

FABRICAÇÃO DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS A BASE DE U_3Si_2 NO BRASIL

M. Durazzo¹, E. F. Urano de Carvalho¹, A. M. Saliba-Silva¹, J. A. B. Souza¹, H. G. Riella²

¹ Centro do Combustível Nuclear, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares-ipen/cnen-SP
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 CEP 05508-900, São Paulo/SP – mdurazzo@ipen.br

² Departamento de Engenharia Química, Universidade Federal de Santa Catarina, Florianópolis, Brasil

RESUMO

Preocupado com o contínuo aumento da demanda por radiofármacos, o IPEN tem despendido grande esforço para aumentar a sua produção de radioisótopos. Para alcançar esse objetivo, a potência do reator de pesquisas IEA-R1 foi recentemente aumentada de 2 MW para 4 MW. Desde 1988 o IPEN vem fabricando o combustível necessário para a operação do reator, inicialmente usando a dispersão U_3O_8 -Al com densidade de urânio de 2,3 gU/cm³. Para garantir o aumento de potência tornou-se necessário o aumento da densidade de urânio no combustível, tanto para se obter melhores condições de irradiação como também para minimizar o número de elementos combustíveis irradiados. O siliceto de urânio (U_3Si_2) foi a opção escolhida e o desenvolvimento desse combustível foi iniciado com Projeto de Cooperação Técnica BRA/4/047, suportado pela AIEA. Este trabalho descreve os resultados obtidos neste programa e a situação atual da fabricação e qualificação desse combustível.

Descritores: siliceto de urânio, combustível nuclear, dispersões, fabricação.

INTRODUÇÃO

O uso de radioisótopos na medicina certamente é uma das mais importantes aplicações sociais da energia nuclear e o IPEN/CNEN-SP tem um papel especial na história da medicina nuclear no Brasil. Devido ao monopólio federal, somente Institutos pertencentes à CNEN (Comissão Nacional de Energia Nuclear) podem produzir radioisótopos e radiofármacos para uso na medicina nuclear. A produção do IPEN representa aproximadamente 98% do total produzido.

ABSTRACT

IPEN has been working for increasing radioisotope production in order to supply the expanding demand for radiopharmaceutical medicines requested by the Brazilian welfare. To reach this objective, the IEA-R1 research reactor power capacity was recently increased from 2 MW to 4 MW. Since 1988 IPEN has been manufacturing its own fuel element, initially based on U_3O_8 -Al dispersion fuel plates with 2.3 gU/cm³. To support the reactor power increase, higher uranium density had to be achieved for better irradiation flux and also to minimize the irradiated fuel elements to be stored. Uranium silicide was the chosen option and the fuel fabrication development started with the support of the IAEA BRA/4/047 Technical Cooperation Project. This paper describes the results of this program and the current status of silicide fuel fabrication and qualification.

Key-words: uranium silicide, nuclear fuel, dispersion, fuel fabrication.

Através dos anos, tem ocorrido um significativo aumento na demanda de radioisótopos. Entre 2002 e 2004 o aumento na demanda foi de cerca de 30%. Distribuídos para hospitais e clínicas espalhadas pelo Brasil, os radiofármacos produzidos no IPEN forma usados, em 2006, para atendimento de mais de 3 milhões de pacientes, o que representou um aumento de cerca de 10% com relação ao ano anterior. Para enfrentar esse cenário, o IPEN tem aumentado continuamente sua produção de radiofármacos.

Um do
tiva a produ
ver gerador
os produzic
Dessa form
sível a um
atingir o ob
anos tem d
zar o seu re
o aumento
e sua rotina
semanais).
sistema de
itens adicion
dos. Além d
um novo rea
expandir o u
do seu bene

Uma v
va planejac
o IPEN ini
objetivo de
contido no
reator IEA-
aumento de
ser obtido
logia do sil
do com ap
Técnica jun
Energia Atô
Improvement
Esse proje
combustível
ampliar a e
do IPEN. A
elementos
com 3,0 gU
dos no rea
acompanha
visuais e te
Após queim
relacionado
vel foi regis
2002 foi im
o IPEN inic
gia de reco
usando UF
pelo CTMS
em São Pa
bilitado par
do, possibi

Um dos mais importantes projetos objetiva a produção nacional de Mo-99 para prover geradores de Tc-99 mais baratos do que os produzidos com matéria-prima importada. Dessa forma, esse medicamento será acessível a um número maior de pacientes. Para atingir o objetivo desse projeto, o IPEN por anos tem despendido esforços para modernizar o seu reator de pesquisas IEA-R1, visando o aumento de sua potência (de 2 para 5 MW) e sua rotina operacional (de 64 para 120 horas semanais). A mesa de controle do reator e o sistema de ventilação foram modernizados e itens adicionais de segurança foram incorporados. Além disso, existem planos para construir um novo reator produtor de radioisótopos para expandir o uso da medicina nuclear, espalhando seu benefício pelos quatro cantos do país.

Uma vez que a potência do reator estava planejada para ser aumentada, em 1997 o IPEN iniciou atividades de pesquisa com objetivo de aumentar a densidade de urânio contido no combustível que fabricava para o reator IEA-R1, de forma a tornar possível o aumento de potência planejado. Isso poderia ser obtido com o desenvolvimento da tecnologia do siliceto de urânio, o que foi realizado com apoio de um Projeto de Cooperação Técnica junto à AIEA (Agência Internacional de Energia Atômica), designado BRA/4/047 "Fuel Improvement for the IPEN Research Reactor". Esse projeto teve por objetivo desenvolver combustíveis de alta densidade de urânio para ampliar a eficiência e aplicabilidade do reator do IPEN. Até o presente momento, quatorze elementos combustíveis de siliceto de urânio, com 3,0 gU/cm³, foram ou estão sendo irradiados no reator IEA-R1. A irradiação tem sido acompanhada de perto por meio de inspeções visuais e testes de vazamento (sipping test). Após queima média de 40 % nenhum problema relacionado com o desempenho do combustível foi registrado. O pó de U₃Si₂ utilizado até 2002 foi importado da França, quando, então, o IPEN iniciou o desenvolvimento da tecnologia de reconversão para obter o pó de U₃Si₂ usando UF₆ enriquecido no Brasil, produzido pelo CTMSP (Centro Tecnológico da Marinha em São Paulo). Atualmente o IPEN está habilitado para fabricar o pó de U₃Si₂ enriquecido, possibilitando a nacionalização de todo o

