1 e $10\mu m$, leva a uma compensação satisfatória entre o inchamento e a densificação, garantindo uma boa estabilidade dimensional da pastilha sob irradiação.

Um tamanho de grão muito pequeno ou muito grande introduz efeitos negativos durante a operação do reator. Um tamanho de grão muito pequeno leva durante uma rampa de potência a um rápido crescimento do grão. Isto conduz à maior liberação de produtos de fissão e favorece a componente química do mecanismo de defeito (iodo) na PCI. A taxa de fluência para tamanhos de grãos médios de $50\mu m$, em regiões de baixa tensão, é cerca de cem vezes menor que para grãos médios de $5\mu m$. Pastilhas combustíveis com tamanho médio de grãos grandes são muito menos plásticas, o que não é desejável durante a PCI.

Normalmente, são especificados tamanhos de grãos médio entre 3 e $30\mu m$. Uma boa estrutura de grãos significa uma estrutura de grãos homogênea sem espaços vazios, rachaduras e inclusões.

A densidade da pastilha UO_2 é bem correlacionada no código FRAPCON-1. Variações na densidade da pastilha levam a modificações nas seguintes propriedades materiais do combustível UO_2 no código: condutividade térmica, módulo de elasticidade, fluência, densificação, pressão de sinterização, reestruturação e liberação de fases de fissão /6/. A estrutura de poros na pastilha não é correlacionada no código e não é possível estabelecer comparações para distribuição de tamanho, formas e arranjo de poros.

A influência do tamanho de grão é bem correlacionada no FRAPCON-1. Os efeitos acima são descritos nas propriedades materiais de fluência, liberação de gases de fissão, e reestruturação do combustível UO_2 /6/.

II. 4 PERSPECTIVAS DO FRAPCON-1

A utilização do código FRAPCON-1 para especificação do conjunto de parâmetros discutidos é limitada. Alguns fenômenos no combustível sob irradiação não são tratados pelo código. A oxidação interna e a hidretação do revestimento não são cobertas e não é possível verificar a influência da concentração de impurezas e do desvio estequiométrico nestes fenômenos. Durante a fabricação das pastilhas UO_2 , deve ser levado em conta as limitações de impurezas e a razão estequiométrica especificada anteriormente, garantindo que os fenômenos acima não impedirão um desempenho seguro do combustível. A determinação da estrutura, forma, arranjo e distribuição da porosidade na pastilha não é possível através de simulações com o código. Estes parâmetros não fazem parte dos argumentos do conjunto de correlações de propriedades materiais do UO_2 do código FRAPCON-1.

Apesar destas limitações, o código FRAPCON-1 pode ser utilizado na especificação de um conjunto de parâmetros significativos para o combustível UO_2 de

PWRs. Entre estes parâmetros incluem-se a densidade da pastilha, a razão estequiométrica e o tamanho de grão apropriado. Além disso, pode ser verificada a influência dos gases das pastilhas no comportamento da vareta combustível sob irradiação.

III. ESPECIFICAÇÃO DE PARÂMETROS DO COMBUSTÍVEL COM O CÓDIGO FRAPCON-1

Simulações com o código FRAPCON-1 permitem estabelecer uma metodologia para especificação de um conjunto de parâmetros de projeto de pastilhas combustíveis UO_2 de PWRs. Na metodologia, os parâmetros do combustível são fornecidos como dados de entrada do código, que através de suas correlações de propriedades materiais e modelos analíticos/numéricos simula os efeitos dos diversos parâmetros no comportamento do combustível sob irradiação. Uma análise dos resultados das simulações permite determinar o valor do parâmetro que melhor se adapte às condições de projeto do reator. Um exemplo desta metodologia é aplicada com o código FRAPCON-1 para especificação da densidade da pastilha UO_2 da vareta combustível de Angra-1. No caso é desenvolvida uma parametrização para valores de densidade entre 92 e 95% da densidade teórica do UO_2 . Os dados de entrada para cada simulação compreendem a geometria da vareta combustível, as condições termo-hidráulicas e o histórico de potência do reator (Figura 3). Dos resultados é possível especificar a densidade apropriada para o combustível em questão. As figuras 4 e 5 apresentam os resultados das simulações para a temperatura central do combustível e a pressão interna na vareta. Da figura 4 nota-se que, quando se inicia a subida de potência no reator, a temperatura central na pastilha assume diferentes valores para cada caso simulado, devido a condutividade térmica do material. A condutividade térmica é diretamente proporcional a densidade inicial da pastilha e aumenta com o aumento desta última. Maiores temperaturas são atingidas em combustíveis com menores densidades. Com a queima, o combustível densifica e a folga pastilha-revestimento é tanto maior quanto menor a densidade inicial. A temperatura central aumenta em todos os casos e a variação da temperatura é tanto maior quanto menor a densidade. Com a queima prolongada, o efeito do inchamento do combustível leva a um aumento do seu diâmetro, aumentando a condutância da folga pastilha-revestimento, e a temperatura diminui em todos os casos. A liberação de gases da pastilha é proporcional à densidade inicial e à temperatura atingida na pastilha. Maiores liberações e maiores pressões são obtidas em varetas com pastilhas de menores densidades (Figura 5).

