

DESEMPENHO SOB IRRADIAÇÃO DE COMBUSTÍVEIS
A DISPERSÃO DE MTR

Angela Valulis Simões
Divisão de Engenharia do Núcleo
Coordenadoria para Projetos Especiais - COPESP
Ministério da Marinha

Antonio Teixeira e Silva
Divisão de Engenharia de Segurança Nuclear
Departamento de Tecnologia de Reatores
IPEN/CNEN-SP

RESUMO

Os combustíveis a dispersão U_3O_8 -Al, $UAlx$ -Al e U_3Si_2 -Al utilizados em Reatores de Pesquisa e Teste de Materiais (MTR) são estudados em termos do seu desempenho sob irradiação. O estudo enfoca aspectos microestruturais pré e pós-irradiação, reações químicas matriz-partícula e fenômenos relevantes ao desempenho sob irradiação. Ele mostra que o desempenho está vinculado a mudanças microestruturais que ocorrem nos combustíveis, tanto durante os processos de fabricação como ao longo da queima, e fornece subsídios para que se possa definir para cada um dos combustíveis estudados a melhor especificação técnica de projeto.

INTRODUÇÃO

O reator IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP é um reator de pesquisa que vem operando desde 1958 a uma potência de 2MW. Até 1981, os Elementos Combustíveis (ECs) neste reator eram do tipo MTR, consistindo de ligas de U-Al enriquecidas a 93,15% em ^{235}U ("High Enriched Uranium - HEU") de fabricação americana. Com as restrições impostas ao comércio e utilização de combustíveis com urânio altamente enriquecido, o IPEN iniciou um programa de estudos visando a realização a longo prazo da conversão total do núcleo do reator IEA-R1 de combustíveis HEU para LEU ("Low Enriched Uranium"). A primeira providência tomada neste sentido foi a aquisição na Alemanha de 5 ECs a dispersão $UAlx$ -Al enriquecidos a 19,75% em ^{235}U . A segunda providência foi a fabricação no IPEN de combustíveis a dispersão U_3O_8 -Al enriquecidos a 19,75% em ^{235}U . Atualmente, existem no núcleo do reator IEA-R1 aproximadamente 50% de ECs HEU e 50% de ECs LEU.

Os ECs a dispersão U_3O_8 -Al fabricados no IPEN seguem rigorosas especificações técnicas ditadas por fabricantes tradicionais. Entretanto, a garantia de um bom desempenho sob irradiação desta dispersão só pode ser confirmada através de minuciosos exames pós-irradiação. O Brasil não possui nem reatores de alto fluxo neutrônico nem células quentes para exames pós-irradiação. A consequência no primeiro caso é a impossibilidade de se atingir queimas elevadas em tempos de irradiação pequenos, onde danos no combustível aparecem em maior escala. Assim, a irradiação dos combustíveis fabricados no IPEN tem sido feita diretamente no reator IEA-R1. No segundo caso, não é possível desenvolver exames pós-irradiação, onde danos no combustível possam ser examinados através de testes destrutivos.

O programa de acompanhamento da irradiação dos combustíveis no reator IEA-R1 está limitado à observações visuais e testes não destrutivos dentro da piscina do reator. A queimas determinadas, o combustível é retirado do reator para observação e testes não destrutivos. Caso seja atestado o seu bom desempenho, ele é recolocado no reator até um próximo nível de queima estipulado.

Conjuntamente com os estudos da conversão do núcleo do reator IEA-R1 e tendo em vista a crescente necessidade de produção de radioisótopos no Brasil, estudos foram iniciados no IPEN para o aumento da potência deste reator de 2MW para 10MW. Os estudos preliminares desenvolvidos resultaram em um núcleo composto de ECs a dispersão U_3Si_2 -Al.

Em vista da dificuldade de se qualificar novos combustíveis antes de sua colocação no reator, optou-se por desenvolver uma rigorosa pesquisa bibliográfica que abrangesse a experiência mundial na utilização, projeto e análise do desempenho sob irradiação de combustíveis a dispersão.

