

QUALIFICAÇÃO DOS COMBUSTÍVEIS TIPO DISPERSÃO DE U_3O_8 -Al DE FABRICAÇÃO IPEN/CNEN-SP

*José A. Perrotta, *Adolfo M. Neto, **Michelangelo Durazzo, **José A.B. de Souza,
*** Roberto Frajndlich

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN-SP)

*Divisão de Engenharia do Núcleo

**Departamento do Ciclo do Combustível

***Divisão de Operação do Reator IEA-R1m

Travessa "R" nº 400 - Cidade Universitária - CEP 05508-900

São Paulo - São Paulo - Brasil

Fone (011) 816-9440 - Fax (011) 816-9432

E-mail: perrotta@net.ipen.br

RESUMO

O IPEN/CNEN-SP produz combustíveis tipo placa (tipo MTR), a base de dispersão de U_3O_8 -Al, para o reator IEA-R1m. Desde 1988, quando entrou o primeiro combustível de fabricação IPEN no reator IEA-R1m, um programa de acompanhamento desta irradiação vem sendo realizado com objetivo de caracterizar sua qualificação sob irradiação. Hoje o núcleo do reator é totalmente composto de combustíveis fabricados no IPEN e vários já foram retirados do núcleo com queimas superiores a 30% (em termos de átomos de ^{235}U). Este trabalho apresenta a experiência desta qualificação, descrevendo resultados alcançados.

Palavras-Chave: Combustível tipo MTR; Combustível tipo Dispersão; Qualificação de Combustível

I. INTRODUÇÃO

O reator IEA-R1, atual IEA-R1m, do IPEN/CNEN-SP é do tipo MTR, piscina, e vem operando desde 1957. Na maior parte de sua vida operou a 2 MW, mas a partir de setembro de 1997 começou a operar a 5 MW. Atualmente o núcleo do reator é constituído de um arranjo de 25 elementos combustíveis. Dependendo da potência e do ritmo de operação há a necessidade de reposição constante de elementos combustíveis. Trabalhos anteriores apresentados pelo autor mostram a estratégia e o histórico de utilização dos combustíveis no reator [1,2].

O programa de produção seriada de elementos combustíveis, com tecnologia nacional, foi iniciado no IPEN em meados da década de 80. Foi motivado, principalmente, pelas dificuldades políticas e econômicas impostas na época à importação de elementos combustíveis para o abastecimento do reator IEA-R1. Aproveitando a experiência adquirida desde a década de 60 no desenvolvimento e fabricação de combustíveis nucleares, o IPEN iniciou o desenvolvimento do combustível tipo

dispersão de U_3O_8 -Al com revestimento de alumínio e adotou um programa próprio para a qualificação deste combustível. Desde 1988 o IPEN vem utilizando no reator IEA-R1m estes combustíveis de fabricação própria. Duas densidades diferentes estão sendo utilizadas nas dispersões: 1,9 gU/cm³ (EC-130 a EC-151) e 2,3 gU/cm³ (EC-152 em diante).[1,2] Este trabalho apresenta a experiência e alguns resultados obtidos, até o presente momento, na utilização e qualificação destes combustíveis.

II. QUALIFICAÇÃO DO COMBUSTÍVEL

A qualificação de combustíveis nucleares requer a realização de testes de irradiação e análises pós-irradiação. Combustíveis a base de dispersão U_3O_8 -Al foram testados e qualificados no exterior já existindo uma grande experiência operacional sobre estes. Como o Brasil ainda não possui células quentes para testes de combustíveis ou materiais irradiados e também devido aos altos custos dos serviços de irradiação e realização de análises pós-irradiação de

miniplacas no exterior, o IPEN/CNEN-SP optou por um programa próprio de desenvolvimento e qualificação dos combustíveis fabricados na Instituição.[3] O processo de qualificação do combustível de dispersão U_3O_8 -Al nacional iniciou-se com a fabricação de miniplacas combustíveis e irradiação destas na periferia do núcleo do reator IEA-R1m. Passo seguinte, foram construídos e irradiados, também na periferia do núcleo, dois elementos combustíveis parciais contendo somente algumas placas combustíveis e as restantes sendo placas de alumínio. Estes dois elementos combustíveis foram identificados como combustíveis precursores e sobre eles foram realizados acompanhamentos e monitorações periódicas (EC 128 e EC 129) e análises não destrutivas na piscina do reator.