A densidade da pastilha combustível UO_2 da vareta combustível de Angra-1 é de 95%. Os resultados acima mostram que esta escolha é adequada, desde que, a esta densidade, são obtidas temperaturas e pressões internas menores na vareta.

A metodologia aplicada pode ser estendida aos parâmetros mencionados anteriormente e a outros não mencionados, mas que são importantes quando da especificação da pastilha UO_2 , como: rugosidade do combustível, temperaturas de sinterização, concentração de água e nitrogênio, raio e profundidade da concavidade. Ela não está restrita ao código FRAPCON-1, podendo ser aplicada com qualquer código de desempenho do combustível, desde que suas correlações de propriedades materiais e modelos analíticos/numéricos sejam capazes de simular os efeitos em conjunto dos parâmetros do combustível em questão.

IV. CONCLUSÕES

O código do desempenho do combustível FRAPCON-1 pode ser aplicado com certas limitações na especificação de um conjunto de parâmetros de projeto de pastilhas combustíveis UO_2 de PWRs. Alguns fenômenos no combustível não são tratados pelo código, impossibilitando a determinação de certos parâmetros. Do grupo de parâmetros analisados neste trabalho, os seguintes podem ser especificados: densidade, estequiometria e tamanho de grão. A metodologia pode ser aplicada a outros parâmetros de projeto de pastilhas UO_2 de PWRs e estendida a qualquer código de desempenho do combustível, desde que suas correlações de propriedades materiais e modelos analíticos/numéricos sejam adequadas para esta aplicação.

V. BIBLIOGRAFIA

- /1/ Standard Specification for Sintered Uranium Dioxide Pellets-ASTM C 776-79
- /2/ F. RNA, G.A.; BOHN, M.P.; COLEMAN, D.R. - FRAPCON-1: A Computer Program for Calculating the Thermal Behavior of an Oxide Fuel Rod - Idaho National Engineering Laboratory, CDAP -TR-78-032-R1, Nov. 78.
- /3/ ASSMANN, H.; STEHLE, H. - Anforderungen an LWR Brennstoff aus der Sicht des Betriebsverhaltens - Journal of Nuclear Materials 81 (1979) 19-30.
- /4/ BELLE, J. - Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications - Naval Reactors, Division of Reactors Development, United States Atomic Energy Commission.
- /5/ SCOTT, R.; HALL, A.R.; WILLIAMS, J. - The Plastic Deformation of Uranium Oxides Above 800 C - J. Nuclear Materials 1 (1959) 39-48.
- /6/ MACDONALD, P.E. et al - MATPRO: A Handbook of Materials Properties For Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior - ANCR -1263, NRC, Feb. 76.

VI. FIGURAS

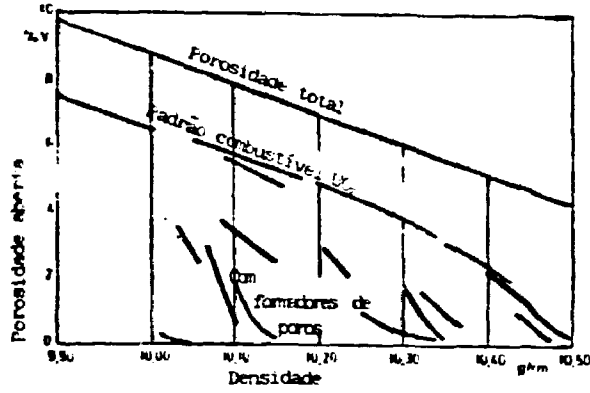


FIG. 1: Porosidade aberta versus densidade da pastilha /3/.

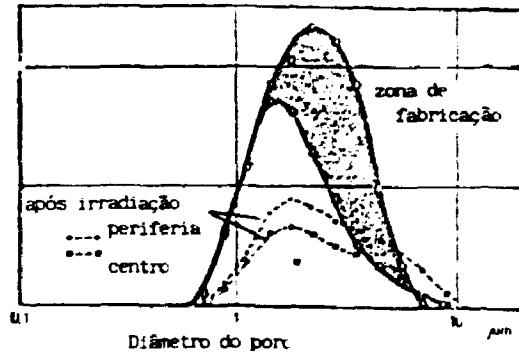


FIG. 2: Distribuição de tamanho de poros antes e após a irradiação no processo da conversão AUC/3/.

