

## PROCEDIMENTOS DE FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS A BASE DE DISPERSÕES COM ALTA CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO

J. A. B. de Souza, M. Durazzo  
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN/CNEN-SP  
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária – São Paulo – SP  
CEP: 05508-000 – jasouza@ipen.br

### RESUMO

*O IPEN desenvolveu e disponibilizou para produção rotineira a tecnologia de fabricação de elementos combustíveis tipo dispersão, para uso em reatores nucleares de pesquisas. Contudo, o combustível fabricado no IPEN está limitado à concentração de urânio de 3,0 gU/cm<sup>3</sup>, para dispersões a base de U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>-Al. O aumento da concentração de urânio nas placas combustíveis é interessante pela possibilidade de se aumentar a reatividade do núcleo do reator e a vida útil do combustível. É possível aumentar-se a concentração de urânio no combustível até o limite tecnológico de 4,8 gU/cm<sup>3</sup> para a dispersão U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>-Al, a qual está bem qualificada ao redor do mundo. Esse novo combustível deverá ser utilizado no novo Reator Multipropósito Brasileiro–RMB. Este trabalho tem por objetivo desenvolver o processo de fabricação do combustível com alta concentração de urânio, redefinindo-se os procedimentos de fabricação atualmente adotados no IPEN. Estão descritos os ajustes de processo que deverão ser realizados.*

Palavras-chave: combustível nuclear, dispersões, placas combustíveis, U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>-Al

### INTRODUÇÃO

A demanda brasileira por radiofármacos tem crescido continuamente através dos anos, num regime de aproximadamente 10% ao ano. O IPEN tem trabalhado continuamente para aumentar a produção de radioisótopos primários e atender a essa demanda crescente por radiofármacos. Isso inclui o aumento da potência do reator IEA-R1, de 2 para 5 MW, e do seu regime de utilização, de 64 para 120 horas semanais. Além disso, tendo em vista a avançada idade do reator, o qual atingiu mais de 50 anos de operação, um novo reator produtor de radioisótopos aparece como empreendimento prioritário e inadiável nas discussões de planejamento na área nuclear, o Reator Multipropósito Brasileiro – RMB.

Desde 1988 o IPEN tem fabricado o combustível para o seu reator de pesquisas tipo piscina aberta IEA-R1. O atual combustível produzido hoje no IPEN permite a incorporação de  $3 \text{ gU/cm}^3$ , usando a tecnologia do siliceto de urânio ( $\text{U}_3\text{Si}_2$ ). Essa concentração é suficiente para a operação do reator de pesquisas IEA-R1 operando até o nível de potência de 5 MW. Contudo, tal nível de concentração de urânio não é suficiente para o suprimento eficiente de reatores produtores de radioisótopos com maiores potências, e, portanto, maiores fluxos de nêutrons, como o Reator Multipropósito Brasileiro – RMB. Outra dificuldade inerente à baixa concentração de urânio no combustível é a geração de grandes quantidades de combustíveis exauridos pela irradiação, ditos queimados. Isso ocorre devido à baixa vida útil do combustível de baixa concentração de urânio, exigindo sua substituição freqüente.

Com base na experiência previamente adquirida pelo IPEN no desenvolvimento e fabricação do combustível tipo dispersão, este trabalho visa promover um ajuste nos atuais procedimentos de fabricação, permitindo a incorporação de maiores concentrações de urânio. Propõe-se aumentar a concentração de urânio para  $4,8 \text{ gU/cm}^3$  utilizando-se o  $\text{U}_3\text{Si}_2$ , e para  $3,2 \text{ gU/cm}^3$  utilizando-se o  $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ . Essas concentrações são as máximas possíveis de serem obtidas com o uso do  $\text{U}_3\text{Si}_2$  e do  $\text{U}_3\text{O}_8$  adotando-se a tecnologia de dispersões.