Este trabalho apresenta uma extensa revisão bibliográfica do comportamento sob irradiação dos combustíveis a dispersão U_3O_8 -Al, $UAlx$ -Al e U_3Si_2 -Al. Neste levantamento são verificadas as variáveis de fabricação e o conjunto de fenômenos que influenciam no desempenho destes combustíveis sob irradiação. Este estudo é estendido para avaliar as especificações técnicas de fabricação do EC U_3O_8 -Al do IPEN e fornecer subsídios para estabelecer especificações técnicas de fabricação para combustíveis a dispersão $UAlx$ -Al e U_3Si_2 -Al.

VARIÁVEIS DE FABRICAÇÃO E FENÔMENOS EM ESCALA MICROSCÓPICA QUE INFLUENCIAM NO DESEMPENHO SOB IRRADIAÇÃO DE COMBUSTÍVEIS MTR

Variáveis de Fabricação de Combustíveis MTR e Especificações Técnicas de Fabricação de Partículas Combustíveis

As principais variáveis de fabricação que influenciam no desempenho sob irradiação das placas combustíveis a dispersão de MTR são: 1) diâmetro da partícula combustível; 2) morfologia da partícula combustível; 3) massa específica da partícula combustível; 4) área de superfície específica da partícula combustível; 5) fração em volume de combustível.

Diâmetro da Partícula Combustível.
Quando um átomo de urânio fissiona, dois núclídeos são formados e mais de 80% da energia liberada pela fissão é fornecida a estes dois núclídeos em forma de energia

cinética. Estes núcleos (fragmentos de fissão) tanto podem dissipar toda a sua energia na partícula combustível como podem recuar para a matriz metálica que a envolve. Se o diâmetro da partícula combustível (D) for menor que o alcance médio dos fragmentos de fissão nos materiais que a compõem, todos os fragmentos de fissão gerados irão recuar para a matriz. Em contra-partida, se D for maior, menor será o número de fragmentos que recuarão para a matriz. Muitos destes átomos de fragmentos de fissão são grandes e incompatíveis com o material da matriz, afetando consequentemente as suas propriedades ao longo da queima. Uma condição essencial para que as propriedades da matriz sejam preservadas é que a região não danificada pelos fragmentos de fissão seja contínua. É necessário que haja, portanto, uma distância mínima entre as partículas combustíveis para garantir que estas regiões não se toquem ou se sobreponham durante a irradiação. A distância média entre as partículas (d') varia de acordo com a fração em volume de combustível existente na placa (FV_v). Se FV_v é constante, esta distância varia com D, sendo maior a distância quanto maior for o diâmetro da partícula. Dada a impossibilidade de se obter um único diâmetro de partícula, especifica-se normalmente uma faixa granulométrica na qual as partículas combustíveis devem estar inseridas [1,2,3]. A Tabela 1 apresenta a faixa granulométrica adotada para os três tipos de partículas combustíveis analisadas: U_3O_8 , $UAlx$ e $Usiz$.

Morfologia da Partícula Combustível.

Durante a laminação, devido as condições a que são submetidas (esforços de tração e compressão), as partículas combustíveis têm grande probabilidade de se fragmentarem, originando desta forma partículas menores. Se estas partículas se dispuserem de uma forma contínua na direção da laminação elas provocarão um extensivo alinhamento de óxido, prejudicando o desempenho da placa combustível devido a: 1) aumento da superfície específica do óxido; 2) textura fibrosa da dispersão laminada; e 3) segregação da fase físsil, ocasionando heterogeneidades na distribuição desta fase. A influência da morfologia sobre a resistência destas partículas pode ser analisada sob o seguinte aspecto: quanto maior for a angulosidade da partícula maior será a probabilidade desta se fragmentar durante a deformação mecânica. Uma partícula angulosa apresenta regiões que facilmente se rompem durante os passos de laminação. Partículas combustíveis que se aproximam mais da forma esférica, além de atenderem às características de uma dispersão ideal, podem "rolar" por entre a matriz durante a deformação diminuindo a probabilidade de fragmentação [2].