ciclo de fabricação do combustível à base de dispersão para reatores de pesquisas. Após as etapas de mineração e enriquecimento, o IPEN é capaz de executar todas as demais etapas da fabricação desse tipo de combustível. Recentemente, no dia 26 de junho de 2007, o primeiro elemento combustível de siliceto de urânio, fabricado com materiais e tecnologia totalmente nacional, foi inserido para operar no caroço do reator IEA-R1. Assim, o Brasil é agora totalmente independente em termos de materiais e tecnologia para fornecer elementos combustíveis para os seus reatores de pesquisas produtores de radioisótopos. Essa é uma importante conquista tecnológica para o país, pois o coloca no mercado internacional, ao lado de um restrito grupo de fornecedores comerciais desse tipo de combustível.

Este trabalho descreve brevemente a jornada do IPEN rumo ao aprendizado e domínio da tecnologia do siliceto de urânio.

BASE HISTÓRICA

O início do desenvolvimento da tecnologia de fabricação de elementos combustíveis no IPEN é muito antigo. O trabalho foi iniciado ainda na década de 60 com objetivo de fabricar o combustível para o reator de pesquisas ARGONAUTA, do Instituto de Engenharia Nuclear da CNEN. Entre 1964 e 1965 foram fabricados os elementos combustíveis para esse reator, usando pó de U₃O₈ enriquecido a 20 % em U²³⁵, o qual foi fornecido pelas Nações Unidas dentro do programa "Átomos para a Paz" [1,2]. Apesar da baixa exigência tecnológica do combustível do reator ARGONAUTA, o qual é de muito baixa potência, da ordem de kW, nessa época foi plantada uma semente que viria a germinar 20 anos mais tarde, na década de 80, quando se retomaram no IPEN as pesquisas na área do combustível a base de dispersão [3,4,5]. A semente viria a florescer definitivamente na década de 90, quando o IPEN dominou a tecnologia e iniciou a produção do combustível para o reator IEA-R1. A relativamente maior potência (2 MW) demandou um significativo progresso tecnológico nas técnicas de fabricação.

A partir de 1980, então, o IPEN intensificou seus esforços para desenvolver a tecnologia de fabricação de elementos combustíveis

a base de dispersão, com o objetivo de atualizar a tecnologia para fabricar um combustível mais avançado, substancialmente superior ao antigo combustível do ARGONAUTA. Naquele tempo o IPEN não pode adquirir combustível no mercado internacional para suprir o reator IEA-R1, devido a restrições comerciais relacionadas a programas de não proliferação de armas nucleares. A crescente dificuldade para adquirir elementos combustíveis no mercado internacional atuou como força impulsora para o IPEN deflagrar seu programa de fabricação própria do elemento combustível. A tecnologia previamente desenvolvida nos anos 60 foi atualizada a partir de 1985, com base nos mais recentes avanços tecnológicos na área. Entre 1985 e 1988, o IPEN trabalhou na montagem de uma pequena instalação de fabricação em escala de laboratório, com capacidade para produzir 6 elementos combustíveis anualmente. Essa capacidade era suficiente para suprir o reator IEA-R1 operando a 2 MW 64 horas por semana.

Em 31 de agosto de 1988, como parte das comemorações do seu 32º aniversário, o IPEN proveu o reator IEA-R1 com o primeiro elemento combustível fabricado no Brasil, apenas onze dias antes da exaustão do combustível do reator. O material físsil usado foi o mesmo usado na fabricação do combustível para o ARGONAUTA. Existia uma reserva de cerca de 30 kg desse material. A partir de 1988, após a produção do primeiro elemento combustível, o IPEN iniciou a produção rotineira de elementos combustíveis, a qual continua até os dias de hoje.

Após a produção de 26 elementos combustíveis, o pó de U_3O_8 enriquecido terminou em 1996. Por esse motivo, em 1994 o IPEN iniciou o desenvolvimento do processo de reconversão do UF_6 ao U_3O_8 e a recuperação do urânio contido nos refugos de fabricação. In 1996 o IPEN realizou a reconversão de cerca de 20 kg de UF_6 importado. O IPEN estava então preparado para assumir a produção rotineira de elementos combustíveis partindo do UF_6 como matéria-prima. Em 1997 o IPEN aumentou a capacidade de produção de 6 elementos combustíveis anuais para 10, máxima capacidade possível considerando-se a infraestrutura disponível.

Como mencionado anteriormente, para aumentar a capacidade de produção de radioisótopos do IPEN, a potência do reator IEA-R1 foi aumentada de 2 MW to 5 MW. Nesse contexto, em 1997 foi iniciado o desenvolvimento de um novo combustível com densidade de urânio sensivelmente superior, para atender à necessidade de reatividade para operação contínua, para ter um núcleo do reator mais compacto para otimizar o fluxo de nêutrons e para gerar um menor número de elementos combustíveis queimados na piscina de estocagem do reator. O novo combustível adotou a dispersão U_3Si_2 -Al em substituição à dispersão U_3O_8 -Al, atingindo-se, em curto espaço de tempo, a densidade de 3,0 gU/cm³. Em 1998 a tecnologia de fabricação do novo combustível de siliceto de urânio foi implantada, mas o pó de U_3Si_2 ainda era importado. Entre 1999 e 2000 dezesseis elementos combustíveis a base de U_3Si_2 foram produzidos. A partir de 1998 se iniciou o desenvolvimento da tecnologia de produção do pó de U_3Si_2 , buscando a nacionalização de todo o processo, partindo do UF_6 enriquecido e reconvertendo-o para UF_4 , o qual é reduzido para urânio metálico que é material-prima para a produção do pó de U_3Si_2 , chegando, finalmente, à fabricação das placas combustíveis e à montagem do elemento combustível. Nessa época, o IPEN procurou por cooperação internacional por meio da Agência Internacional de Energia Atômica e teve um Projeto de Cooperação Técnica aprovado, designado BRA/4/047.