## MATERIAIS E MÉTODOS

Os elementos combustíveis utilizados pelo reator IEA-R1 são do tipo MTR (Materials Testing Reactor) e são formados pela montagem de um conjunto de placas combustíveis espaçadas entre si, permitindo a passagem de um fluxo de água que serve como refrigerante e moderador. As placas combustíveis consistem de um núcleo, contendo o material físsil, que é totalmente revestido com alumínio. Elas são fabricadas adotando-se a tradicional técnica de montagem núcleo, moldura e revestimentos e posterior laminação, técnica conhecida internacionalmente com o nome de “picture frame technique” <sup>(1,2)</sup>. Técnicas de metalurgia do pó são utilizadas na fabricação dos núcleos das placas combustíveis, denominados briquetes, que são compostos de cermets, ou seja, compósitos cerâmico-metálicos, utilizando pó de  $\text{U}_3\text{Si}_2$  ou  $\text{U}_3\text{O}_8$  enriquecido a 20% no isótopo  $^{235}\text{U}$  (material combustível nuclear), em conjunto com pó de alumínio (material estrutural da matriz do núcleo). As placas combustíveis são as peças mais importantes do elemento combustível tipo MTR, o

qual não passa de um conjunto de 18 placas combustíveis paralelas entre si, montadas rigidamente para formar o conjunto denominado elemento combustível, como ilustra a Fig. 1A.

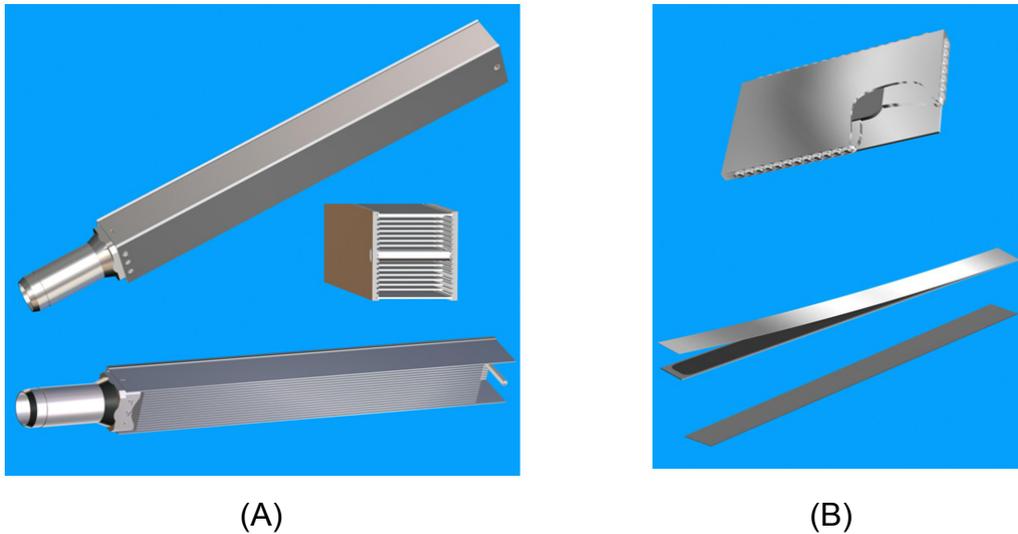


Figura 1 - Detalhes das placas combustíveis montadas no elemento combustível.

De modo geral, o processo de fabricação de elementos combustíveis tipo MTR, sejam do tipo siliceto de urânio ( $U_3Si_2$ ) ou óxido de urânio ( $U_3O_8$ ), apresenta duas etapas principais, a compactação dos briquetes, que serão os núcleos, e a laminação das placas combustíveis. Os briquetes são montados numa moldura com duas placas de revestimento formando um “sanduíche”, o qual é posteriormente laminado para a obtenção da placa combustível. A Fig. 1B ilustra o conjunto pronto para a laminação e a placa combustível final obtida. Maiores detalhes sobre os procedimentos básicos de fabricação de elementos combustíveis adotados no IPEN, assim como um histórico de desenvolvimento da tecnologia de fabricação desse tipo de combustível podem ser obtidos na literatura <sup>(3,4)</sup>.

Neste trabalho, as composições foram definidas com base na máxima densidade de urânio possível de ser incorporada na dispersão, definida internacionalmente como 45 % em volume da fase físsil, de  $4,8 \text{ gU/cm}^3$  no caso do  $U_3Si_2$  e de  $3,2 \text{ gU/cm}^3$  no caso de  $U_3O_8$ .

