

COMPARAÇÃO ENTRE AS DIFERENTES ESPECIFICAÇÕES PARA COMBUSTÍVEIS NA FORMA DE DISPERSÕES DE SILICETOS EM ALUMÍNIO

Glaucia Regina Tanzillo Santos* e Paulo Ernesto O. Lainetti**

*IPEN/CNEN

Caixa Postal 11049

05422-970, São Paulo, SP, Brasil

e-mail: grsantos@net.ipen.br

**IPEN/CNEN

Caixa Postal 11049

05422-970, São Paulo, SP, Brasil

e-mail: lainetti@net.ipen.br

RESUMO

O aumento de potência do reator IEA-R1, utilizado entre outras finalidades para a produção de uma série de radioisótopos de emprego na medicina, de 2 para 5 MW consiste de uma série de atividades, entre as quais alterações no combustível que é fabricado atualmente no IPEN. Nos dias de hoje, os elementos combustíveis são constituídos de placas contendo dispersões de U_3O_8 em uma matriz de alumínio. Este trabalho faz uma compilação das informações disponíveis, bem como a discussão dos parâmetros utilizados pelos diversos fabricantes, como forma de subsidiar o programa de desenvolvimento em curso.

INTRODUÇÃO

O trabalho de pesquisa bibliográfica descrito neste artigo insere-se no Programa de Desenvolvimento de Combustíveis à base de dispersões, da Coordenadora de Tecnologia de Combustíveis (MC), tendo como meta o desenvolvimento do combustível U_3Si_2 -Al.

O presente artigo focaliza a padronização das especificações dos combustíveis com alta densidade de urânio e baixo enriquecimento (LEU) para os reatores de pesquisa.

As principais características físico-químicas estão sintetizadas e referenciadas em tabelas para facilitar a visualização e interpretação dos resultados. Os dados apresentados são de alguns trabalhos de pesquisa ou de especificações segundo seus autores, e servem como referência para dar andamento ao trabalho proposto.

HISTÓRICO

Preocupações devido a possíveis desvios de combustível nuclear para fins não pacíficos começaram a se fazer presentes por volta dos anos 70. Com isso, países dominadores de Tecnologia Nuclear iniciaram programas de desenvolvimento de combustíveis com baixo enriquecimento (< 20% em ^{235}U).

O programa denominado RERTR (Reduced Enrichment Research and Test Reactor) teve início em 1978 e tem sido gerenciado pelo Departamento de Energia (DOE) dos Estados Unidos da América, que continua a coordenar o programa, juntamente com a Agência de Controle de Armas e Desarmamento (ACDA), o Departamento de Estado (DOS) e a Comissão de Regularização Nuclear (NCR).

O objetivo principal do programa RERTR consiste em duas metas:

- 1) aumento do conteúdo de urânio nos combustíveis comumente usados;
- 2) desenvolvimento de novas dispersões combustíveis com alta densidade de urânio sem, com isso, prejudicar o desempenho e comprometer a segurança dos reatores em funcionamento.

Um tipo de combustível utilizado nos reatores MTR com baixo enriquecimento (LEU="Low Enrichment Uranium" - < 20% de ^{235}U) são as dispersões de compostos de urânio-silício em alumínio, ou seja, o U_3Si_2 -Al e o U_3Si -Al, que têm um grande potencial para satisfazer os objetivos deste programa pois possuem alta densidade de urânio (variando de 11,9 a 15,0 g/cm³, dependendo da composição).

As principais razões para a utilização do silício são [1]:

- boa resistência à corrosão;
- baixo coeficiente de absorção de nêutrons.

O U_3Si (3,9 % peso de Si) e o U_3Si_2 (7,3% peso de Si), obtidos por fusão da mistura de urânio e silício nas quantidades adequadas, aparecem como compostos que satisfazem as metas do Programa de Redução do Enriquecimento para Reatores de Pesquisa e Testes (RERTR).

