

DETERMINAÇÃO QUANTITATIVA DA HOMOGENEIDADE DA DISTRIBUIÇÃO DE URÂNIO EM PLACAS COMBUSTÍVEIS TIPO MTR

F. B. J. Ferrufino; M. Durazzo

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN/CNEN-SP
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária – São Paulo – SP
CEP: 05508-000 – fberr@ipen.br

RESUMO

O IPEN-CNEN/SP produz o combustível para suprir o seu reator nuclear de pesquisas IEA-R1. O combustível é montado a partir de placas combustíveis contendo um núcleo do composto U_3Si_2-Al . Uma boa homogeneidade na distribuição de urânio no núcleo da placa combustível é importante sob o ponto de vista de desempenho sob irradiação. Considerando a baixa potência do reator IEA-R1, atualmente a distribuição de urânio na placa combustível é avaliada apenas por inspeção visual de radiografias. Contudo, tendo em vista a possibilidade do IPEN fabricar o combustível para o novo Reator Multipropósito Brasileiro (RMB), que terá potência elevada, tornou-se inadiável o desenvolvimento de uma metodologia para determinar quantitativamente a homogeneidade da distribuição de urânio no combustível. Este trabalho apresenta uma metodologia baseada na atenuação de Raios-X, quantificando-se a distribuição da concentração de urânio no núcleo da placa combustível por meio da análise da densidade óptica de radiografias e comparação com padrões.

Palavras-chave: radiografia, densitometria, placa combustível, combustível nuclear

INTRODUÇÃO

Com as restrições na comercialização de urânio altamente enriquecido (acima de 90% em ^{235}U) ⁽¹⁾, tornou-se necessário o aumento da quantidade de urânio em cada elemento combustível, com o grau de enriquecimento obrigatório de 20% em ^{235}U . Esta situação conduziu ao desenvolvimento de novos combustíveis utilizando tipos diferentes de núcleos, que possibilitaram a incorporação de grandes quantidades de urânio em cada placa combustível ⁽²⁾. Desta nova geração, o U_3Si_2 , permitiu a fabricação de placas combustíveis com a imediata elevação da densidade de urânio no combustível para $3,0 \text{ gU/cm}^3$. Esse é o tipo de combustível fabricado atualmente pelo IPEN-CNEN/SP para suprir o reator de pesquisas IEA-R1.

O reator IEA-RI, utiliza elementos combustíveis tipo MTR com placas combustíveis fabricadas por laminação de um conjunto formado por núcleo, moldura e revestimento ⁽³⁾. A homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo da placa combustível é avaliada por meio de uma simples inspeção visual e comparação com uma imagem da radiografia do padrão de aceitabilidade vista na Fig. 1, sendo a pior radiografia em termos de homogeneidade escolhida entre 180 placas irradiadas no reator IEA-R1, com bom desempenho.

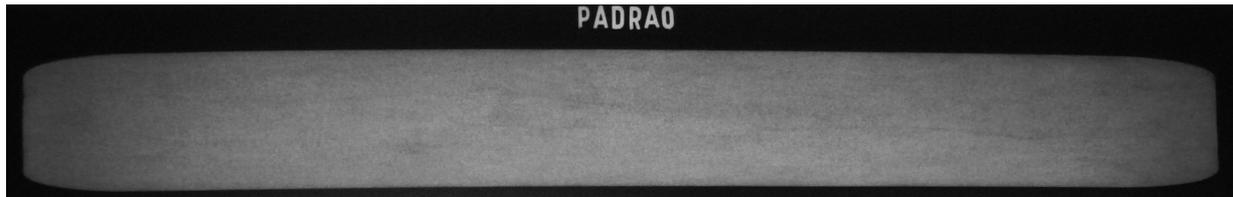


Figura 1 - Imagem de radiografia ilustrando o padrão de aceitabilidade.

Este procedimento de qualificação, sendo subjetivo, deixa margem a infundáveis discussões acerca da aceitabilidade de placas combustíveis avaliadas quanto à homogeneidade da distribuição de urânio. A Fig. 2 apresenta exemplos de radiografias onde a homogeneidade da distribuição de urânio é visualmente superior ao padrão (Fig. 2A) e igual ou inferior ao padrão (Fig. 2B), levando, à reprovação e rejeição da qualidade da homogeneidade da distribuição de urânio da placa combustível.

