

DESEMPENHO SOB IRRADIAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS DO TIPO U-MO

Antonio Teixeira e Silva, Cirila Tacconi de Almeida, Pedro Ernesto Umbehaun, Mitsuo Yamaguchi, José Eduardo Rosa da Silva e Georgi Lucki

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN-SP)
Av. Professor Lineu Prestes 2242
05508-000 São Paulo, SP
teixeira@ipen.br

RESUMO

Os combustíveis a dispersão do tipo U-Mo-Al, propostos para utilização em Reatores de Pesquisa e Teste de Materiais (“*Material Test Reactors*”-MTR), são estudados em termos de seu comportamento sob irradiação. Os aspectos do comportamento sob irradiação são aliados a aspectos neutrônicos e termo-hidráulicos para propor um novo núcleo para o Reator IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP. Núcleos com elementos combustíveis do tipo U-10Mo-Al com densidades de urânio entre 3 e 8 gU/cm³ foram analisados com os programas computacionais CITATION e MTRCR-IEA-R1. Os núcleos com elementos combustíveis com densidades de urânio variando entre 3 e 5 gU/cm³ mostraram-se adequados para utilização no Reator IEA-R1 e devem apresentar um comportamento estável sob irradiação, mesmo a altas queimas.

1. INTRODUÇÃO

O reator IEA-R1 do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN-SP) é um reator de pesquisa do tipo piscina aberta, tendo como refrigerante e moderador a água leve desmineralizada e berílio e grafite como refletores. Em 1997, o reator recebeu a licença de operação para 5 MW. Nos últimos anos, o IPEN desenvolveu a fabricação de elementos combustíveis a dispersão de U₃O₈ em uma matriz de alumínio (Al) e U₃Si₂ em Al [1]. O combustível U₃O₈-Al está qualificado para operação no reator IEA-R1 até uma densidade de urânio de 2,3 gU/cm³ e o U₃Si₂-Al para uma densidade de urânio de até 3,0 gU/cm³. O núcleo do reator IEA-R1 é hoje composto dos combustíveis acima, com baixo enriquecimento em U-235 (19,90% de U-235). Estes combustíveis seguem rigorosas especificações técnicas, que foram definidas após cuidadosas revisões bibliográficas abrangendo a experiência mundial no projeto, fabricação e análise do comportamento sob irradiação de combustíveis a dispersão. Análogo ao realizado com os combustíveis de U₃O₈-Al e U₃Si₂-Al, desenvolvidos e qualificados no IPEN, o objetivo deste trabalho [2] foi desenvolver uma extensa revisão bibliográfica do comportamento sob irradiação dos combustíveis do tipo liga de U-Mo dispersa numa matriz de alumínio (Al) e, a partir deste estudo, estabelecer parâmetros que pudessem auxiliar na especificação técnica deste combustível, para uma posterior utilização no reator IEA-R1. Várias configurações de núcleos de U-Mo-Al em início de vida foram analisadas para o reator IEA-R1, com densidades de urânio variáveis entre 3,0 e 8,0 gU/cm³. Devido a mais alta densidade de urânio por placa combustível da liga U-Mo, foi possível reduzir o número de elementos combustíveis no núcleo do reator, gerando a necessidade de se revisar os seus projetos neutrônico e termo-hidráulico. O cálculo neutrônico dos núcleos analisados foi desenvolvido com o programa computacional CITATION [3]. As análises

termo-hidráulicas foram desenvolvidas com o programa computacional MTRCR-IEAR1 [4]. Este programa permite calcular as variáveis térmicas e hidráulicas do núcleo e compará-las a limites e critérios de projetos estabelecidos para o combustível. As análises foram feitas para a potência de operação do reator de 5 MW.

2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

Desde meados dos anos oitenta, países detentores da tecnologia nuclear têm concentrado esforços no estudo da dispersão de U-Mo-Al. Esta dispersão pode atingir densidades de urânio de até 8 gU/cm^3 (vide Fig. 1) e vem sendo estudada como uma possível candidata para substituir as dispersões de $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ e $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ nos reatores de pesquisa de alta potência e com alto fluxo neutrônico. O valor de 8 gU/cm^3 é um valor que representa cerca de 50% em volume da fase dispersa U-Mo na matriz de alumínio (Al), valor este normalmente considerado como limitante para garantir a integridade mecânica das placas combustíveis.