Com ajuda da cooperação internacional, em 1999 o IPEN dominou a tecnologia da produção de UF_4 usando o $SnCl_2$ como agente redutor. Na área do urânio metálico, o IPEN tinha uma valiosa experiência anterior, adquirida nos anos 90, na produção de grandes lingotes de urânio natural, com 150 kg. Com base nessa experiência, o IPEN iniciou esforços no sentido de diminuir o tamanho das peças de urânio metálico, tentando produzir peças com cerca de 3 kg, agora usando material enriquecido a 20 % em U^{235} para ser usado como material-prima para a produção do U_3Si_2 . Em 2002 o processo de fabricação do urânio metálico estava dominado, o que tornou possível o desenvolvimento do processo de fabricação do intermetálicos U_3Si_2 . Em 2004 o IPEN obteve o primeiro lote de pó

de U_3Si_2 natural fabricado com tecnologia nacional, dominando o que foi chamado de "Ciclo do Siliceto de Urânio". Em 2006 o IPEN consolidou a tecnologia de fabricação do combustível a base de U_3Si_2 com a fabricação do primeiro elemento combustível de siliceto de urânio com tecnologia totalmente nacional. Esse elemento combustível, designado IEA-202, entrou para operar no caroço do reator IEA-R1 no dia 26 junho de 2007. Agora, os esforços no desenvolvimento do combustível tipo dispersão estão direcionados para o aumento da densidade de urânio. Inicialmente, em curto prazo, pretende-se produzir e qualificar o combustível a base de U_3Si_2 com $4,8 \text{ gU/cm}^3$, o qual é o combustível comercial mais avançado nos dias de hoje. No futuro, em médio prazo, o objetivo é obter a tecnologia de fabricação do combustível de dispersão a base da liga UMo, atualmente em fase de qualificação pela comunidade científica internacional.

Com o aumento da potência e do regime de utilização do reator IEA-R1, aumentou também sua necessidade de combustível, passando de 6 elementos combustíveis anuais, de U_3O_8 -Al, para 18, de U_3Si_2 . Além disso, para enfrentar o contínuo aumento da demanda de radioisótopos, cogita-se a construção de um novo reator de pesquisas produtor de radioisótopos na região nordeste do Brasil. Essa decisão será muito importante (e provável) no futuro, tendo em vista a avançada idade do reator IEA-R1, que é praticamente o único reator produtor de radioisótopos do país. Esse novo reator, com potência provável ao redor de 20 MW, consumirá cerca de 30 elementos combustíveis anualmente. Assim, uma demanda de cerca de 50 elementos combustíveis parece ser bastante realista no futuro.

Considerando essa previsão de necessidades de elementos combustíveis e a necessidade urgente de ampliar a capacidade de produção atual do IPEN, para 18 elementos combustíveis por ano, em 2001 iniciou-se um projeto para promover a adaptação da infraestrutura com vista ao aumento da capacidade de produção. Atualmente esse projeto está em andamento e prevê a montagem de uma nova unidade de fabricação de elementos combustíveis, substituindo-se a atual infraestrutura, de caráter laboratorial. A nova unidade de fabrica-

ção está planejada para ter uma capacidade de produção nominal de 30 elementos combustíveis anuais. Esta capacidade atenderá integralmente a demanda de elementos combustíveis em curto prazo. A capacidade de produção dessa nova unidade poderá atingir 80 elementos combustíveis anuais, o que supriria também o novo reator de pesquisas planejado para ser construído. A conclusão desse projeto está prevista para 2008-2009.

Preparando-se para o futuro, em 2001 o IPEN começou atividades envolvendo a liga UMo, em contribuição com o programa RERTR (Redução de Enriquecimento para Reatores de Pesquisas e Testes de Materiais) para desenvolvimento de combustíveis com alta densidade de urânio. No futuro, esse combustível deverá substituir com vantagens o combustível U_3Si_2 . Atualmente esse trabalho está em curso e também é apoiado por um Projeto de Cooperação Técnica da AIEA, designado BRA/4/053 "Development of Alternative High-Density Fuel Based on Uranium-Molybdenum Alloys".

O aumento no regime de produção de elementos combustíveis irá gerar grandes quantidades de resíduos líquidos, sólidos e gasosos, considerados poluentes, os quais devem ser manuseados cuidadosamente. A maior escala de fabricação da nova instalação de produção introduz dificuldades técnicas relacionadas à melhoria dos procedimentos de recuperação de urânio e de tratamento de efluentes e disposição de resíduos. Como a infra-estrutura para fabricação de placas combustíveis já está adequada para enfrentar o novo nível de produção, as principais modificações e ajustes deverão ser realizados nos processos químicos envolvidos na recuperação de urânio de refugos da fabricação e no tratamento de resíduos líquidos e gasosos, incluindo aerossóis, gerados pelo novo regime de produção. Para enfrentar esse novo desafio, o IPEN novamente procurou por cooperação internacional com o apoio da AIEA, obtendo, em 2007, a aprovação de mais um Projeto de Cooperação Técnica, designado BRA/3/012 "Nuclear Fuel for Research Reactors: Improving Fabrication and Performance Evaluation in Brazil". Os resultados desse projeto irão garantir que a nova instalação de produção atenda integralmente aos requisitos ambientais impostos pela legislação brasileira.

DESENVOLVIMENTO DO COMBUSTÍVEL A BASE DE SILICETO DE URÂNIO (U_3Si_2)

O reator IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP é um reator tipo piscina em operação desde 1957 [6]. O reator usa elementos combustíveis tipo MTR à base de dispersão numa configuração do núcleo de 5X5 elementos combustíveis. O Centro do Combustível Nuclear-CCN do IPEN é responsável pela produção do combustível nuclear necessário para a operação contínua do reator. O desenvolvimento de novas tecnologias também é uma preocupação permanente. Até o presente momento, o Centro do Combustível Nuclear produziu 77 elementos combustíveis, incluindo 14 elementos combustíveis de controle.