A metodologia aplicada foi, numa primeira etapa, produzir placas combustíveis com a máxima concentração de urânio possível adotando-se exatamente os mesmos procedimentos adotados atualmente pelo IPEN na fabricação rotineira de elementos combustíveis para o seu reator de pesquisas IEA-R1. Uma vez conhecidas e estudadas as dificuldades de fabricação desse novo tipo de

combustível, numa segunda etapa do trabalho serão efetuados os ajustes tecnológicos necessários nos procedimentos de fabricação para que se possa fabricar o combustível com alta concentração de urânio no IPEN. Neste trabalho estão apresentados os resultados obtidos na primeira etapa, onde as dificuldades na fabricação foram detectadas e estudadas, sendo identificadas as causas dos problemas e as ações corretivas necessárias.

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

Dos parâmetros importantes para a qualificação de uma placa combustível, verificou-se que o comprimento e a largura de todos os núcleos das placas combustíveis produzidas atenderam à especificação vigente <sup>(5)</sup>. Contudo, dificuldades emergiram com relação à qualidade da homogeneidade na distribuição de urânio no núcleo da placa combustível, qualidade do caldeamento entre o núcleo e o revestimento e espessuras do revestimento e núcleo. As especificações são: espessura do revestimento na zona central do núcleo = 0,33 a 0,46 mm e espessura do revestimento na zona de defeitos terminais = 0,25 a 0,46 mm.

Os resultados das medições da espessura do revestimento mostraram para as placas de  $U_3Si_2$ -Al valores da espessura do revestimento na zona central do núcleo com valor igual ao mínimo especificado, de 0,33 mm, o que ocasiona a rejeição de todo o lote de placas combustíveis fabricadas. A razão deste desvio está relacionada à microestrutura dos núcleos das placas combustíveis fabricadas. A especificação da granulometria do pó de  $U_3Si_2$  para o combustível a base da dispersão  $U_3Si_2$ -Al é entre 150 e 44  $\mu m$ , com um máximo de 20% em peso de finos menores do que 44  $\mu m$ . A especificação da granulometria do pó de  $U_3O_8$  para o combustível a base da dispersão  $U_3O_8$ -Al é entre 87 e 44  $\mu m$ , também com um máximo de 20% em peso de finos menores do que 44  $\mu m$ . Nota-se que nos núcleos  $U_3Si_2$ -Al existem partículas grandes de  $U_3Si_2$ -Al que penetram pelo revestimento, diminuindo a espessura, ou seja, a camada de alumínio que tem a função de isolar o núcleo da placa combustível. A Fig. 2 ilustra esse fenômeno.

Outro problema observado refere-se à segregação do composto de urânio na face inferior do briquete compactado, principalmente no caso da dispersão  $U_3O_8$ -Al. Observou-se que durante o carregamento do pó na cavidade da matriz, o material físsil, mais denso, tende a segregar no fundo da cavidade, causando um aumento

localizado na concentração de urânio, ultrapassando o valor máximo de 45 % em volume. Nesse caso, o alumínio deixa de atuar como matriz contínua na dispersão, prejudicando gravemente o caldeamento entre o núcleo e o revestimento. A Fig. 3 ilustra esse tipo de defeito.