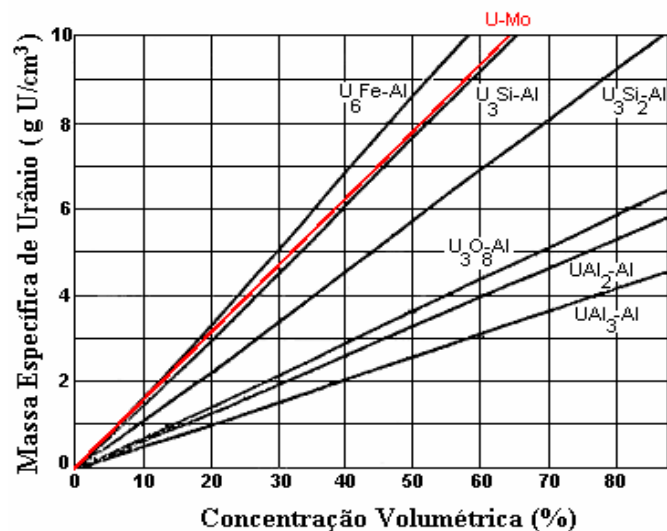


Figura 1 - Densidade do Urânio em função da concentração em volume da fase dispersa na matriz de alumínio (para densidades teóricas da fase e da matriz).

Testes de irradiação de ligas de urânio mostraram resultados promissores em termos do comportamento sob irradiação quando estas ligas são mantidas na sua estrutura cristalina cúbica β -U, ou seja, com arranjos cúbicos de faces centradas. Abaixo de 560°C , a estrutura estável do U-Mo é uma mistura de α -U e fase γ' (U_2Mo). Entretanto, pelo resfriamento rápido da fase gama, a liga de U-Mo retém facilmente esta fase em uma fase metaestável. Como esta fase gama metaestável pode ser mantida durante a fabricação do elemento combustível e, como sob irradiação, ela apresenta boa compatibilidade com a matriz de alumínio, a liga U-Mo tem sido mantida como a principal candidata como combustível a dispersão de reatores de pesquisa. Vários testes de irradiação têm sido conduzidos ao redor do mundo para estas ligas, estando entre os mais importantes os conduzidos dentro do programa RERTR (“*Reduced Enrichment Research and Test Reactor*”). Neste programa, testes de irradiação foram desenvolvidos para quatorze diferentes composições de combustíveis U-Mo-Al em cinco experimentos separados no Reator de Testes Avançados do “*Idaho National Engineering and Environmental Laboratory*” [5]. Nos experimentos