O núcleo da placa combustível é fabricado de acordo com técnicas tradicionais de metalurgia do pó. O elemento combustível contém 18 placas combustíveis, todas com espessura de 1,52 mm. As placas de revestimento e moldura são feitas com a liga de alumínio ASTM 6061. O conjunto para laminação é preparado de acordo com a conhecida técnica de montagem núcleo-moldura-revestimentos (picture frame technique). O elemento combustível resulta da montagem mecânica de 18 placas combustíveis e outros componentes estruturais. A figura 1 mostra detalhes da fabricação da placa combustível e a geometria do elemento montado.

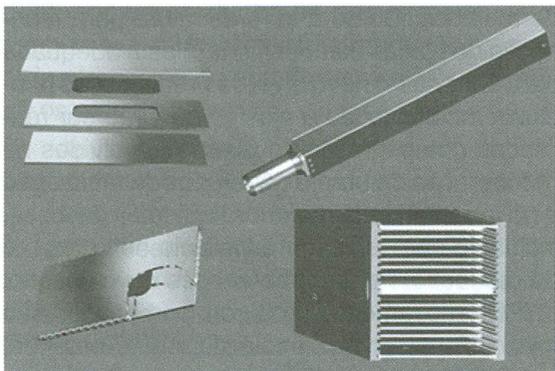


Figura 1 – Elemento combustível fabricado no IPEN.

Como o Brasil não possui laboratórios de células quentes para teste de combustíveis queimados, para estudo de seu desempenho, e a irradiação fora do país seria muito cara, o IPEN decidiu testar e avaliar seu combustível sob irradiação, durante a sua operação no re-

ator IEA-R1. Isso foi possível devido ao fato da especificação do combustível ser muito conservativa para um combustível a base de dispersão e da potência do reator ser baixa. Um programa de qualificação sob irradiação foi iniciado com a irradiação de algumas miniplacas na periferia do caroço do reator, apenas para identificar qualquer evento anormal. Em julho de 1985 um elemento combustível parcial com apenas duas placas combustíveis e 16 placas de alumínio foi inserido no caroço do reator para iniciar a qualificação do combustível. Depois disso, outro elemento combustível parcial, este com 10 placas combustíveis e 8 de alumínio, foi também inserido no caroço, em novembro de 1985. Esses dois elementos combustíveis foram identificados como os combustíveis precursores, cuja irradiação foi intensamente monitorada e avaliada. Após bons resultados obtidos com os elementos combustíveis precursores, em agosto de 1988 foi decidido iniciar o suprimento do reator com elementos combustíveis fabricados no IPEN, os quais possuíam densidade de 1,9 gU/cm³ e usava a dispersão U_3O_8 -Al. A estratégia adotada previa que cada elemento combustível novo iniciasse a irradiação na periferia do caroço do reator, sob baixas densidades de potência, até atingir a queima de 4 %, o que correspondia a quase um ano de operação. A partir daí ele poderia, então, ir para posições mais internas do caroço, operando sob densidades de potência mais altas.

O último elemento combustível precursor foi retirado do caroço sem apresentar qualquer tipo de problema. Detalhes sobre o programa de qualificação do combustível podem ser obtidos na literatura [7]. Para qualificar o combustível a base de U_3Si_2 -Al foi adotada a mesma estratégia. Nesse caso, a fração volumétrica da fase físsil na dispersão foi mantida a mesma existente no combustível U_3O_8 -Al já qualificado, ao redor de 27 %, o que resultou na densidade de urânio de 3,0 gU/cm³.

O programa para o desenvolvimento do combustível de siliceto de urânio no IPEN teve um grande impulso após a aprovação do projeto BRA/4/047 "Fuel Improvement for the IPEN Research Reactor" da AIEA, em 1999. O principal objetivo do projeto foi o de desenvolver no IPEN todo o processo de fabricação do combustível a base da dispersão U_3Si_2 -Al

(incluindo alta densidade, de $4,8 \text{ gU/cm}^3$), realizar seu teste sob irradiação no reator IEA-R1 e a análise pós-irradiação. Esse objetivo daria a necessária base para o IPEN produzir e qualificar seu próprio pó de U_3Si_2 e as placas combustíveis de siliceto. As etapas do projeto foram as seguintes:

- desenvolver o processo de produção do UF_4 partindo do UF_6 ;
- desenvolver o processo de produção do urânio metálico partindo do UF_4 ;
- desenvolver o processo de produção do pó de U_3Si_2 ;
- produzir miniplacas com 20 % de enriquecimento para testes de irradiação;
- irradiar miniplacas no reator IEA-R1 e realizar análises não-destrutivas na piscina do reator.

Informações mais detalhadas podem ser obtidas nos relatórios de progresso desse projeto [8,9,10].

Conversão do UF_6 para UF_4

Essencialmente, o processo para se obter o UF_4 a partir do UF_6 baseia-se na redução do urânio hexavalente presente numa solução aquosa ao seu estado tetravalente, seguida de precipitação pela adição de uma solução de HF. A precipitação do UF_4 usando redução química é realizada partindo-se de uma solução de UO_2F_2 resultante da hidrólise do UF_6 . A solução é aquecida sob agitação constante até atingir a temperatura predeterminada, quando o agente redutor é adicionado. Depois, a solução de HF é lentamente adicionada. Foram realizados testes usando diferentes agentes redutores, tais como: SnCl_2 , CuCl , FeCl_2 e $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_4$. O SnCl_2 foi o que proporcionou os melhores resultados, atingindo-se o nível de precipitação do UF_4 na faixa de 98%. Contudo, durante a preparação do UF_4 por essa rota ocorre a absorção de água pelos cristais de UF_4 . Essa água interfere negativamente em outras etapas do processo de produção do combustível e, portanto, deve ser removida.