A seguir, relacionamos alguns dos reatores que fazem parte do programa:

- reator SSR na Romênia;
- reator GRR-1 na Grécia;
- reator R-2 na Suécia;
- reator KUR no Japão;
- reator NRU no Canadá;
- reator ORR nos EUA
- reator SILOE na França

Enquanto a maioria dos combustíveis HEU tem cerca de 20% em volume da fase dispersa no combustível com um máximo ao redor de 33% em volume, a maioria dos combustíveis LEU tem 45% em volume, o que é considerado o atual limite de fabricação. As densidades de urânio correspondentes a 45% em volume são as seguintes:

$$d_{U_3Si_2} = 5,1 \text{ g/cm}^3$$

$$d_{U_3Si} = 6,6 \text{ g/cm}^3$$

Com o aumento da percentagem em volume da fase dispersa no combustível, as dificuldades de fabricação aumentam rapidamente. Tais dificuldades estão relacionadas com "pontos brancos" (heterogeneidades na distribuição de urânio), defeitos no núcleo como trincas e "dogboning", variações na espessura do revestimento, etc. Por este motivo, caso as especificações utilizadas para HEU não sejam mudadas, os custos de fabricação do combustível LEU serão muito maiores em comparação com os elementos combustíveis HEU.

Para limitar o número de placas e/ou elementos combustíveis refugados ou rejeitados, esforços têm sido empregados para reduzir, onde for possível e aceitável, as exigências das especificações o que limitará o aumento no preço de fabricação do combustível LEU, sem prejuízo da segurança.

Um dos parâmetros mais importantes para a qualificação de um combustível, para certos limites de operação, é o comportamento quanto ao inchamento em função do "burnup". No caso do U_3Si_y , a taxa de inchamento é influenciada [2]:

- pela relação em volume das fases U_3Si/U_3Si_2 ;
- pela porosidade;
- pela % em volume do U_3Si_y no combustível.

A tabela 1 apresenta dados referentes às densidades das fases mais prováveis quando se trabalha com dispersões de silicetos.

- elevada densidade de ^{235}U
- bom comportamento sob irradiação
- facilidade de fabricação

Tabela 1: Densidade aparente (g/cm^3) [3]

U_3Si_2	~5,8
USi_3	3,7
USi	~5,6
USi_2	4,4

As características físicas dos pós de U_3Si_2 e U_3Si estão apresentadas nas tabelas 2, 3 e 4.

Otimização dos combustíveis à base de silicetos [4]

Os operadores de reator que decidiram utilizar combustíveis de silicetos para a conversão do núcleo, escolheram o combustível U_3Si_2 . Tal escolha foi necessária para a obtenção de um melhor balanço entre os seguintes requisitos:

O elevado carregamento de urânio e, consequentemente, o aumento do conteúdo da energia específica, proporcionam uma redução do nº de elementos combustíveis que são queimados por ano, aumentando assim a sua vida útil e, dessa forma, levando à redução do número de elementos combustíveis fabricados.

Na tabela 5 são mostradas as características químicas dos pós de U_3Si_2 .

CARACTERÍSTICAS DAS PLACAS COMBUSTÍVEIS [4,2]

Para exemplificar a placa padrão contendo siliceto poderia ser citado o combustível do reator OSIRIS, que apresenta as dimensões constantes da tabela 6:

(Densidade de urânio padrão de $4,8 \text{ g/cm}^3$ com combustível de dispersão de U_3Si_2)

Observações	
* - especificação ANL	** - pó atomizado (Langmuir)
@ - especificação R2 (Studsvik)	## - fundido à arco (Langmuir)
# - especificação ORR (Oak Ridge Reactor)	&& - fundido à arco
\$ - pó atomizado (BET)	// - pó atomizado (técnica: único ponto)
(*) - pó fundido à arco (técnica: único ponto)	

♣ - NAZARÉ	+++ - B&W
+ - CERCA	++ - NUKEM
♦ - NUKEM	

Tabela 2: Características dos pó de U_3Si_2 e U_3Si

Material	área de sup esp.(m ² /g)	Tam. médio part.(µm)	dens. (g/cm ³)	Urânio total(%)	Silício (% peso)	Enriq. (% peso)	referência
U_3Si_2					7,5+0,4 -0,15	19,75 ± 0,2	[2;10]/
U_3Si			14,95	95,5	4,0		[11]
U_3Si_2		44 -149					[2]
U_3Si		≤ 150				19,75 ± 0,2	[2]
$U_3Si_2^*$ (<44µ)		25% peso máximo	—		7,5 + 0,4 - 0,2	19,75 ± 0,2	[10] (ANL)
$U_3Si_2\#$ (<44µ)		18,18 % peso máximo	12,02		7,398	19,872	[10] (ORR)
$U_3Si_2@$ (<44µ)		23,04 % peso máximo	12,16		7,420	19,762	[10] (R2)
U_3Si_2		44-149 (85%) <44(15%)					[13]
U_3Si_2		44-150(75%) <44(25%)					[7]
U_3Si_2		<40 ou 44 (15-40%)					[5]
U_3Si_2		<44(15-40%) 125 à 150			7,3 ± 0,2		[6]
U_3Si_2		<2	11,8 à 12				[14]
$U_3Si_2\&\&$	0,1091						[6,15]
$U_3Si_2\ S$	0,0694						[6,15]
$U_3Si_2^{**}$	0,1559						[6,15]
$U_3Si_2^{##}$	0,2164						[16;6]
Si		50					[3]
U		25					[3]
U_3Si_2		<150µm					[9]
U_3Si_2		87,8 µm					[15]
$U_3Si_2\ //$	0,042						[15]
$U_3Si_2\ (*)$	0,700						[15]