RERTR-1 e RERTR-2, as placas combustíveis testadas foram fabricadas com partículas combustíveis com carregamentos de 25 a 30% em volume no cerne combustível (“*meat*”), dando densidades de urânio médias de 4 gU/cm^3 . O foco particular destes experimentos foi observar o fenômeno da interação matriz-partícula combustível e o inchamento da partícula sob irradiação. A potência na placa combustível (e as temperaturas, conseqüentemente) foi mantida baixa. Exames pós-irradiação (“*Post Irradiation Examination*” – *PIE*) das ligas com até 4% em peso de Mo (U-4Mo) revelaram baixo desempenho. As placas combustíveis com essas ligas exibiram aumentos na espessura causados por uma intensa reação matriz-partícula e altas taxas de inchamento das partículas. As ligas fabricadas com pelo menos 6% em peso de Mo (U-6Mo), entretanto, comportaram-se muito bem até queimas de 70%. O experimento RERTR-3 foi projetado para testar placas combustíveis sob condições de irradiação consideradas agressivas para combustíveis de reatores de pesquisa (alta temperatura e alta densidade de fissão). Sessenta e quatro placas combustíveis miniaturas foram fabricadas e irradiadas a uma queima de 40% em U-235. Baseado nos resultados dos programas RERTR-1 e RERTR-2, o RERTR-3 focou principalmente nas ligas binárias com 6 a 10% em peso de Mo (U-6Mo/U-10Mo). Neste experimento, os combustíveis testados foram fabricados com carregamentos de partículas combustíveis com mais de 50% em volume no cerne combustível, dando densidades de urânio médias de até $8,5 \text{ gU/cm}^3$. “*PIE*” destas placas combustíveis mostraram um desempenho aceitável. O inchamento do combustível foi relativamente baixo, sem tendência à dissolução. Entretanto, a temperaturas elevadas, uma significativa interação matriz-combustível foi observada. A interação matriz-combustível foi tão intensa que nenhuma parte da matriz de Alumínio permaneceu na porção central do combustível em algumas placas. Independente disso, um desempenho aceitável das placas combustíveis foi atingido, mesmo nos casos onde toda a matriz de alumínio foi consumida. Os experimentos RERTR-4 e RERTR-5 foram projetados para testar placas combustíveis maiores sob condições não tão típicas em reatores de pesquisa. Cada experimento continha trinta e duas placas combustíveis irradiadas a níveis de queima de U-235 de 50 e 80%. Esses experimentos focaram nos combustíveis de ligas binárias U-Mo, com densidades variando entre 6 e 8 gU/cm^3 , com 6 a 10% em peso de Mo. Os resultados dos testes no experimento RERTR-4 indicaram que a interação que ocorre entre o combustível metálico U-Mo e a matriz de alumínio durante a irradiação é o único aspecto do comportamento do combustível que é significativamente afetado pela temperatura. As observações mais importantes no RERTR-4 foram: inchamento aparentemente atômico e estável das partículas combustíveis, com a presença de bolhas de gases de fissão pequenas, uniformemente distribuídas. A formação da fase de interação é significativa, consumindo praticamente toda a matriz de alumínio a temperaturas mais elevadas (150°C). A taxa de inchamento induzida por fissão deste composto é, entretanto, baixa e muito estável. A fase de interação ocupa um volume maior do que a dos seus constituintes (U-Mo e Al) e, então, contribui para o inchamento. A contribuição, entretanto, é limitada pela quantidade de alumínio disponível na matriz. O principal efeito da formação dos produtos da interação é a redução na condutividade térmica do cerne combustível. Quando a interação prossegue, uma nova fase de baixa condutividade é formada, com a correspondente depleção da matriz de Alumínio de alta condutividade. Isso leva a uma substancial degradação da condutividade do cerne combustível com o tempo e a temperatura central do combustível aumenta com a queima mesmo se a potência decresce. A dispersão U-10Mo-Al tem sido a mais estudada e tem apresentado, em todos os testes realizados, excelente comportamento sob irradiação até altas queimas do combustível (80%) e com diferentes densidades de urânio (de 3 a 9 gU/cm^3). Sendo assim, esta dispersão foi escolhida para ser utilizada no núcleo do reator IEA-R1.

3. DEFINIÇÃO DE UM NÚCLEO DE U-Mo-Al PARA O REATOR IEA-R1

Para a definição de um novo núcleo para o reator IEA-R1, foram desenvolvidos cálculos neutrônicos para o combustível U-10Mo-Al com densidades variáveis entre 3 e 8 gU/cm³. O valor de 8 gU/cm³ foi escolhido, pois apresenta um valor próximo dos 50% em volume da fase dispersa U-Mo na matriz de alumínio, valor este considerado limitante para garantir a integridade mecânica da placa combustível. O valor de 3 gU/cm³ foi escolhido como valor mínimo, pois é a densidade máxima qualificada para o combustível U₃Si₂-Al fabricado no IPEN. Densidades inferiores à 3gU/cm³ não seriam de interesse. Atualmente, o núcleo do reator IEA-R1 apresenta uma configuração típica que contém 24 elementos combustíveis, sendo 20 padrão e 4 elementos de controle, e 1 elemento de irradiação de berílio na posição central do núcleo. No cálculo neutrônico, foi utilizado o programa CITATION para os cálculos tridimensionais do núcleo e de queima do combustível. As curvas de densidades de potência radial e axial fornecidas pelo CITATION foram utilizadas como dados de entrada para as análises termo-hidráulicas dos núcleos. Núcleos com densidades variando entre 6 e 8 gU/cm³ e com formato 3x3, sendo 4 elementos combustíveis padrão, 4 elementos de controle e 1 elemento de irradiação de berílio, mostraram-se extremamente reativos e tecnicamente inadequados para o reator IEA-R1 a uma potência de 5 MW. Optou-se, então, por continuar o estudo para núcleos com densidades variando entre 3 e 5 gU/cm³ e com 8 elementos combustíveis padrão, 4 elementos de controle e 1 elemento de irradiação de berílio. Os cálculos neutrônicos mostraram, entretanto, que para as densidades de 4 e 5 gU/cm³, os núcleos calculados para início de vida ainda apresentavam um elevado excesso de reatividade (1,1367 e 1,1604, respectivamente). Sendo assim, para estas densidades, um outro núcleo foi definido contendo apenas 10 elementos combustíveis, sendo 6 elementos combustíveis padrão, 4 elementos de controle e 1 elemento de irradiação de berílio na posição central.