A eliminação da água de cristalização do UF_4 é realizada em temperaturas ao redor de 400°C sob fluxo contínuo de argônio sobre a superfície do pó, o que evita a oxidação do UF_4 para formar UO_2F_2 ou UO_2 e retira o vapor de

água liberado. O material, na forma de pó, é colocado num bote de monel e introduzido no interior de uma mufla. Depois de uma purga inicial de 1 hora, o sistema é aquecido a 400°C sob fluxo de gás. O pó de UF_4 permanece nessa temperatura por 1 hora, o que é tempo suficiente para completar a eliminação da água. O resfriamento subsequente é realizado mantendo-se o fluxo de argônio até que a temperatura atinja 100°C . Detalhes sobre os procedimentos de precipitação do UF_4 foram anteriormente publicados e estão disponíveis na literatura [11]. A figura 2 é uma típica representação da morfologia do pó de UF_4 .

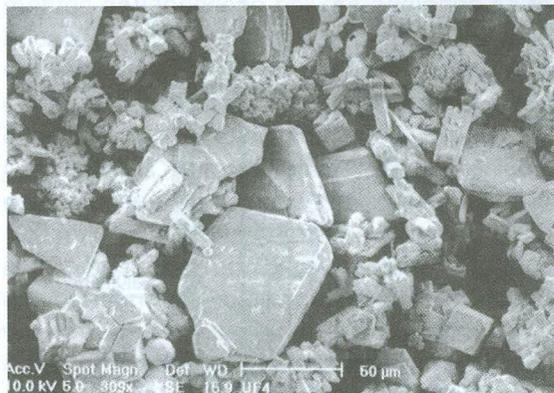


Figura 2 – Micrografia eletrônica de varredura de cristais de UF_4 .

Redução do UF_4 para Urânio Metálico

O intermetálico U_3Si_2 é produzido a partir do urânio metálico, ao qual é adicionado silício metálico numa operação de fusão. O IPEN desenvolveu um processo para produzir pequenas quantidades de urânio metálico (1000 g) adotando a magnesiotermy. O lingote de urânio metálico de 1000 g é bem pequeno quando comparado com a experiência anterior do IPEN na produção desse material. Nos anos 80, lingotes de urânio metálico natural atingiram a massa de 100 kg. A diminuição dessa escala de produção foi bastante difícil, desde que não foi suficiente apenas a diminuição do tamanho do cadinho, já que a grande redução da massa ocasionou uma sensível diminuição nos rendimentos da reação de redução. O cadinho foi modificado diversas vezes que fosse definido seu formato final, usando um sistema de fundo removível para facilitar a retirada do lingote fundido. O perfil térmico do forno foi definido por meio de cálculos e experimentos, mas para obterem-se bons rendimentos fez-

se necessário conhecer o exato momento da reação. Isso foi conseguido graças ao uso de um acelerômetro que detecta as ondas de som geradas pela reação.

Bomba de Redução Metalotérmica

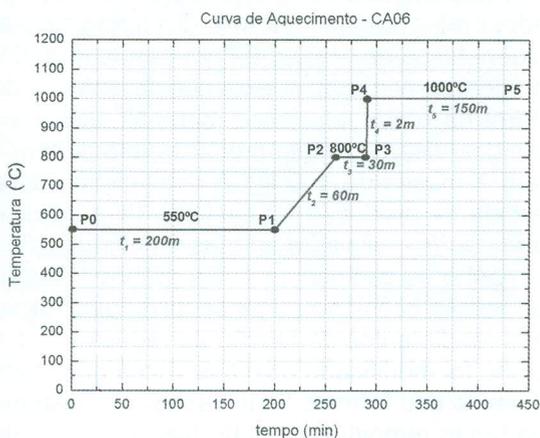
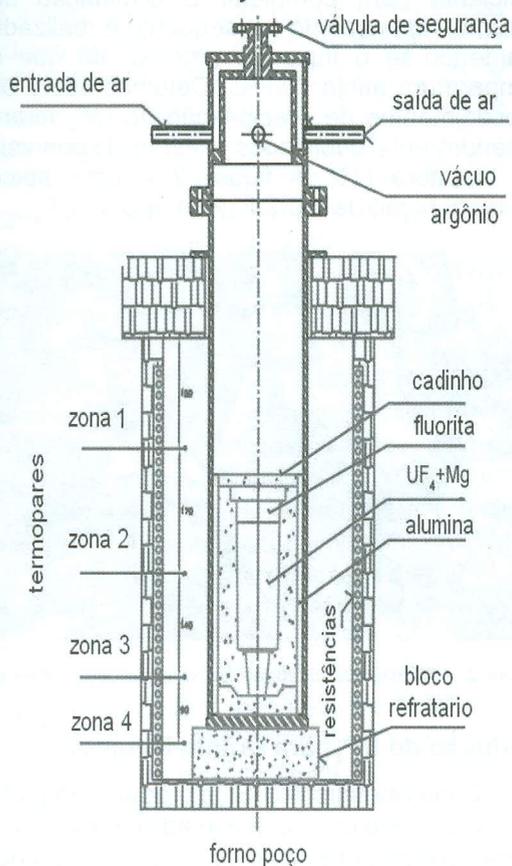


Figura 3 – Bomba para redução magnesiotérmica de urânio metálico e ciclo térmico para a reação.

Figura 4 – Peça de urânio metálico (dingote) produzida no IPEN.



A otimização desse método foi conquistada somente após a realização de quase 25 experimentos, com simulações usando urânio natural realizadas durante 3 anos. A partir daí foi iniciada a produção de urânio metálico enriquecido a 20 % em U^{235} . O rendimento desse processo está ao redor de 82-85%. O ciclo térmico atualmente adotado está indicado no diagrama da figura 3. Material enriquecido já foi produzido com bons resultados operacionais e de qualidade do produto. A figura 4 mostra um dingote de urânio metálico enriquecido produzido Segundo os procedimentos adotados pelo IPEN.