O bom comportamento sob irradiação desses combustíveis precursores deram suporte à decisão de abastecer o núcleo do Reator IEA-R1m com elementos combustíveis fabricados no IPEN. A estratégia adotada consistiu em introduzir, inicialmente, um único elemento combustível nacional no núcleo do reator e acompanhar seu desempenho, qualificando-o por etapas de queima. À medida que novas substituições de combustíveis do núcleo faziam-se necessárias, novos elementos combustíveis nacionais eram inseridos, considerando-os qualificados para operar até os níveis de queimas nos quais seus antecessores apresentaram desempenho seguro.

III. PROGRAMA DE ACOMPANHAMENTO DA IRRADIAÇÃO DOS ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS

Foi estabelecido um programa de acompanhamento da irradiação dos combustíveis nacionais consistindo nos seguintes procedimentos:

- Cálculos neutrônicos para determinação do fluxo e queima nos elementos combustíveis;
- Cálculos termo-hidráulicos para determinação da distribuição de temperatura no elemento combustível ;
- Monitoração da atividade dos radionuclídeos existentes na água da piscina do reator;
- Monitoração dos parâmetros químicos da água da piscina (pH, condutividade, cloretos)
- Inspeções visuais periódicas dos elementos combustíveis nacionais mais queimados;
- Testes de queda de barra absorvedora nos elementos combustíveis de controle ;
- Teste de sipping para verificar liberação de produtos de fissão do elemento combustível;
- Determinação de queima por espectrometria gama.

Relatórios trimestrais são realizados com as informações e análises coletadas no período.[4]

Cálculo Neutrônico. Cálculos neutrônicos são realizados de forma a determinar o fluxo médio de nêutrons (rápido e térmico) e a queima média a que está submetido cada elemento combustível. O histórico de operação do reator serve de base para este cálculo sendo observados a

posição do elemento combustível no núcleo, sua data de entrada e saída desta posição, e o tempo e potência de operação do reator. A Tabela 1 apresenta o histórico de operação de cada elemento combustível e sua queima no núcleo do reator IEA-R1m. Fig.1 e Fig.2 mostram, como exemplo, o fluxo térmico médio e a queima média para o EC-130.

TABELA 1. Dados Gerais de Irradiação dos Combustíveis

Elemento Combustível	Data da primeira entrada no reator	Data de saída do combustível do núcleo	Queima Média (% ²³⁵ U)	Queima Média (fissões por cm ³)
EC130	05/09/1988	02/07/1997	36,10	3,51•10 ²⁰
EC131	16/02/1989	02/07/1997	31,46	3,06•10 ²⁰
EC132	20/02/1990	02/07/1997	27,34	2,66•10 ²⁰
EC133	11/06/1990	02/07/1997	29,38	2,86•10 ²⁰
EC134	21/09/1990	19/12/1997	27,18	2,64•10 ²⁰
EC135	21/09/1990	02/07/1997	30,92	3,01•10 ²⁰
EC136	21/09/1990	19/12/1997	25,41	2,47•10 ²⁰
EC137	21/09/1990	operando	25,89	2,52•10 ²⁰
EC138*	25/11/1991	02/03/1998	27,75	2,70•10 ²⁰
EC139*	20/07/1992	02/03/1998	28,45	2,77•10 ²⁰
EC140	01/10/1993	operando	21,97	2,14•10 ²⁰
EC141	01/10/1993	operando	21,09	2,05•10 ²⁰
EC143	13/12/1994	operando	18,64	1,81•10 ²⁰
EC144	16/10/1995	operando	14,15	1,38•10 ²⁰
EC145	16/10/1995	operando	13,99	1,36•10 ²⁰
EC146*	16/09/1994	operando	20,52	1,99•10 ²⁰
EC147*	23/03/1995	operando	20,76	2,02•10 ²⁰
EC148	16/10/1995	operando	14,02	1,36•10 ²⁰
EC149	10/06/1996	operando	10,72	1,04•10 ²⁰
EC150	10/06/1996	operando	10,96	1,07•10 ²⁰
EC151	15/11/1996	operando	8,88	0,86•10 ²⁰
EC152	12/05/1997	operando	4,43	0,52•10 ²⁰
EC153	15/11/1996	operando	7,11	0,84•10 ²⁰
EC154	12/05/1997	operando	4,17	0,49•10 ²⁰