No ano de 2000, foi finalizado no IPEN com o pacote comercial “*Engineering Equation Solver*” (EES) um novo modelo termo-hidráulico, o modelo MTCR-IEAR1 [3]. Com este modelo computacional tem sido possível realizar todas as análises térmicas e hidráulicas de núcleos de reatores de pesquisa com combustível tipo placa em regime estacionário. As seguintes variáveis termo-hidráulicas são calculadas ao longo do canal: temperatura no centro do cerne combustível (T_c), temperatura no revestimento do combustível (T_r), temperatura do fluido refrigerante (T_f), temperatura para a qual se tem o início da ebulição nucleada (T_{onb}), fluxo de calor no qual se inicia a ebulição nucleada, fluxo de calor crítico (“*Departure of Nucleate Boiling*”-DNB), fluxo de calor no qual se inicia a instabilidade de fluxo e as respectivas margens termo-hidráulicas (MDNBR e FIR). Estas margens são calculadas, respectivamente, como a relação entre o fluxo de calor crítico e o fluxo para instabilidade de fluxo e o fluxo de calor local na placa combustível. Além disso, o programa trata as incertezas envolvidas no cálculo termo-hidráulico, tais como as tolerâncias de fabricação do combustível, erros nos cálculos da distribuição da densidade de potência e da distribuição de vazão no núcleo, desvios do controle da potência do reator e na medida de vazão, e margens de segurança para os coeficientes de transferência de calor. As variáveis termo-hidráulicas calculadas são então comparadas aos limites de projeto estabelecidos para combustíveis MTR, ou seja: a) temperatura no revestimento do combustível < 95 °C; 2) margem de segurança para o início da ebulição nucleada superior a 1,3, ou seja, a temperatura de “ONB” deve ser maior que a temperatura do fluido refrigerante; 3) margem de segurança para o início da instabilidade de fluxo deve ser superior a 2,0 e 4) margem de segurança para o fluxo de calor crítico deve ser superior a 2,0.

Conforme descrito no ítem 2, devido às interações entre o combustível e a matriz de alumínio, ocorre a degradação da condutividade térmica do cerne combustível ao longo da irradiação. Para o estudo do comportamento térmico do combustível de U-Mo-Al com o programa MTRCR-IEAR1, houve a necessidade de fornecer os valores da condutividade térmica do cerne combustível como dado de entrada. Nos cálculos, foram utilizados dois valores para a condutividade térmica no cerne de U-Mo da dispersão: 70 W/m°C e 13 W/m°C. O valor de 70 W/m°C foi utilizado pois representa o valor da condutividade térmica da dispersão com uma concentração da fase dispersa entre a 45-50% em volume [6]. Para dispersões com menores concentrações em volume, o valor da condutividade térmica seria maior, levando a menores temperaturas no combustível. Quando a matriz de alumínio é totalmente consumida, com um cerne com 100% de produtos da reação matriz-partícula, a condutividade térmica atinge valores próximos de 13 W/m°C [6]. O valor de 70 W/m°C seria mais representativo para núcleos onde a temperatura no combustível apresentasse valores abaixo dos 100 °C, ou para um núcleo em início de vida. O valor de 13 W/m°C representaria um valor de condutividade térmica para núcleos com temperaturas mais elevadas, onde as reações combustível-matriz de alumínio ocorrem de forma acelerada. Nas análises termo-hidráulicas foi utilizado o programa MTRCR-IEAR1 com as curvas de distribuição de potência radiais e axiais fornecidas pelo programa computacional CITATION. Os dados de entrada para as simulações termo-hidráulicas podem ser obtidos da referência [2]. Todas as dimensões geométricas do combustível U-Mo-Al utilizadas nas simulações foram as mesmas do combustível U₃Si₂-Al. Para o núcleo de 12 elementos combustíveis, com densidade de 3 gU/cm³, foi simulado primeiramente (simulação 1) o valor de condutividade térmica de 13 W/m°C, sem tratamento das incertezas envolvidas (condição nominal) e com as incertezas envolvidas (simulação 2). Em seguida, o mesmo núcleo foi simulado para um valor de condutividade térmica de 70 W/m°C, na condição nominal (simulação 3) e com as incertezas envolvidas (simulação 4). Os resultados são apresentados, respectivamente, na Tab.1. A mesma seqüência acima foi utilizada para a simulações dos núcleos com 10 elementos combustíveis de 4 gU/cm³ e 5 gU/cm³ (simulações de 5 a 8 e de 9 a 12, respectivamente, Tab.1).