Massa Específica da Partícula Combustível. A massa específica pode ser a priori uma indicação direta de sua resistência quando a sua forma for esférica. Partículas combustíveis com alta concentração de poros interconectados tem maior facilidade de se romper face a pequena resistência das áreas de contato das regiões que envolvem esses poros. A fragmentação destas partículas pouco densas não é desejável em termos do desempenho sob irradiação, pois proporciona um aumento da sua área de superfície específica, com consequente aumento da probabilidade de ocorrência de reações químicas matriz-partícula. Entretanto, apesar

de tornar as partículas combustíveis mais frágeis, uma pequena quantidade de poros deve existir nestas partículas para que as mesmas possam armazenar ao longo da queima os gases gerados pelas fissões. Ao armazenarem estes gases, as partículas estarão contribuindo para uma redução do inchamento das placas durante o período de irradiação. A Tabela 1 apresenta os valores de massa específica especificados para os três tipos de partículas estudadas.

Área de Superfície Específica da Partícula Combustível. A área de superfície específica da partícula combustível tem grande influência sobre a quantidade de reação entre elas e a matriz metálica que as envolvem. O aumento da área de superfície específica proporciona um melhor contato entre os reagentes, aumentando desta forma a probabilidade de reação sob condições apropriadas. Partículas combustíveis de forma irregular e de cantos vivos, com porosidade aberta e superfície rugosa, apresentam maior área de superfície específica do que partículas arredondadas, superficialmente lisas e com alta densidade aparente. A área de superfície específica das partículas combustíveis deve ser baixa para evitar a ocorrência de reações químicas matriz-partícula durante as etapas de fabricação e ao longo da queima das placas combustíveis [2]. O valor especificado para esta variável para os três tipos de partícula estudados é apresentado na Tabela 1.

Fração em Volume de Combustível [2].

Placas combustíveis com uma alta concentração em volume de combustível apresentam um maior número de partículas combustíveis por unidade de volume do cerne que uma placa com uma fração em volume de combustível mais baixa (se o diâmetro da partícula combustível for mantido constante). Nestas circunstâncias, (d') tende a ser menor no primeiro caso do que no segundo. Como foi visto acima, quanto menor a distância entre partículas, maior será a probabilidade das regiões danificadas pelos fragmentos de fissão se sobreponham ao longo da queima, comprometendo desta forma as propriedades da matriz. O aumento da porcentagem em volume de combustível também causa problemas às placas combustíveis durante as etapas de fabricação. Estes problemas estão relacionados ao "dogboning" e aos "white spots". O "dogboning" é um espessamento de combustível de grande magnitude nas extremidades da placa e os "white spots" são partículas combustíveis fora do cerne da mesma. Para prevenir a ocorrência destes dois fenômenos, a fração em volume de combustível na placa é limitada em 45-50% [3].

Além das variáveis acima, as seguintes especificações técnicas podem ser descritas para as partículas combustíveis (os valores especificados são apresentados na Tabela 1, com exceção dos limites de impurezas; estes por sua vez podem ser encontrados na referência [2]): 1) concentração isotópica; 2) conteúdo de urânio; 3) teor de umidade; 4) limitação de impurezas (limitadas principalmente por razões neutrônicas).

Considerações a Respeito da Homogeneização e Especificações Técnicas para Partículas de Alumínio

As variáveis relativas às partículas combustíveis (apresentadas acima) devem ser devidamente combinadas para favorecer a

mistura destas com as partículas de alumínio e ao mesmo tempo para impedir que as mesmas segreguem durante a etapa de homogeneização. Heterogeneidades na dispersão, originadas nesta etapa, provocarão anisotropia de propriedades no núcleo compactado e laminado, podendo comprometer desta forma o desempenho das placas combustíveis durante a irradiação [1]. Para alcançar boa homogeneidade na fase de mistura das partículas combustíveis e das partículas de alumínio, as especificações apresentadas na Tabela 1 (para o diâmetro das partículas de alumínio) devem ser previstas.