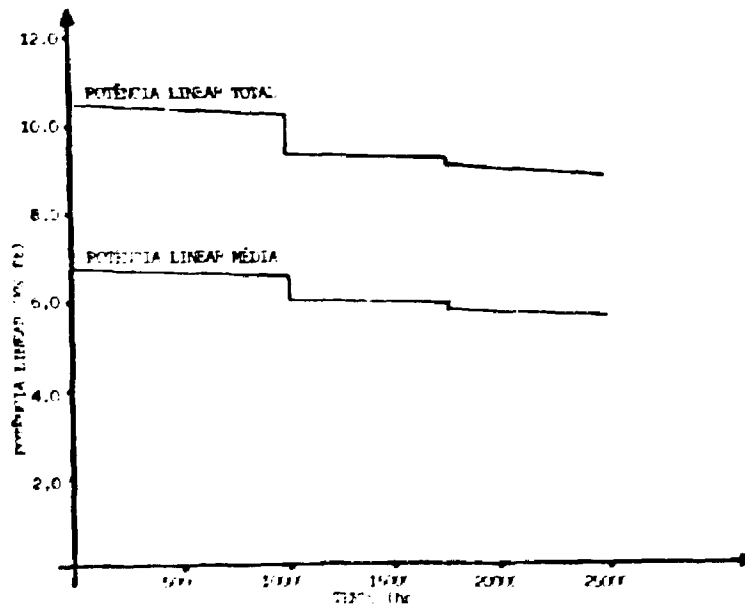


FIG. 3: Histórico de potência de Angra-1.

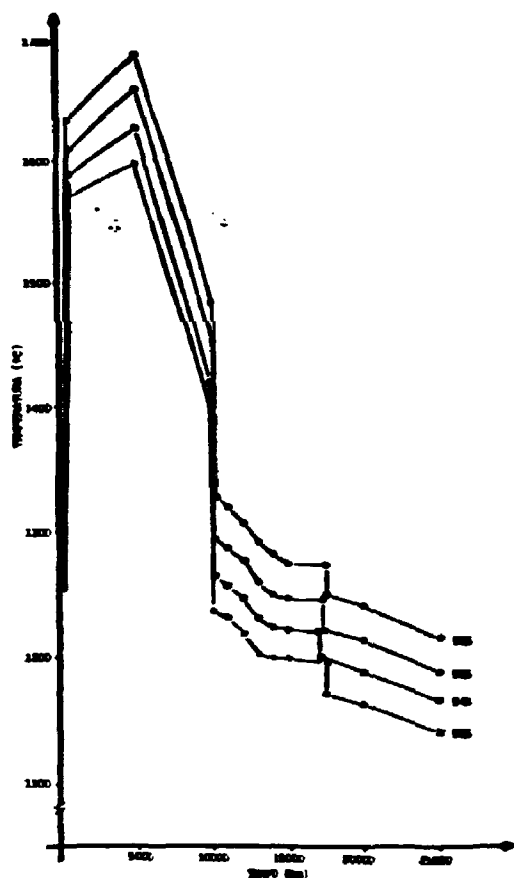


FIG. 4: Temperatura central no combustível versus tempo de irradiação.

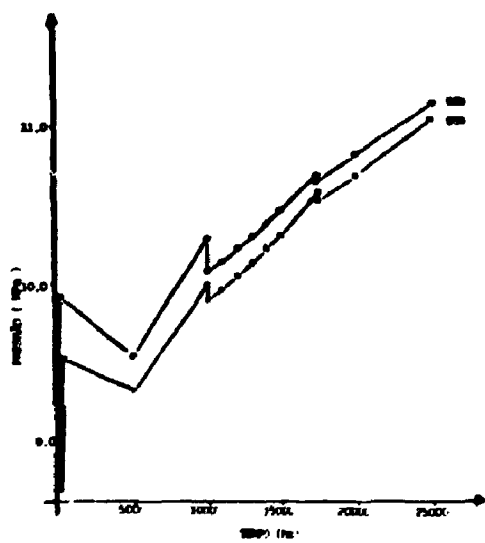


FIG. 5: Pressão interna na vareta versus tempo de irradiação.

VII. TABELAS

TABELA 1: IMPUREZAS ADMISSÍVEIS SEGUNDO ASTM- C 776-79/1/

Elemento	Concentração Máxima Admissível ($\mu\text{g/g}$ Combustível)
Alumínio	250
Carbono	100
Cálcio + Magnésio	200
Cloro	25
Cromo	250
Cobalto	100
Fluor	15
Hidrogênio (total)	2
Ferro	500
Níquel	250
Nitrogênio	75
Silício	250
Tório	10

TABELA 2: ESPECIFICAÇÃO DE IMPUREZAS NAS PASTILHAS UO₂ DE PÓS /3/

Elemento	Concentração Máxima Admissível $\mu\text{g/g}$ Urânio	Base para a Especificação	
		D	I
Cloro	15	x	
Fluor	10	x	
Nitrogênio	30	(x)	
Carbono	100		x
Hidrogênio	2	x	
Cálcio	100		x
Ferro	100	(x)	x
Níquel	50	(x)	x
Silício	100		x

D= contribui para os mecanismos de defeito
I= elementos indicadores.