EC155	08/09/1997	operando	2,33	$0,27 \bullet 10^{20}$
EC156	08/09/1997	operando	3,13	$0,37 \bullet 10^{20}$
EC157	08/09/1997	operando	3,24	$0,38 \bullet 10^{20}$
EC158	08/09/1997	operando	3,15	$0,37 \bullet 10^{20}$
EC159	08/09/1997	operando	3,33	$0,39 \bullet 10^{20}$
EC160	08/09/1997	operando	2,25	$0,26 \bullet 10^{20}$
EC161	08/01/1998	operando	1,89	$0,22 \bullet 10^{20}$
EC162	08/01/1998	operando	1,42	$0,17 \bullet 10^{20}$
EC166*	02/03/1998	operando	< 1	$< 0,12 \bullet 10^{20}$
EC167*	02/03/1998	operando	< 1	$< 0,12 \bullet 10^{20}$

*. Elementos combustíveis de controle

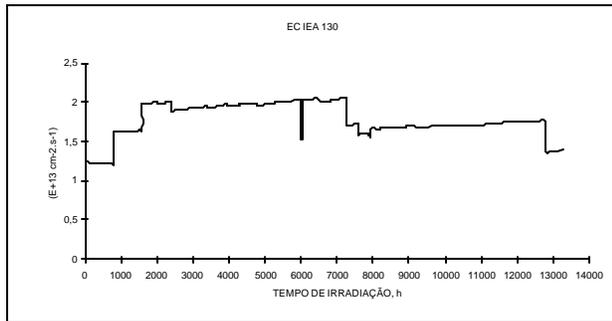


Figura 1. Fluxo Térmico Médio para o EC-130.

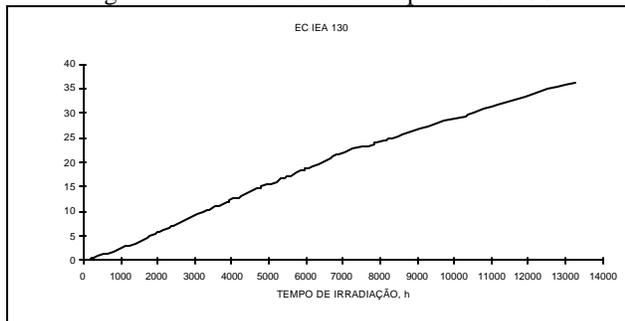


Figura 2. Queima Média do EC-130.

Cálculo Termo-hidráulico. As temperaturas da água de refrigeração na entrada e saída do núcleo e a vazão são monitoradas ao longo da operação do reator. Com base nesta informação e no histórico de potência são realizados cálculos termo-hidráulicos para determinar as temperaturas existentes em cada elemento combustível. Os valores de cálculo são baseados em valores nominais. Análises considerando incertezas e tolerâncias são realizadas para determinar valores máximos possíveis de ocorrência. A Tabela 2 apresenta um exemplo de valores típicos de temperatura para os elementos combustíveis mais quentes para operação do reator a 2 e a 5 MW.