Fusão do U_3Si_2 e Fabricação do Pó

Desde o ano de 2000 o Centro do Combustível Nuclear do IPEN tem dedicado grandes esforços para dominar a tecnologia de fabricação do intermetálico U_3Si_2 . Depois de algumas dificuldades, como descrito em trabalho publicado previamente [12], in 2004 finalmente o IPEN definiu uma rotina experimental para produzir U_3Si_2 em quantidade suficiente para produzir o combustível necessário. O dingote de urânio metálico obtido é refundido num forno de indução com adição de silício metálico. A fusão é realizada utilizando-se um cadinho de zircônia especialmente projetado para suportar temperaturas de até 1750°C, assim como o ambiente altamente agressivo criado pelo urânio metálico, que é muito reativo. O arranjo da carga foi estudado para auxiliar a homogeneização durante os vários estágios que a liga fundida passa antes de atingir a composição final do

intermetálico, como mostra a figura 5. Mais de 20 tentativas foram realizadas usando urânio natural antes que o primeiro lingote de U_3Si_2 enriquecido fosse obtido. Diversas tentativas para usar cadinhos de grafite, com várias geometrias, resultaram infrutíferas. Quando se decidiu adotar o cadinho de zircônia (ilustrado na figura 5) os problemas diminuíram e os resultados apareceram. Em 2005 foram produzidos 3 lingotes de U_3Si_2 enriquecido, cada qual com massa aproximada de 800g. Esse material compôs o primeiro lote de pó para a fabricação de placas combustíveis usando material-prima nacional. Em termos gerais, a qualidade do material obtido atende integralmente às especificações vigentes, sendo comparável ao material comercializado no mercado internacional. O difratograma de raios-x apresentado na figura 6 atesta a qualidade desse material em termos de fases presentes.

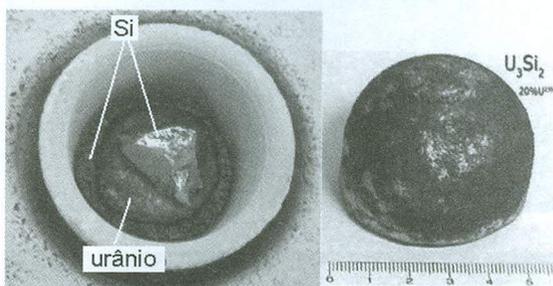


Figura 5 – Montagem da carga antes da fusão e lingote obtido na fusão por indução.

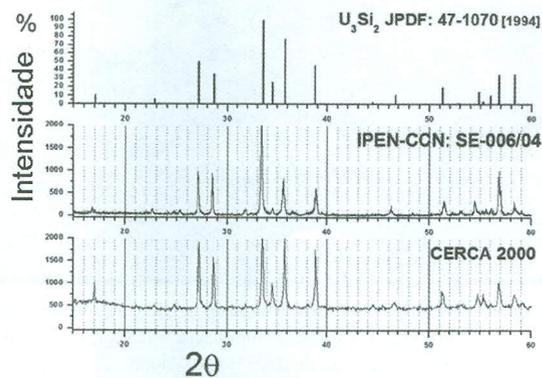


Figura 6 – Difratograma comparando o U_3Si_2 produzido no IPEN com o material comercializado internacionalmente, no caso obtido da CERCA francesa.

Fabricação de Mini-placas

Como mencionado previamente, o IPEN iniciou a produção de elementos combustíveis

usando a dispersão U_3O_8 -Al com $1,9 \text{ gU/cm}^3$. Essa densidade de urânio representa uma fração volumétrica de U_3O_8 de 27 %. Se a mesma fração volumétrica for usada, a substituição direta do U_3O_8 pelo U_3Si_2 resulta numa densidade de urânio de $3,0 \text{ gU/cm}^3$. O aumento da fração volumétrica na dispersão até o limite tecnológico de 45 % possibilita a fabricação de placas combustíveis com densidade de urânio de $4,8 \text{ gU/cm}^3$. Esse é o objetivo a ser atingido no futuro. O aumento da fração volumétrica de ambos U_3O_8 e U_3Si_2 para 45 % implica na implementação de modificações nos procedimentos de fabricação por ora adotados na fabricação do combustível de baixa densidade. O trabalho de pesquisa necessário para adequar os procedimentos de fabricação foram iniciados com o apoio do Projeto BRA/4/047, junto à AIEA. Foram fabricadas 22 miniplacas com núcleos de dimensões aproximadas de 120 mm de comprimento por 42 mm de largura. Os briquetes, que são as peças compactadas que formarão o núcleo da placa combustível, tiveram dimensões de 20 X 40 mm. A liga de alumínio 6061 foi usada para a fabricação de molduras e revestimentos. A laminação a quente foi realizada a $440 \text{ }^\circ\text{C}$. As miniplacas foram fabricadas por laminação a quente, seguida por laminação a frio, segundo o projeto de passes apresentado na tabela 1.

Tabela 1 – Projeto de passes típico adotado na laminação de miniplacas.

Laminação a Quente		
Passe	Espessura da Mini-placa (mm)	Redução em Espessura (%)
<i>Início</i>	9.14	
1	7.17	21.5
2	5.39	24.8
3	4.62	14.3
4	3.93	14.9
5	3.31	15.8
6	2.79	15.7
7	2.37	15.1
8	2.01	15.2
9	1.70	15.4
Laminação a Frio		
10	1.52	10.6

A espessura do revestimento sobre as zonas de defeito (dogboning) atendeu com folga a especificação vigente, com uma espessura mínima de 0,28 mm (o mínimo especificado