Tabela 3 : Características físicas do U_3Si e U_3Si_2

material	coeficiente de expansão	calor específico J/KgK	referência
U_3Si_2	$15,2 \times 10^{-6}/^{\circ}C$	$199 + 0,104T$	[5]
U_3Si	$15,8 \times 10^{-6}/^{\circ}C$	$171 + 0,19T$	[5]
U_3Si_2		$0,0416 \text{ cal/g}^{\circ}C$	[12]
U_3Si		$0,0359 \text{ cal/g}^{\circ}C$	[12]

Tabela 4: Características dos pós de U_3Si_2 e U_3Si

Material	dens. U (45%v) g/cm^3	quant.máxima da 2ª fase (%v)	porosidade (% vol)	pressão de compactação (Kg/mm2)	dureza (dph)	coeficiente de expansão térmica médio	referência
U_3Si_2	5,1						[2]
U_3Si	6,6						[2]
U_3Si_2		2-3%vol Uss 10%vol U_3Si 15%vol. USi					[5]
U_3Si_2			~14	~35 à 70			[13]
U_3Si_2					742		[5]
U_3Si					265		[5]
U_3Si_2			4 à 10				[6]
U_3Si_2						$15,2 \times 10^{-6}^{\circ}C$	[7]
U_3Si						$15,8 \times 10^{-6}^{\circ}C$	[7]
U_3Si_2	5,0						[8]
$U_3Si_2 +$			4				[5]
U_3Si_2++			7 - 8				[5]
U_3Si_2+++			9 -10				[5]
U_3Si_2					550 ± 30		[9]
$\clubsuit U_3Si_2$					200 ± 6		[9]
$\diamond U_3Si_2$					883		[9]

Tabela 5: Níveis máximos de impurezas

U_3Si (ppm)	Al - 600 Co - 10 Cu - 80 Fe + Ni - 1000 N - 500 B - 10 C - 1000 Cd - 10 O - 7000 Zn - 1000 Li - 10 H - 200 outros elementos - 500 total - 2500				referência
U_3Si_2 (ppm)	Al - 600 C - 1000 N - 1700 Fe + Ni - 1000 O - 7000				[6]
Urânio (*)	B - 0,1 Cr - 18 C - 600 Si - 100 Cu - 20 Fe - 60 Mn - 8 Ni - 15				[3]
Urânio 99,5%	C - 20 Fe - 54 Cu - 27 H - 7 Si - 10 Ni - 37 Mg - 12				[6]
U_3Si (ppm)	Al < 100 B < 1,6 C < 640 Zn < 10 Cu - 100 Cd < 5 Co < 10 Ni < 50 Li < 5 Fe - 250				[11]
U_3Si_2 (ppm) (ANL)	C - 1000 Cd - 10 Fe + Ni - 1000 Zn - 100 Al - 200 Co - 10 H - 200 O - 7000 B - 10 Cu - 80 Li - 10 N - 500				[10]
U_3Si_2 (ppm) (ORR)	C - 620 Cd < 0,5 Fe+Ni - 11 Zn - 18 Cu - 7 Al - 5 Co < 5 Li - 76 O - 806 B - 5				[10]
U_3Si_2 (ppm) (R_2)	C < 10 Cd < 0,5 Fe + Ni - 278 Al - 12 Co < 5 H - 0,001 O - 400 B < 0,5 Cu - 15 N - 13 N < 20				[10]

Tabela 6: Dimensões da placa combustível

Espessura média do revestimento
0,38 ± 0,08 mm
Espessura mínima de revestimento
0,25 mm
Espessura do revestimento
0,34 - 0,35 mm
Espessura para o corpo
0,58 - 0,59 mm
Espessura da placa
1,27 mm
Espessura do núcleo
0,51 mm