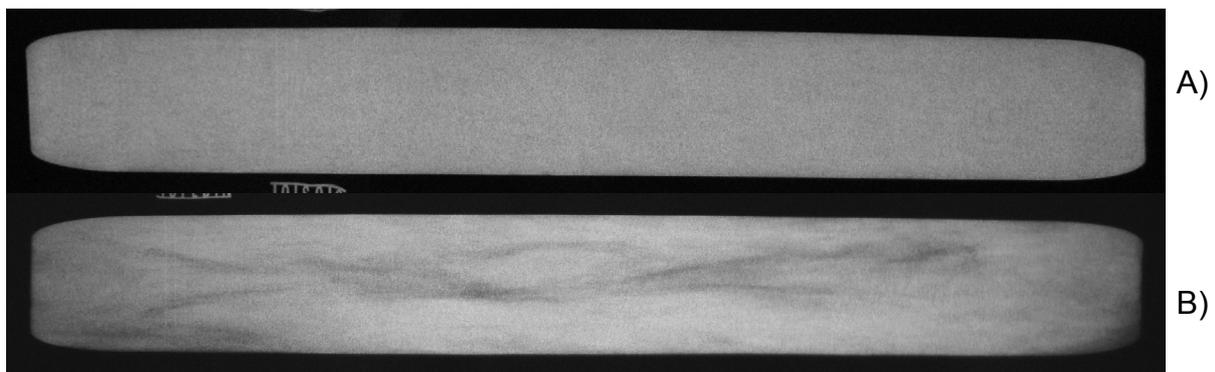


Figura 2 – Radiografias ilustrando a homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo da placa combustível.

(A) homogeneidade superior ao padrão, (B) homogeneidade inferior ao padrão

A especificação técnica do combustível ⁽⁴⁾ define valores para a concentração superficial de ²³⁵U, conforme mostra a Tab. 1, sendo a faixa de aceitabilidade de $\pm 12\%$ para a Zona 1 (zona central) e de $\pm 25\%$ para a Zona 2 (zona de defeitos

terminais, nas extremidades do núcleo) do valor nominal especificado na tabela para o núcleo da placa combustível, cuja geometria está especificada no desenho da placa combustível ⁽⁵⁾.

Tabela 1 - Valores especificados para a densidade de ²³⁵U por unidade de área no núcleo combustível.

Material da Dispersão	Densidade de Urânio	Densidade Superficial de ²³⁵ U (mg ²³⁵ U/cm ²)	ZONA 1 (± 12%) (mg ²³⁵ U / cm ²)	ZONA 2 (± 25%) (mg ²³⁵ U / cm ²)
U ₃ Si ₂	3,0 gU/cm ³	41,2	36,3 – 46,1	30,9 – 51,5

Devido à importância da homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo de placas combustíveis, principalmente no caso de reatores de pesquisas de potência elevada, como o RMB, o objetivo deste trabalho é desenvolver e implantar uma metodologia que possibilite a determinação quantitativa da densidade superficial de ²³⁵U ao longo do núcleo de placas combustíveis.

MATERIAIS E MÉTODOS

O Centro do Combustível Nuclear do IPEN/CNEN-SP possui equipamentos de radiografia industrial, de processamento automático de filmes radiográficos e de medição de densidade óptica. Assim, a atenuação de Raios-X foi o método escolhido para caracterizar a homogeneidade dos núcleos combustíveis, gerando uma imagem bidimensional do núcleo da placa combustível. Os diferentes níveis de cinza na imagem fornecem informação sobre a atenuação ao longo de uma trajetória num espaço tridimensional, na direção da espessura da placa combustível, associada à densidade do material atravessado e, por conseguinte, neste caso, à distribuição de urânio no núcleo. Uma placa combustível é considerada não homogênea se, em algum ponto dela, detecta-se uma concentração de urânio maior ou menor do que os limites especificados, apresentados na Tab. 1, para o caso do reator IEA-R1.

O valor nominal especificado para a densidade superficial de ²³⁵U é calculado de acordo com a massa de urânio total que compõe uma placa combustível, dividida pela área nominal do seu núcleo. A Tab. 1 mostra os valores válidos para o combustível fabricado pelo IPEN, permitindo avaliar quantitativamente a homogeneidade da distribuição de urânio nas placas combustíveis, aprovando-as ou rejeitando-as a partir de um método de controle.