é 0,25 mm). Todas as miniplacas fabricadas mostraram uma boa ligação metalúrgica entre o núcleo e os revestimentos. Nos primeiros testes de fabricação foi observada alguma oxidação de partículas de U_3Si_2 na dispersão, localizadas perto da interface núcleo/revestimento. A fração volumétrica da fase oxidada foi quantificada por meio de análise de imagem. Os resultados indicaram que uma fração volumétrica entre 2 e 4 % das partículas de U_3Si_2 havia sido oxidada. A presença desse volume de óxido no núcleo da placa combustível foi considerada não prejudicial ao desempenho do combustível durante a irradiação em operação. Contudo, foi decidido estudar a causa do fenômeno de oxidação para eliminá-lo ou minimizá-lo. O procedimento de soldagem foi identificado como a causa da oxidação. Foi realizada uma modificação no sistema de soldagem para minimizar a quantidade de ar aprisionada no conjunto soldado. Isso foi possível com o uso de uma caixa de luvas operando com atmosfera inerte de argônio. Depois dessa modificação não mais se observou o problema de oxidação. A figura 7 mostra uma radiografia de uma das miniplacas fabricadas com dispersão U_3Si_2 -Al com densidade de urânio de 4,8 gU/cm³. A figura 8 mostra uma radiografia ilustrando as dimensões finais da miniplaca.

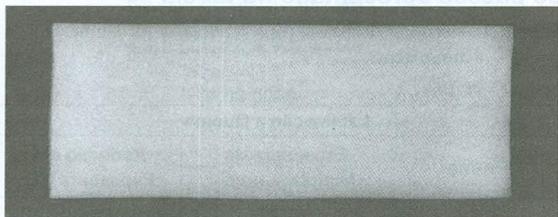


Figura 7 – Radiografia ilustrando o núcleo de uma das miniplacas de U_3Si_2 -Al com 4,8 gU/cm³.

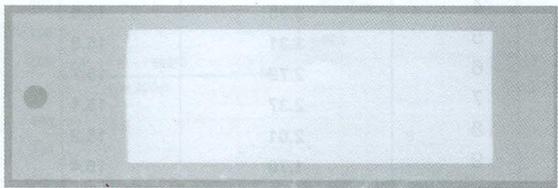


Figura 8 – Radiografia ilustrando detalhes da miniplaca acabada.

Irradiação das Mini-placas no IEA-R1

Um sistema especial para irradiação de miniplacas foi projetado para ser posicionado

na placa matriz do carço do reator IEA-R1. Suas dimensões externas (elemento de irradiação) são muito similares às do elemento combustível. Ele foi projetado para acomodar as miniplacas para a irradiação e também permite que as mesmas sejam retiradas para avaliação de desempenho sob irradiação. O projeto assumiu o posicionamento de 10 miniplacas para irradiação simultânea. Foi projetado um suporte interno para posicionamento das miniplacas, o qual é montado no interior do elemento de irradiação. A figura 9 ilustra os componentes do sistema de irradiação (miniplacas; suporte, elemento de irradiação).

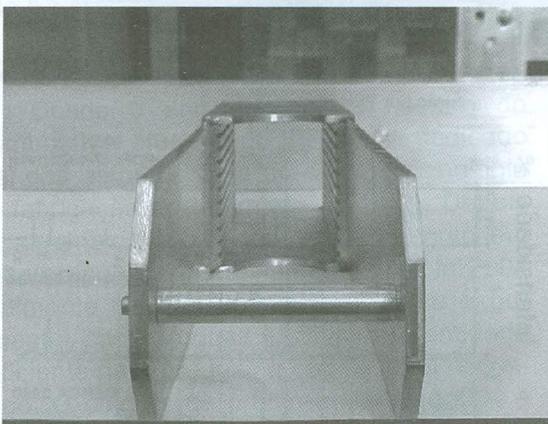
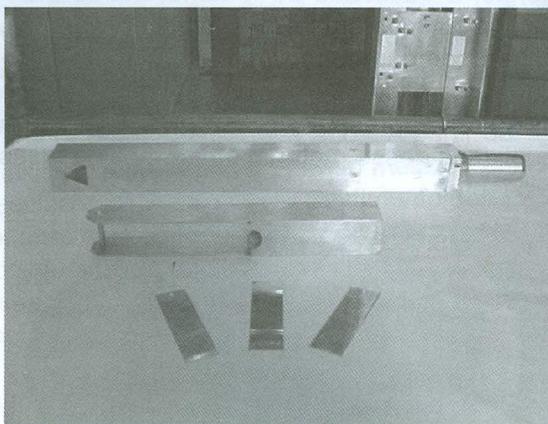


Figura 9 – Componentes do sistema de irradiação: elemento de irradiação, suporte e miniplacas. Abaixo, detalhe do suporte com capacidade de posicionar 10 miniplacas para irradiação.

A avaliação pós-irradiação inclui a medição da espessura da miniplaca, inspeção visual e teste de vazamento (sipping). O sistema de medição da espessura da miniplaca será operado dentro da piscina do reator, usando a própria água da piscina como blindagem. O

sistema será operado da borda da piscina e será capaz de medir a variação da espessura da miniplaca ao longo da sua superfície. Isso permitirá acompanhar o inchamento induzido pela irradiação. Todo o sistema é baseado numa estrutura mecânica para posicionamento da miniplaca e dos instrumentos de medição. A medição da espessura será realizada por meio de apalpadores eletrônicos. Os resultados obtidos pela instrumentação de medição serão armazenados e processados num computador. A figura 10 ilustra a estrutura de suporte e detalhes do sistema de medição de espessura.