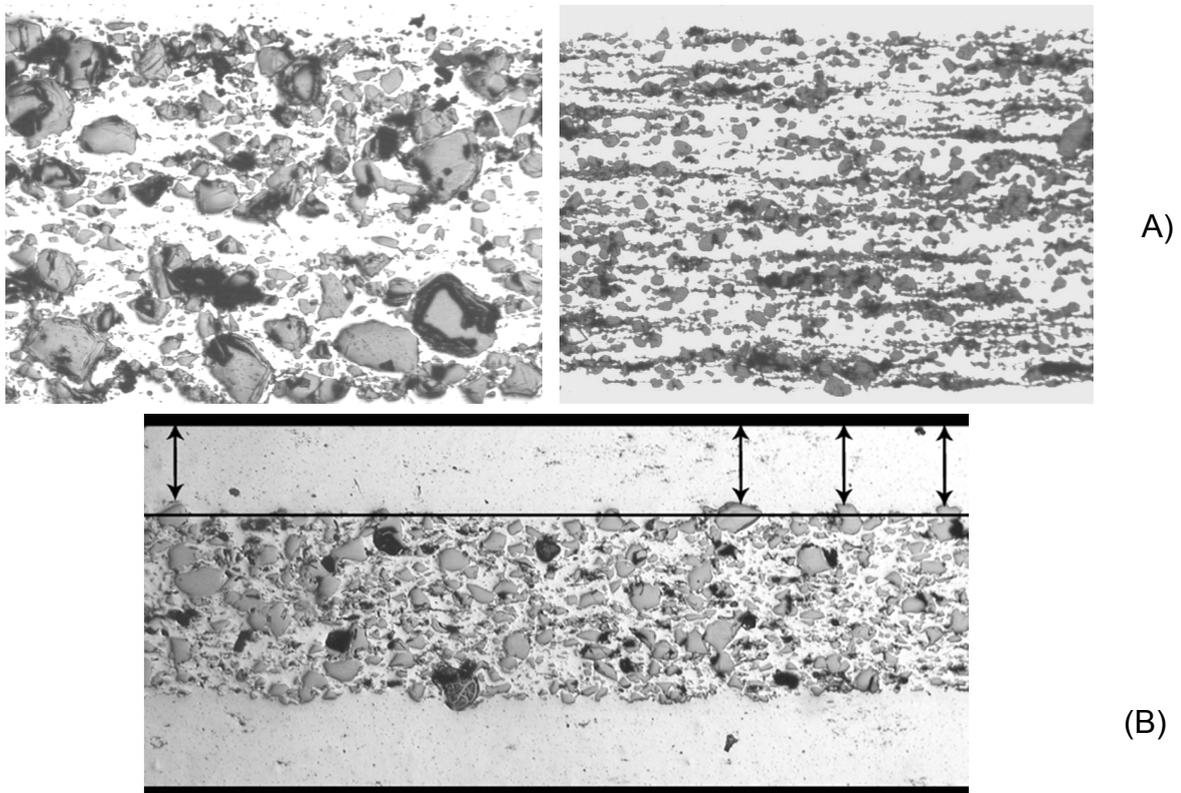


Figura 2 – Microestrutura do núcleo das placas combustíveis de alta concentração. (A) –  $U_3Si_2$ -Al (esquerda),  $U_3O_8$ -Al (direita). (B) – partículas de  $U_3Si_2$  penetrando o revestimento, diminuindo sua espessura efetiva.

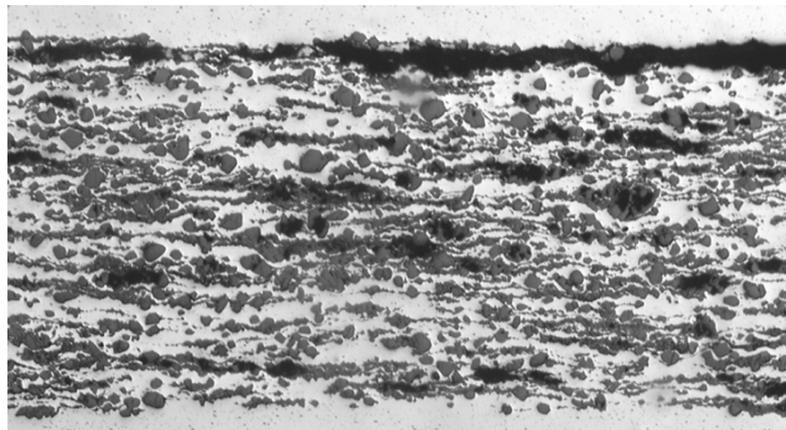


Figura 3 – Micrografia ilustrando falha de caldeamento entre núcleo e revestimento, causada pelo acúmulo de partículas de  $U_3O_8$  numa das faces do briquete  $U_3O_8$ -Al.

Finalmente, quando a fração volumétrica do composto físsil, seja  $U_3Si_2$  ou  $U_3O_8$ , é elevada ao seu máximo, surgem dificuldades com relação à homogeneidade da distribuição do urânio no núcleo da placa combustível. Essa homogeneidade é avaliada por meio de inspeção visual em radiografias, as quais são comparadas com radiografias padrão, que representam as aparências de uma homogeneidade mínima exigida e do nível de homogeneidade tradicionalmente obtida no histórico de fabricação.