Tabela 1: Simulações com o programa computacional MTRCR-IEA-R1 para núcleos com 12 e 10 elementos combustíveis, densidades de 3, 4 e 5 gU/cm³ e condutividade térmica de 13 W/m°C e de 70 W/m°C.

Simulação	T _f (°C)	T _r (°C)	T _c (°C)	T _{onb} (°C)	MDNBR	Instabilidade de fluxo (FIR)
01	47,73	69,05	93,37	120,5	7,73	24,06
02	52,95	86,58	127,3	122,3	4,26	14,37
03	47,73	69,05	74,86	120,5	7,73	24,06
04	52,95	86,58	96,36	122,3	4,26	14,37
05	47,79	69,57	98,81	121,1	7,13	29,54
06	53,05	87,43	136,3	123	3,92	17,64
07	47,79	69,57	76,6	121,1	7,13	29,54
08	53,05	87,43	99,19	123	3,92	17,64
09	47,86	73,68	104,3	121,3	6,41	29,53
10	53,16	93,82	145	123,2	3,63	17,64
11	47,86	73,68	81,04	121,3	6,41	29,53
12	53,16	93,82	106,1	123,2	3,52	17,64

4. DISCUSSÃO DOS RESULTADOS E CONCLUSÃO

Os resultados das simulações descritas na Tab. 1 mostram que nenhum limite de projeto é ultrapassado para os núcleos analisados. As temperaturas no revestimento do combustível estão abaixo do valor de 95°C, atingindo para o núcleo de 5 gU/cm³, o maior valor (93,82°C). Isto era esperado devido à maior densidade de urânio na placa combustível, que levou a um fator de pico F_q (2,1850) mais elevado no cálculo da distribuição axial de potência no canal mais quente do elemento combustível, quando comparado com os fatores de picos F_q de 2,076 e 2,118 das configurações com 3 e 4 gU/cm³. Nota-se que as temperaturas em todas as simulações sem o tratamento das incertezas envolvidas estão bem abaixo dos resultados obtidos com o tratamento das incertezas, bastante conservativos. Da Tab. 1 pode também ser visto que os valores da temperatura no fluido para todas as simulações estão bem abaixo da temperatura de ONB, indicando escoamento monofásico nos núcleos estudados. As margens para fluxo de calor crítico e instabilidade de fluxo estão também bem acima do valor 2, admitido como limite de projeto. A máxima temperatura calculada no cerne do combustível foi de 145 °C. A esta temperatura a reação matriz-combustível seria completa, atingindo o valor da condutividade térmica de 13 W/cm°C. A fase de interação U-Mo-Al consumiria praticamente toda a matriz de alumínio. Entretanto, como visto no item 2, para as dispersões de U-10Mo-Al, mesmo à altas queimas, o comportamento seria estável e com indicação da manutenção da fase metaestável cúbica β -U. Analisando-se os resultados acima, optou-se por propor como uma primeira aproximação, a fabricação no IPEN de uma mini-placa de dispersão U-10Mo-Al com densidade de 5 gU/cm³ para ser testada futuramente no reator IEA-R1. Com esta densidade, o número de elementos combustíveis seria reduzido, acarretando em vantagens econômicas e na diminuição do número de elementos combustíveis queimados para estocagem.

REFERÊNCIAS

1. A. V. Simões, Desempenho Sob Irradiação de Combustíveis a Dispersão de MTR. 1993. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.
2. C. T. Almeida, Desempenho Sob Irradiação de Elementos Combustíveis do Tipo U-Mo. 2005. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.
3. T. B. Fowler; D. R. Vondy; G.W. Cunningham, Nuclear Reactor Core Analysis Code: CITATION. Oak Ridge National Laboratory, 2 Jul 1971. (ORNL-TM-2496). Rev. 2.
4. P. E. Umbehaun, Metodologia para Análise Termo-hidráulica de Reatores de Pesquisa Tipo Piscina com Combustível Tipo Placa. 2000. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.
5. G. L. Hofman; M. K. Meyer, Progress in Irradiation Performance of Experimental Uranium–Molybdenum Dispersion Fuel. In: *The 24th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR)*, Nov. 3-8, 2002, San Carlos de Bariloche. *Proceedings...* Argentina, 2002.
6. S. L. Hayes; G. L. Hofman; M. K. Meyer; J. Rest; J. L. Snelgrove, Modeling of High Density U-Mo Dispersion Fuel Plate Performance. In: *The 24th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR)*, Nov. 3-8, 2002, San Carlos de Bariloche. *Proceedings...* Argentina, 2002.