TABELA 2. Valores Típicos de Temperatura

	2 MW	5 MW
Temperatura Máxima do Revestimento (nominal)	50 °C	75 °C
Temperatura Máxima no Cerne (nominal)	53 °C	78 °C
Temperatura Máxima do Revestimento (com incertezas)	73 °C	98 °C

Monitoração Radioquímica. Amostras de água da piscina do reator IEA-R1 são coletadas semanalmente e submetidas a análise radioquímica por espectrometria gama. A observação das concentrações de radionuclídeos como ^{131}I , ^{133}I , ^{137}Cs e o ^{239}Np , pode trazer informações sobre eventuais ocorrências de falhas no revestimento dos elementos combustíveis. Segundo o programa de acompanhamento, caso seja observada elevação anormal dos níveis de concentração destes radionuclídeos durante a operação do reator, a integridade do revestimento dos elementos nacionais deve ser examinada através de inspeções visuais e testes de “sipping”.

A água da piscina possui um B.G característico para os radionuclídeos que são indicativo de falha de revestimento. Mais de 100 combustíveis estão estocados na piscina do reator, sendo que alguns deles a mais de 40 anos, e os mais antigos apresentam pits de corrosão com pequena liberação de ^{137}Cs . [5] Não ocorreu, ao longo dos anos de operação dos combustíveis nacionais, qualquer mudança nas atividades médias observadas. A Fig.3 apresenta um exemplo desta atividade ao longo do tempo.

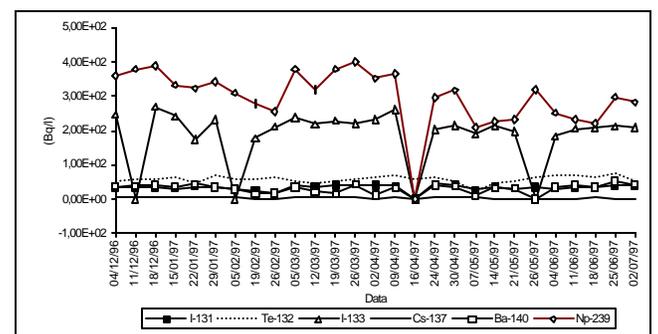


Figura 3. Atividades de Radionuclídeos na Água.

Monitoração de Parâmetros Químicos da Água. Como o revestimento do combustível é alumínio, as características químicas da água são importantes para determinar as taxas de corrosão. A especificação do reator impõe valores limites para pH, condutividade e concentração de cloretos ($5,5 < \text{pH} < 6,5$; condutividade < $2 \mu\text{S}/\text{cm}^2$; e cloretos < 0,2

ppm). Os valores observados ao longo de todos os anos de operação estão dentro dos valores especificados.

Inspecções Visuais. Periodicamente os elementos combustíveis mais queimados são submetidos a inspeções visuais para observação das condições gerais de suas superfícies externas. Danos estruturais causados durante o manuseio dos combustíveis ou corrosão acentuada nas superfícies das placas externas podem ser detectados por estas inspeções.

Os elementos a serem inspecionados são transportados até a piscina de estocagem do reator IEA-R1m, onde permanecem submersos a aproximadamente 2 metros do nível d'água. No início do programa de acompanhamento as inspeções visuais eram realizadas com auxílio de uma lente de aumento comum. Atualmente o IPEN dispõe de uma câmera de TV subaquática tolerante à radiação.

A inspeção visual permite identificar pontos relevantes sobre a qualificação e experiência operacional dos combustíveis no reator. Alguns itens observados foram:

i) *Liberção de H₂ da interface placa combustível placa suporte lateral.* Devido ao par galvânico e ao pequeno canal com água estagnada na região do cravamento da placa combustível na placa suporte lateral, há a liberaçõ de quantidade significativa de H₂ como conseqüência da oxidaçõ do alumínio.[6] Um procedimento foi estabelecido de forma que o elemento combustível seja inserido na piscina e permaneça sem entrar no núcleo por um período suficiente para passivaçõ e término (visual) de liberaçõ de H₂.