A Fig. 4 apresenta radiografias de placas combustíveis com alta concentração de urânio, evidenciando insuficiente homogeneidade na distribuição de urânio. Observa-se que em ambos os casos,  $U_3Si_2$ -Al e  $U_3O_8$ -Al, a homogeneidade é significativamente inferior ao padrão obtido no caso das placas de baixa concentração atualmente fabricadas, sendo inclusive inferior à mínima homogeneidade aceitável.

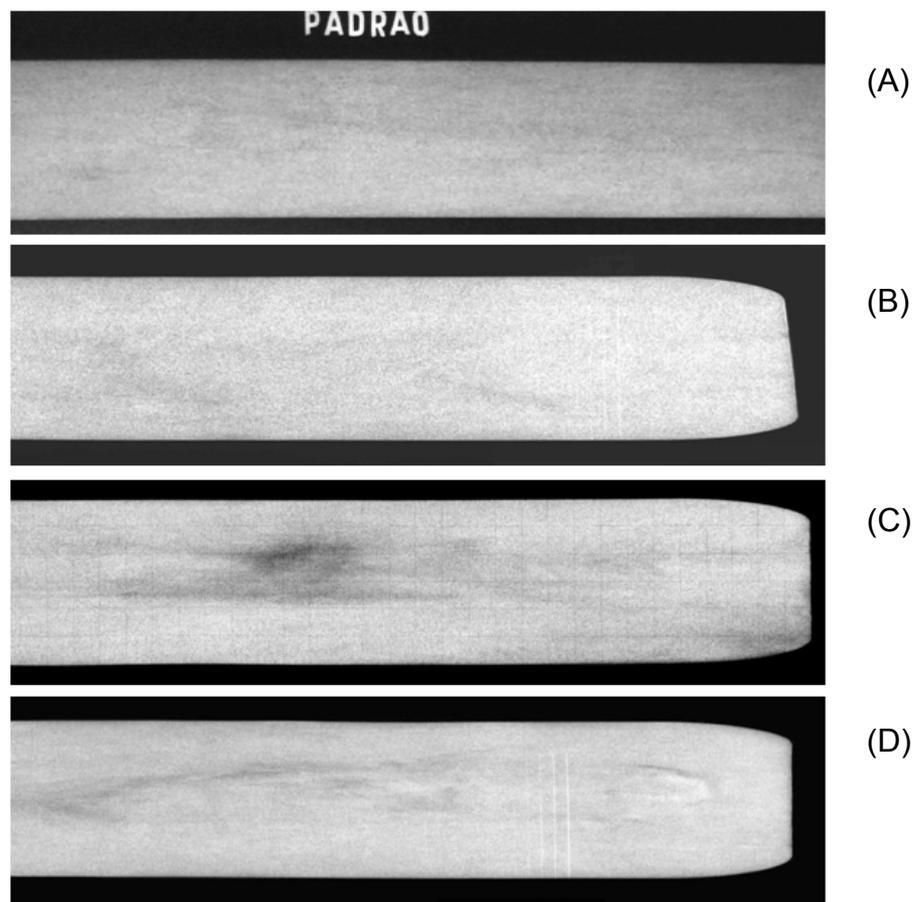


Figura 4 – Radiografias ilustrando a homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo de placas combustíveis. A- padrão mínimo de aceitabilidade. B- nível de homogeneidade tradicionalmente obtido. C- alta concentração  $U_3Si_2$ -Al. D- alta concentração  $U_3O_8$ -Al.

Analisando-se os resultados apresentados, observa-se que as dificuldades com relação à qualidade do caldeamento, homogeneidade da distribuição de urânio e espessura mínima do revestimento da placa combustível, são decorrentes da maior fração volumétrica dos compostos de urânio presente no núcleo da placa combustível, seja de dispersão de  $U_3Si_2-Al$  ou de  $U_3O_8-Al$ . O problema de segregação durante a alimentação da cavidade da matriz causa diminuição na qualidade do caldeamento e na homogeneidade da distribuição de urânio. Também, a presença de maior quantidade de partículas na superfície do briquete, causa a interpenetração de partículas de  $U_3Si_2$  de grande diâmetro no revestimento, diminuindo sua espessura efetiva. Por outro lado, ao contrário do que se poderia esperar, os defeitos terminais (dog-boning) mantiveram-se dentro dos limites aceitáveis.