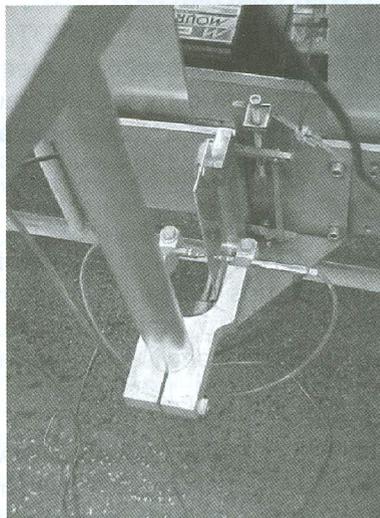
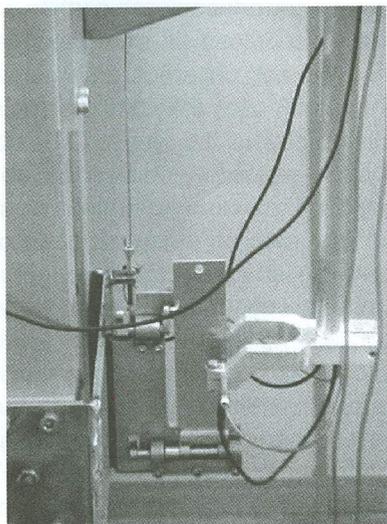
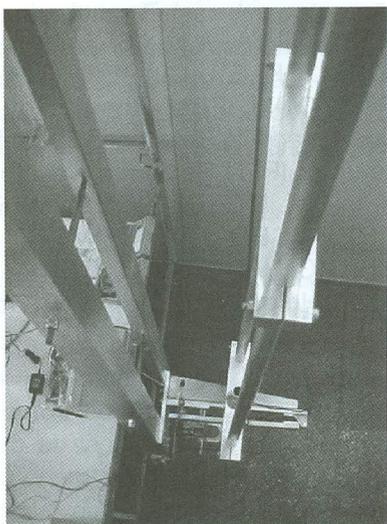


Figura 10 – Sistema de medição de espessura de miniplacas sob a água. Acima, estrutura mecânica de suporte. Abaixo, detalhes dos instrumentos de medição.

CONCLUSÃO

As atividades de desenvolvimento envolvendo a fabricação do combustível U_3Si_2-Al foram completadas satisfatoriamente. O próximo passo é fabricar placas combustíveis de tamanho normal a base de U_3Si_2-Al com $4,8 \text{ gU/cm}^3$. Esse trabalho já foi iniciado.

As atividades experimentais para qualificação do combustível envolvendo o reator IEA-R1 devem ser definidas em documentos formais. Os procedimentos operacionais já foram redigidos pelo grupo do Centro de Engenharia Nuclear do IPEN. Tais documentos também já foram analisados pelo grupo de operação do reator. O início da irradiação está aguardando a aprovação final do experimento pelo Comitê de Segurança do Reator.

AGRADECIMENTOS

Os autores expressam seus sinceros agradecimentos à Agência Internacional de Energia Atômica AIEA pelo contínuo apoio prestado através dos anos para as atividades de pesquisa desenvolvidas no IPEN. Esse apoio seguramente fez a diferença para o sucesso do programa de desenvolvimento de combustíveis e ajudou-nos a acompanhar os avanços conquistados na área de tecnologia de combustíveis nucleares.

REFERÊNCIAS

- [1] SOUZA SANTOS, T.D.; HAYDT, H.M.; FREITAS, C.T. Fabricação de elementos combustíveis para o reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear. Metalurgia, v. 21 (90), p. 369-76, 1965.
- [2] SOUZA SANTOS, T.D.; HAYDT, H.M.; FREITAS, C.T. Principais características metalúrgicas dos elementos combustíveis produzidos para o reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear. Metalurgia, v. 21 (97), p. 369-76, 1965.
- [3] BRESSIANI, J.C.; DURAZZO, M.; RAMANATHAN, L.V.; FREITAS, C.T. Desenvolvimento de combustíveis de baixo enriquecimento para reatores de ensaios de materiais. In: XXXV CONGRESSO ANUAL DA ABM, São Paulo, SP, v. 3, p. 597-612, 1980.
- [4] RAMANATHAN, L.V.; DURAZZO, M.; FREITAS, C.T. Combustíveis para reatores de ensaios de materiais. In: XXXVII CONGRESSO ANUAL DA ABM, Rio de Janeiro, RJ, v. 1, p. 673-90, 1982.
- [5] FREITAS, C.T.; RAMANATHAN, L.V.; DURAZZO, M. Technology transfer and development of fuel for the IEA-R1 MTR. Trans.Am.Nucl.Soc., v. 42, p. 88-90, 1982.
- [6] INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA. Reator de Pesquisas. São Paulo, 1958. (IEA-Pub-1)
- [7] PERROTA, J.A.; NETO, A.M.; DURAZZO, M.; SOUZA, J.A.B.; FRAJNDLICH, R. Irradiation Experience of IPEN Fuel at IEA-R1 Research Reactor. In: XXI INTERNATIONAL MEETING ON REDUCED ENRICHMENT FOR RESEARCH AND TEST REACTORS, São Paulo, Brazil, 18-23 October 1998.
- [8] DURAZZO, M.; PERROTA, J.A. Fuel Improvement for the IPEN Research Reactor. Semiannual Progress Report January-June 1999. IAEA Project Number BRA/4/047. IPEN, São Paulo, 1999.
- [9] DURAZZO, M.; PERROTA, J.A. Fuel Improvement for the IPEN Research Reactor. Semiannual Progress Report July-December 1999. IAEA Project Number BRA/4/047. IPEN, São Paulo, 1999.
- [10] DURAZZO, M.; PERROTA, J.A. Fuel Improvement for the IPEN Research Reactor. Semiannual Progress Report January-June 2000. IAEA Project Number BRA/4/047. IPEN, São Paulo, 2000.
- [11] FRAJNDLICH, E.U.C.; SALIBA SILVA, A.M.; ZORZETTO, M.A. Alternative Route For UF_6 Conversion Towards UF_4 to Produce metallic Uranium. In: XXI INTERNATIONAL MEETING ON REDUCED ENRICHMENT FOR RESEARCH AND TEST REACTORS, São Paulo, Brazil, 18-23 October 1998.
- [12] SALIBA SILVA, A.M.; SOUZA, J.A.B.; FRAJNDLICH, E.U.C.; PERROTA, J.A.; DURAZZO, M. First Results of U_3Si_2 Production and its Relevance in the Power Scale-up of IPEN Research Reactor IEA-R1m. In: XX INTERNATIONAL MEETING ON REDUCED ENRICHMENT FOR RESEARCH AND TEST REACTORS, Jackson Hole, Wyoming, 5-10 October 1997.