ii) *Tonalidade da camada de óxido sob irradiaçõ.* As placas combustíveis apresentam, na sua superfície, tonalidades desde cinza quase preto até cinza quase branco quando submetidas à irradiaçõ no reator. Esta tonalidade vai sendo mudada, ao longo do tempo, de escuro para claro e de claro para escuro dependendo do fluxo neutrônico e da temperatura local. Estas tonalidades estã associadas à espessura da camada de óxido formada. O material do revestimento é Al 1060, e a taxa de oxidaçõ depende da temperatura, condições da química da água e do fluxo de neutrons. A camada de óxido é bastante aderente e não se desprende quando atritada com uma escova ou pincel. A placa suporte lateral não apresenta a mesma figura de tonalidade pois, além de ser de liga Al-6262 que é mais resistente à corrosã, está a uma temperatura mais baixa que a placa combustível. O fenômeno de tonalidade escura e clara se tornou muito mais acentuado quando da operaçõ do reator a 5 MW. No entanto, esta observaçõ de tonalidade não caracteriza nenhum limite de qualificaçõ ou de desempenho do combustível em operaçõ no reator.

iii) *Corrosã por Pites.* A estocagem de combustíveis irradiados dentro da piscina é feita através do posicionamento destes em racks de aço inoxidável. No entanto, devido ao par galvânico aço do rack - alumínio do revestimento das placas combustíveis há o aparecimento de corrosã por pites nas placas combustíveis. Isto foi

observado nos combustíveis mais antigos que estã armazenados no reator a mais de 40 anos, mas também ocorreu com um combustível novo de fabricaçõ IPEN (EC-142). Este combustível, antes de irradiar, ficou estocado no rack da piscina por mais de um mês e se verificou o aparecimento de vários pites de corrosã nas placas combustíveis externas. Isto ocasionou a necessidade de rejeiçõ do combustível e impôs a necessidade de se trocar os racks de aço inox para alumínio. Hoje os combustíveis nacionais sã estocados em racks de alumínio dentro da piscina do reator. Isto não caracteriza problema no combustível mas um problema de engenharia de materiais resolvido com a substituiçõ do rack de aço inox para alumínio.

iv) *Deformações no elemento combustível.* não foi verificada qualquer deformaçõ visível nos elementos combustíveis como conseqüência da operaçõ no reator. A visualizaçõ dos canais de água, entre placas combustíveis, não demonstra qualquer deformaçõ quantificável à inspeçõ visual. Pequenos amassamentos na borda superior foram identificados como decorrente da interaçõ com a ferramenta de manuseio do elemento combustível.

Teste de Queda de Barra de Controle. Elementos combustíveis de controle (ECC) fabricados no IPEN também estã em processo de qualificaçõ sob irradiaçõ no reator IEA-R1m. Testes sã periodicamente realizados para verificar as características de queda das barras absorvedoras de nêutrons. Estes testes permitem obter as curvas do deslocamento, velocidade e aceleraçõ das barras ao longo de todo o percurso de queda dentro do ECC. Estas informações sã importantes para indicar eventuais ocorrências de atritos indesejáveis, emperramentos ou depreciações nas características do sistema de amortecimento de queda das barras de controle, o que indicaria deformações excessivas no ECC. As Fig.4, Fig.5 e Fig.6 apresentam um exemplo das curvas obtidas. Já foram fabricados 6 ECCs no IPEN para o reator IEA-R1m, sendo que 2 já foram retirados do núcleo sem demonstrar qualquer variaçõ no desempenho funcional da barra absorvedora de neutrons.