CONCLUSÃO

Como pudemos verificar, as especificações, principalmente no que diz respeito às impurezas químicas, são bastante diversificadas, dependendo do fabricante. A razão dessas diferenças está nos diferentes processos de fabricação adotados em cada país e/ou matéria primas de partida. É óbvio que o teste definitivo em termos de combustíveis é a irradiação e a avaliação do desempenho operacional no combustível pós-irradiado. Na ausência destes, a experiência internacional acumulada é um bom ponto de partida. Devido à diversidade encontrada entre os diversos fabricantes, e que tiveram seus combustíveis testados satisfatoriamente, podemos concluir que existe uma larga faixa de parâmetros, para as especificações, que atende plenamente aos requisitos operacionais do combustível, principalmente quanto às propriedades químicas do pó de U_3Si_2 . Conclui-se que, com vistas à redução dos custos de fabricação de combustíveis, sempre que possível, as especificações devem ser abrandadas, merecendo uma revisão freqüente. A experiência de fabricação, aliada à avaliação do desempenho operacional, é permitirá aumentar ou diminuir as restrições em bases mais racionais, levando-se em conta as condições existentes em cada fabricante.

REFERÊNCIAS

[1] - SIMÕES, A.V.- Verificação da utilização dos combustíveis à base de dispersões U-Si em reatores MTR - Relatório interno Copesp

[2]- Standardization of specifications and inspection procedures for LEU plate-type research reactor fuel-IAEA-TECDOC-467.

[3] - ACCARY,A.; DUBUISSON,J. and HUMBERT,J. "Process for Preparing Shaped Articles of Uranium Silicides".- United States Patent N° 3,142,533. July 28,1964.

[4] - ROSKILDE, D. - "Reduced enrichment for research and test reactors." -ANL/RERTR/TM-19 CONF-9209266.

[5] - SNELGROVE,J.L.; DOMAGALA,R.F.; HOFMAN,G.L.; AND WIENCEKCEK,T.C.; COPELAND,G.L.;HOBBS,R.W. AND SENN,R.L.- "The use of U_3Si_2 dispersed in aluminium in plate - type fuel elements for research and test reactors.- oct. 1987."ANL/RERTR/TM- 11.

[6] - KIM,C.K.;KIM,K.H.; JANG,S.J.;JO,H.D.; KUK,I.H.- "Characterization of atomized U_3Si_2 powder for research reactor". - Korea Atomic Energy Research Intitute, Tejon, Korea.

[7] - NAZARE,S.- "Low Enrichment Dispersion Fuels for Research and Test Reactors." J.NUCL.MAT. 124(1984) 14-24

[8] - THAMM,G.- "The Status of German Program and thoughts toward a Nationally and Internationally Coordinated termination of the program". GERMANY

[9] - Proceedings of the 1984 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and test reactors. ANL/RERTR/TM-6 - CONF - 8410173.

[10] - BOGACIK, K. AND BUYRNE, R.G. - "Fabrication of demonstration LEU fuel elements at Babcock and Wilcox. - Research and Test Reactors fuel elements facility- USA". ANL/RERTR/TM-6.

[11] - MTR NEWSLETTER N° 9 - NUKEM -october. 1984.

[12]- "The properties and irradiation behavior of U_3Si_2 ."- ATOMICS INTERNATIONAL (AI) - NAA-SR-10621.

[13] - DOMAGALA,R.F.;WIENCEK,T.C. AND TRESH, H.R. - "U-Si and U-Si-Al dispersion fuel alloy development for research and test reactors."

[14] - TAYLOR, K.M. - "Synthesis and fabrication of refractory uranium compounds." - Research and Development Division Carborundum Company Niagara Falls, N.Y.- ORO-400

[15] - ROSKILDE,D. - "Reduced Enrichment for Reserch and Test Reactors". - ANL/RERTR/TM-19 - CONF-9209266.

ABSTRACT

In this paper is presented a comparison among different specifications for research reactors fuel elements, contituted by aluminium dispersed uranium silicide, produced by some manufactures in the world. This work is an important tool in the ongoing development activities at IPEN to increase the uranium loading in fuel elements for IEA-R1 research reactor. A small review of the activities since the beginning of RERTR up to now and the results obtained for fuel elements with higher uranium loading are briefly described.