Ultrapassar tais dificuldades é o próximo passo deste trabalho, o que possivelmente poderá ser realizado por meio do ajuste do procedimento de alimentação da cavidade da matriz de compactação e ajuste da granulometria do pó de  $U_3Si_2$ .

## **CONCLUSÕES**

Conclui-se deste trabalho que os procedimentos atualmente adotados pelo IPEN para a fabricação de placas combustíveis com baixa concentração de urânio não podem ser diretamente aplicados para a fabricação de placas combustíveis com alta concentração de urânio. Para a produção de placas combustíveis de alta concentração de urânio será necessária a realização de ajustes no procedimento de alimentação da cavidade da matriz de compactação e no tamanho máximo das partículas de  $U_3Si_2$ .

## **AGRADECIMENTOS**

Os autores desejam manifestar seu agradecimento à Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo – FAPESP, pelo apoio financeiro para a realização deste trabalho, por intermédio do Projeto FAPESP 2007/07769-7.

## **REFERÊNCIAS**

1. CUNNINGHAM, J. E.; BOYLE, E. J. MTR-Type fuel elements. In: UNITED NATIONS. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the International

Conference on..., Geneva, 8-20 Aug. 1955. V. 9: Reactor technology and chemical processing. New York, N.Y., 1956. p. 203-7.

2. KAUFMAN, A. R. ***Nuclear reactor fuel elements, metallurgy and fabrication.*** New York, N.Y: Interscience, 1962.

3. DURAZZO, M.; URANO DE CARVALHO, E. F.; SALIBA-SILVA, A. M.; SOUZA, J. A. B.; RIELLA, H. G. Current status of  $U_3Si_2$  fuel elements fabrication in Brazil. In: INTERNATIONAL MEETING ON REDUCED ENRICHMENT FOR RESEARCH AND TEST REACTORS – RERTR2007, Prague, 2007. **Anais** ... Washington: U.S. Department of Energy, 2007. Disponível em: [http://www.rertr.anl.gov/RERTR29/Abstracts/S11-8\\_Durazzo.html](http://www.rertr.anl.gov/RERTR29/Abstracts/S11-8_Durazzo.html).

4. DURAZZO, M.; URANO DE CARVALHO, E. F.; SALIBA-SILVA, A. M.; SOUZA, J. A. B.; RIELLA, H. G. Fabricação de elementos combustíveis a base de  $U_3Si_2$  no Brasil. Rev. Bras.Pesq.Des., São Paulo, Brasil, v.9, n. 1, p. 18-26, 2007.

5. SILVA, J. E. R. Especificação da Placa Combustível do E.C e E.C.C do Reator IEA-R1. Diretoria de Reatores. Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares-IPEN. 1998. Especificação Técnica ESPT.004.R01.

## **FABRICATION PROCEDURES FOR MANUFACTURING HIGH URANIUM CONCENTRATION DISPERSION FUEL ELEMENTS**

### **ABSTRACT**

*IPEN developed and made available for routine production the technology for manufacturing dispersion type fuel elements for use in research reactors. However, the fuel produced at IPEN is limited to the uranium concentration of  $3.0 \text{ gU/cm}^3$  by using the  $U_3Si_2$ -Al dispersion. Increasing the uranium concentration of the fuel is interesting by the possibility of increasing the reactor core reactivity and lifetime of the fuel. It is possible to increase the concentration of uranium in the fuel up to the technological limit of  $4.8 \text{ gU/cm}^3$  for the  $U_3Si_2$ -Al dispersion, which is well placed around the world. This new fuel will be applicable in the new Brazilian-Multipurpose Reactor RMB. This study aimed to develop the manufacturing process of high uranium concentration fuel, redefining the procedures currently used in the manufacture of IPEN. This paper describes the main procedures adjustments that will be necessary.*

Key-words: nuclear fuel, dispersions, fuel plates,  $U_3Si_2$ -Al