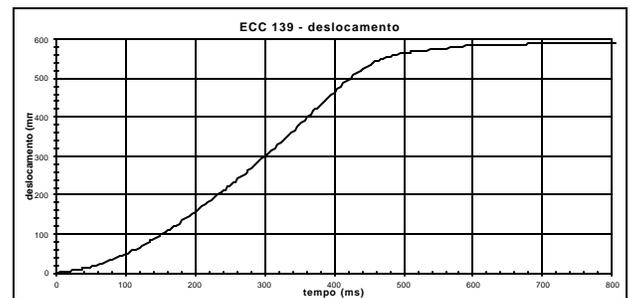


Figura 4 - Deslocamento do ECC 139 em regime de queda

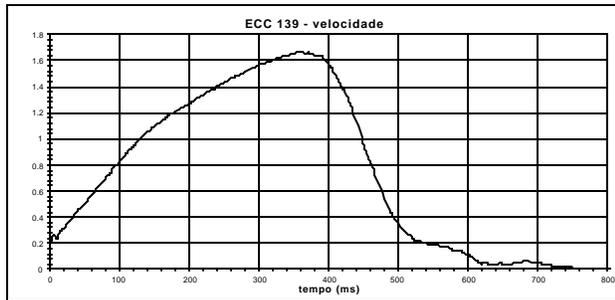


Figura 5 - Velocidade do ECC 139 em regime de queda

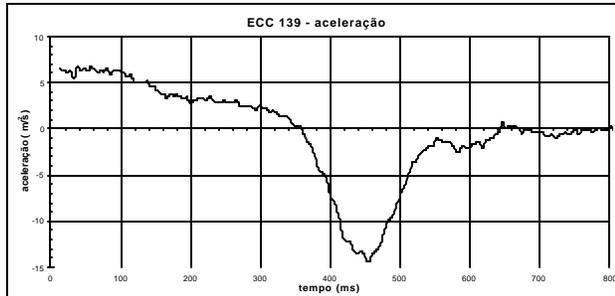


Figura 6 - Aceleração do ECC 139 em regime de queda

Teste de Sipping. Embora a análise radioquímica da água da piscina não indicasse qualquer aumento nos valores históricos das concentrações de radionuclídeos, foram realizados sipping nos EC-131 e EC-130 (primeiros combustíveis a sair do núcleo e com a maior queima). Não foi identificada qualquer atividade decorrente de liberação de produtos de fissão dos ECs. Isto qualifica o elemento combustível para queima alcançada e características operacionais do reator IEA-R1m a que estiveram sujeitos.

Determinação de Queima por Espectrometria Gama. A análise através de cálculos neutrônicos indica um valor médio de fluxo e de queima para o elemento combustível. Uma análise experimental, através da técnica de espectrometria gama com varredura, permite determinar o valor absoluto e a distribuição real de queima no elemento combustível. [7]. A tabela 3 apresenta os resultados obtidos para os EC-130, EC-131 e EC-132. Desta tabela podemos verificar que os valores medidos experimentalmente encontram-se próximos aos valores médios calculados e que a queima máxima (localizada) no elemento EC-130 (maior queima) foi de aproximadamente 50% em ^{235}U . Este valor de queima foi o adotado como limite de qualificação atual dos elementos combustíveis de fabricação IPEN/CNEN-SP.

TABELA 3. Resultados de Queima Medidos por Espectrometria Gama.

Elemento Combustível	Queima Média Calculada (% em ^{235}U)	Queima Média Medida (% em ^{235}U)	Relação Pico/Média Medido
EC-130	36,10	36,8 ± 5,1	1,37

EC-131	31,46	28,9 ± 4,7	1,27
EC-132	27,34	30,9 ± 4,8	1,18

IV. CONCLUSÕES SOBRE A QUALIFICAÇÃO DOS COMBUSTÍVEIS

Em setembro de 1988 o primeiro elemento combustível completo fabricado no IPEN, denominado EC130, entrou em operação no reator IEA-R1m. Na época o reator operava em regime de 8 horas diárias de operação, 5 dias por semana, a uma potência nominal de 2 MW. Em julho de 1997, com o reator operando em regime de 64 horas contínuas semanais a 2 MW, o elemento EC-130 encerra seu ciclo de operação, atingindo uma queima média de 36 % de ^{235}U e uma queima máxima de cerca de 50% de ^{235}U , tendo apresentando um desempenho satisfatório durante todo o período em que permaneceu operando no núcleo do reator.