A metodologia proposta neste trabalho utiliza a avaliação densitométrica da radiografia do núcleo da placa combustível, realizada com o auxílio de um densitômetro óptico de transmissão MacBeth TD-904, com janela de abertura 2 mm, obtendo-se o valor de densidade óptica, como expressa a Eq. (A):

$$DO = \log \frac{I_0}{I} \quad (A)$$

onde: **DO** = Densidade Óptica

***I*₀** = Intensidade de luz incidente

I = Intensidade de luz transmitida

Foram usadas como padrões peças usinadas a partir de um tarugo da liga de urânio-alumínio (15,1 mm de diâmetro), fabricada com 30% em peso de urânio, composição que foi verificada por meio de análise química para determinação de U total. Foram fabricados 9 padrões com espessuras entre 1,0 e 4,0 mm. Todos os padrões são posicionados juntamente com a placa combustível sobre o mesmo filme radiográfico na região central da superfície de exposição. Sobre e sob cada padrão de liga U-Al, é colocada uma folha de alumínio do mesmo material (atualmente Al 6061) e com a mesma espessura do revestimento nominal da placa combustível, de 0,38 mm ou 380 µm. A faixa de espessura dos padrões abrange os valores máximos e mínimos de ²³⁵U/cm² especificados para o núcleo da placa combustível, possibilitando a construção de uma curva de calibração bem caracterizada.

As radiografias são obtidas nas condições de 70 kV para a energia do feixe de Raios-X, 14,0 mA para a corrente do feixe e 257 segundos (4'17" minutos) para o tempo de exposição. Sob estas condições obtém-se o máximo contraste possível. A radiografia é revelada por um processo automatizado.

A região do núcleo na radiografia revelada é dividida em 360 áreas de 1cm², definindo-se 60 colunas e 6 linhas, como ilustra a Fig. 3. Utilizando-se o densitômetro de transmissão realiza-se, no centro de cada centímetro quadrado traçado na radiografia, uma leitura de densidade óptica, como ilustra a imagem da Fig. 3. São obtidos cinco valores das densidades ópticas dos padrões, em quatro posições ao redor do ponto central. É calculada a média aritmética das leituras obtidas em cada um dos padrões. Nenhuma densidade óptica obtida do núcleo combustível é descartada.

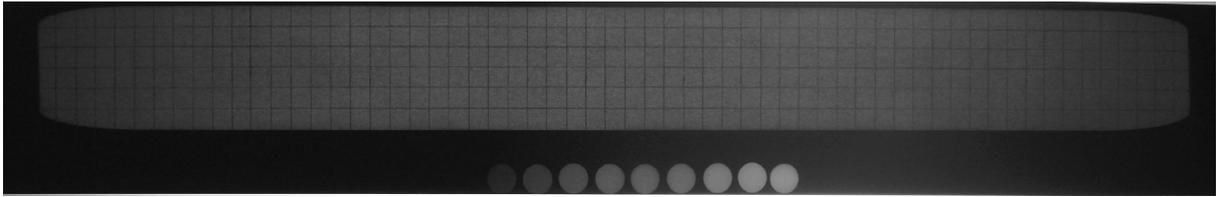


Figura 3 - Radiografia típica com o conjunto de padrões, devidamente traçada para coleta de medidas

Uma vez conhecida a concentração de urânio na liga usada na confecção dos padrões, massa, área superficial do padrão e o grau de enriquecimento do combustível, pode-se determinar a densidade superficial de ^{235}U nos padrões, conhecendo-se as suas espessuras, segundo a Eq. (B). É, então, construída uma curva de calibração correlacionando-se a densidade óptica lida no padrão com a concentração superficial de ^{235}U correspondente. Finalmente, por meio do uso da curva de calibração, as densidades ópticas medidas na radiografia do núcleo da placa combustível podem ser transformadas em valores de densidade superficial de ^{235}U (D_{SU}).

$$D_{SU} = \frac{(m_{pad} \times C_{U\text{Liga}} \times C_{235U})}{A_{pad}} \quad (B)$$

onde:

D_{SU} = densidade superficial de ^{235}U ($\text{mg } ^{235}\text{U}/\text{cm}^2$)

m_{pad} = massa do padrão (mg),

$C_{U\text{Liga}}$ = concentração de urânio da liga usada para os padrões (% em massa),

C_{235U} = enriquecimento, ou porcentagem em massa de ^{235}U (% em massa),

A_{pad} = área do padrão (cm^2).

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Foi calculada a densidade de urânio superficial em cada um dos padrões, segundo a Eq. (B). As densidades ópticas obtidas de cada um dos padrões (cinco medidas) foram plotadas contra suas respectivas densidades superficiais de ^{235}U , obtendo-se uma curva de calibração construída por meio do ajuste de uma curva aos dados experimentais. Foi utilizada regressão polinomial de grau quatro, expressa segundo a relação apresentada na Eq. (C). A figura 4 apresenta uma curva de calibração típica, a qual gerou a Eq. (C).

$$D_{SU} = 247,7 - 286,1 \times DO + 123,8 \times DO^2 - 12,8 \times DO^3 - 2,8 \times DO^4 \quad (C)$$

Onde:

D_{SU} = densidade superficial de ^{235}U ,

DO = densidade óptica.

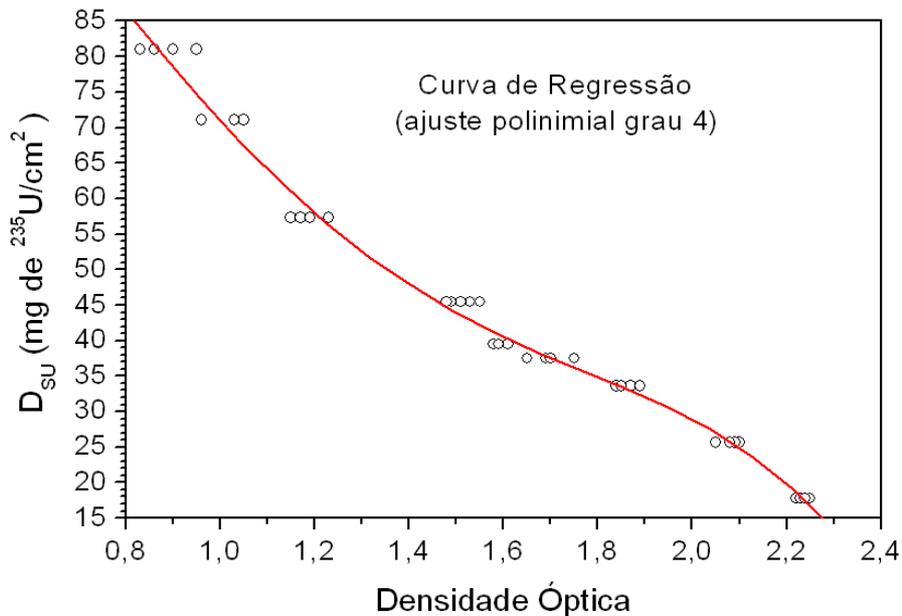


Figura 4 - Curva de calibração de DO x D_{SU}

Considerando-se as possíveis variações na área do núcleo da placa combustível, oriundas das especificações de comprimento e largura do núcleo ⁽⁵⁾, e aplicando-se a especificação para aceitação do desvio do valor de densidade superficial para a Zona 1 e Zona 2, de $\pm 12\%$ e $\pm 25\%$, respectivamente, foi determinada a faixa de variação total aceita pela especificação para a densidade superficial de ^{235}U , entre 34,10 e 48,22 mg/cm² para a Zona 1, e entre 29,06 e 53,31 mg/cm² para a Zona 2. Esta faixa de variação aceitável foi incorporada ao gráfico desenvolvido para a apresentação final dos resultados da presente metodologia. Tal gráfico está apresentado na Fig. 5. Nesse gráfico estão apresentados os valores máximo (vermelho), médio (verde) e mínimo (azul) obtidos das seis medidas realizadas em cada uma das 60 colunas da radiografia do núcleo da placa combustível, ilustradas na Fig. 3. Tais medidas foram realizadas numa placa combustível típica fabricada pelo IPEN-CNEN/SP, identificada como Placa Si-448.

Nota-se que o valor nominal da densidade superficial de ^{235}U para a placa Si-448, de 41,81 mgU ²³⁵/cm² (linha preta da Fig. 5) é muito próximo do valor da média geral de todos os pontos medidos segundo a metodologia proposta, de 39,94

$\text{mg}^{235}\text{U}/\text{cm}^2$ (linha oliva da Fig. 5). Como o valor da densidade superficial de ^{235}U nominal da placa combustível é exato e preciso, uma vez que é obtido por pesagem da massa de urânio incorporada no núcleo, operação que é rigorosamente controlada ($77,6 \pm 0,01$ g de U_3Si_2 no núcleo), a proximidade entre esses valores indica boa exatidão do método, estimada em 4,5 %. Observa-se que a placa Si-448 atende folgadoamente à especificação vigente para o combustível fabricado pelo IPEN-CNEN/SP para o reator de pesquisas IEA-R1.