Com a retirada do elemento EC-130 conclui-se a qualificação dos combustíveis de sua categoria, ou seja, elementos tipo dispersão de $\text{U}_3\text{O}_8 - \text{Al}$ com $1,9 \text{ gU/cm}^3$ (abrange elementos EC130 a EC151).

Em maio de 1997, com a entrada no núcleo do elemento EC-152, inicia-se a qualificação dos elementos combustíveis nacionais tipo dispersão de $\text{U}_3\text{O}_8 - \text{Al}$ com $2,3 \text{ gU/cm}^3$. No segundo semestre de 1997 o reator IEA-R1 sofreu inúmeras reformas, teve sua potência aumentada de 2 MW para 5 MW e seu núcleo já constituía-se totalmente de elementos combustíveis nacionais.

A qualificação dos combustíveis de fabricação IPEN/CNEN-SP continua até que um elemento combustível desta nova série alcance a queima limite de 50% em ^{235}U para as condições operacionais atuais do reator.

Os resultados alcançados até o momento permitem concluir que o IPEN/CNEN-SP fabrica combustíveis adequados e qualificados para operação segura do Reator IEA-R1m.

REFERÊNCIAS

[1] Perrotta, J.A.; **Estratégia de Utilização de Combustíveis Tipo MTR de Alto Teor de Urânio para Operação do Reator IEA-R1 a 5 MW**; VI CGEN, Rio de Janeiro, Brasil, Outubro de 1996.

[2] Perrotta, J.A.; Lainetti, P.E.O.; **Program of Converting IEA-R1 Brazilian Research Reactor from HEU to LEU**; 19th RERTR International Meeting, Seoul, Korea, 5-10 October 1996.

[3] Perrotta, J.A.; Mattos, J.R.L.; Hayashi, C.S.; Silva, A.T.; Riella, H.G.; **Qualificação sob Irradiação dos Combustíveis tipo MTR de $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$ de Fabricação IPEN/CNEN-SP no Reator IEA-R1**; III CGEN, Rio de Janeiro, Brasil, Julho de 1990.

[4] **Acompanhamento da Irradiação dos ECs Nacionais no Reator IEA-R1**; Relatórios Internos da Divisão de Engenharia do Núcleo da Diretoria de Reatores do IPEN/CNEN-SP.

[5] Perrotta,J.A; Terremoto,L.A.A; Zeituni,C.A; **Experience on Wet Storage Spent Fuel Sipping at IEA-R1 Brazilian Research Reactor**; IAEA Technical Committee Meeting to Collect and Evaluate Information on Procedures and Techniques for the Management of Failed Fuels from Research and Test Reactors; Budapest, Hungary, 29-31 October 1996.

[6] Perrotta,J.A; Yoshimoto,A; Riella,H.G; Souza,J.A.B; Durazzo,M; Jardim,E.A; **Fenômenos de Liberação de Hidrogênio de Elementos Combustíveis tipo MTR Observados no Reator IEA-R1**; III CGEN, Rio de Janeiro, Brasil, Julho de 1990.

[7] Terremoto,L.A.A; Zeituni,C.A; Perrotta, J.A; **Espectrometria Gama em Elementos Combustíveis Tipo Placa Irradiados**; XI ENFIR, Poços de Caldas, Brasil, 18-22 Agosto 1997.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem a todos os funcionários do Departamento de Combustível Nuclear, da Divisão de Engenharia do Núcleo, e da Divisão de Operação do Reator IEA-R1m do IPEN/CNEN-SP que contribuíram direta ou indiretamente no projeto, desenvolvimento, fabricação, irradiação e qualificação dos combustíveis para o reator IEA-R1m, ao mesmo tempo que os felicitam por esta conquista.

ABSTRACT

IPEN/CNEN-SP produces, for its IEA-R1m Research Reactor, MTR fuel assemblies based on U_3O_8 -Al dispersion fuel plates. Since 1988 a qualification program for this fuel has been performed. This paper describes the experience and results achieved by this fuel under irradiation at IEA-R1m Research Reactor.