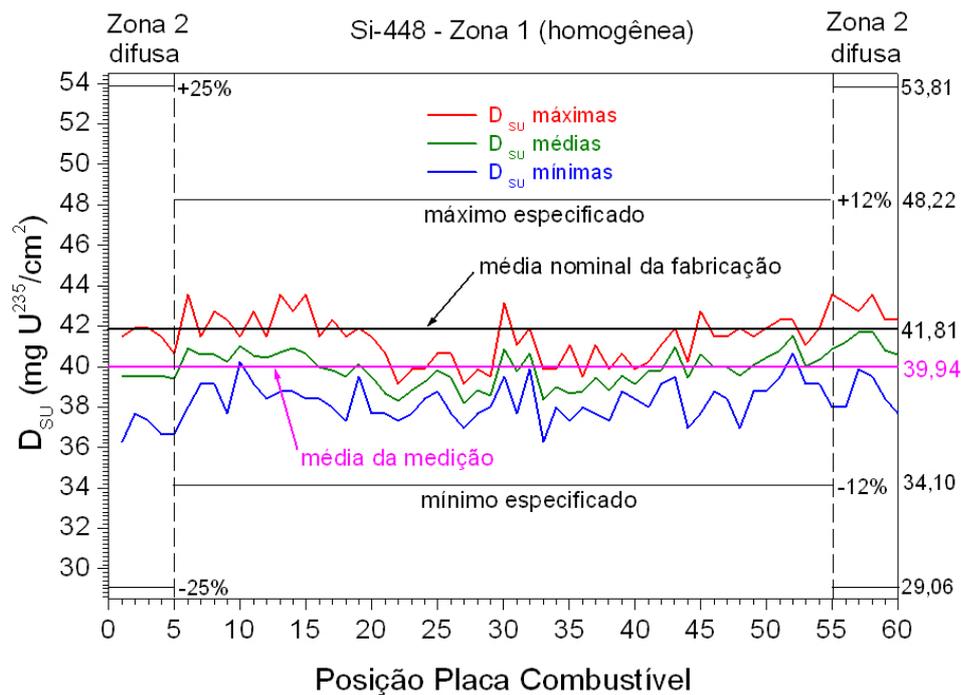


Figura 5 - Resultados experimentais obtidos na placa SI-448.

CONCLUSÕES

A técnica utilizada no desenvolvimento desta metodologia demonstrou ter sensibilidade suficiente para gerar dados que garantem a aplicabilidade do método proposto. A técnica de confecção de padrões também se mostrou aplicável. O desvio entre o valor real da densidade superficial de ^{235}U incorporado ao combustível e o valor obtido a partir da aplicação do método desenvolvido neste trabalho, demonstra exatidão de 4,5%.

Numa próxima etapa planeja-se determinar a precisão do método e avaliar a possibilidade de caracterizar-se um maior número de placas ao mesmo tempo, com a fabricação de outros conjuntos de padrões.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. TRAVELLI A. Current status of the RERTR program. in: development fabrication and application of reduced-enriched fuels for research and test reactor: proceedings held in Argonne, m., 12-14 November, 1980. **Conf** - 801144
2. TRAVELLI A., LEWIS R.A., MATOS J.E., DELANEY E., BALLARD W., AKERS L.U.S. Reduced-enrichment research and test reactors program. **Trans.Amer.Nucl.Soc.** v 30, p. 725, 1978.
3. CAPOCHI J.D.T., CINTRA S.H.L., GENTILE E.F. Estudo experimental de fabricação de elementos combustíveis planos contendo núcleos de cermets. **Metalurgia**, v 24, p. 207, 1968.
4. 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.**
5. CNEN – COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR - COPESP – COORDENADORIA PARA PROJETOS ESPECIAIS **Desenho técnico da placa combustível interna.** R19-IPN-213PR-2DJ-003 e **Desenho técnico da placa combustível externa.** R19-IPN-213PR-2DJ-002.

QUANTITATIVE DETERMINATION OF URANIUM DISTRIBUTION HOMOGENEITY IN MTR FUEL TYPE PLATES

ABSTRACT

IPEN-CNEN/SP produces the fuel to supply its nuclear research reactor IEA-R1. The fuel is assembled from fuel plates containing a core of U₃Si₂-Al composite. A good homogeneity in the distribution of uranium in the core of the fuel plate is important from the standpoint of performance under irradiation. Considering the low power reactor IEA-R1, currently the distribution of uranium in the fuel plate is evaluated only by visual inspection of radiographs. However, in view of the possibility of IPEN manufacture the fuel for the new Brazilian Multipurpose Reactor (RMB), which has high power, it became urgent to develop a methodology to determine quantitatively the distribution of uranium into the fuel. This paper presents a methodology based on X-ray attenuation, quantifying the distribution of the uranium concentration in the core of the fuel plate by using optical densities of radiographs and comparison with standards.

Key-words: radiography, densitometry, fuel plates, nuclear fuel