Fenômenos em Escala Microscópica que Influenciam no Desempenho sob Irradiação de Combustíveis a Dispersão de MTR [2,3]

Os principais fenômenos sob irradiação que influenciam no desempenho dos combustíveis a dispersão de MTR são:

- 1) variação dimensional do combustível;
- 2) reações químicas matriz - partícula;
- 3) variação estrutural das ligas de alumínio.

Variação Dimensional do Combustível.

Inchamento da Partícula Combustível. O inchamento é resultante do acúmulo de produtos de fissão gasosos nos vazios existentes nas partículas combustíveis, originando desta forma bolhas de gases de fissão [2]. Se estas bolhas se encontram distribuídas homogeneamente por todo o combustível sem tendência alguma à interligação, o inchamento apresentado pela placa será pouco significativo. No entanto, se estas bolhas se encontram próximas umas das outras com uma grande tendência à interligação, o inchamento apresentado pela mesma será uniforme e de grande magnitude.

Além disto, o inchamento das placas combustíveis é dependente da temperatura de irradiação, da densidade do combustível e da concentração do combustível na dispersão [2].

Densificação Inicial da Partícula Combustível. A densificação da partícula combustível é decorrente da dissolução dos poros promovida pelo recuo de produtos de fissão no início da queima. A dissolução dos poros produz uma dispersão do excesso de lacunas na partícula combustível e a migração destas lacunas para os contornos de grãos resulta em um aumento da massa específica e diminuição do volume da partícula combustível, com consequente formação de vazios ao seu redor. Estes vazios serão efetivos na acomodação e no armazenamento dos produtos de fissão gerados ao longo da queima, colaborando desta forma para uma redução do inchamento da placa combustível [1].

Reações Químicas Matriz-Partícula [2,3].

Reações Químicas nas Dispersões U_3O_8 -Al. A conjugação das fases U_3O_8 e alumínio não constitui uma mistura em equilíbrio ocorrendo entre estes dois materiais uma reação exotérmica conhecida como Reação Termita. Estudos referentes a esta reação em ambientes fora do reator revelaram que a Reação Termita ocorria preferencialmente em dois estágios: um inicial muito rápido por volta de $600^\circ C$ que correspondia a redução do U_3O_8 para UO_2 e outro mais lento por volta de $950^\circ C$ que correspondia a redução do UO_2 para um ou mais compostos intermetálicos de urânio-alumínio.

Observou-se que no primeiro estágio, a velocidade da reação aumentava a medida que o diâmetro da partícula combustível diminuía. Outras investigações a respeito destas reações indicaram que o aquecimento das placas testes a temperaturas equivalentes a $1400^\circ C$ não ocasionou liberações de gases ou explosões. Estes resultados serviram para comprovar que a utilização destas dispersões, não comprometeria a segurança do reator.

Sob irradiação, a reação entre o U_3O_8 e o alumínio ocorria a temperaturas bem inferiores a $600^\circ C$. Isto era atribuído ao fato do óxido (que antes era cristalino) se tornar amorfo ao longo da queima por influência da irradiação. Como a taxa de difusão em materiais amorfos é bem superior a taxa de difusão em materiais cristalinos, maiores taxas de reação poderiam ser observadas a temperaturas inferiores a $600^\circ C$ durante a irradiação. Testes realizados em placas combustíveis irradiadas a altas temperaturas indicavam que as mesmas sofriam um leve aumento de volume em decorrência destas reações (além de sofrerem variações significativas nas suas propriedades físicas e mecânicas), pois apesar do UO_2 possuir uma massa específica superior à do U_3O_8 , os demais produtos decorrentes desta reação possuíam massas específicas inferiores a deste material.

Bolhas de gases de fissão crescem com uma certa facilidade nos produtos decorrentes desta reação. Se estes produtos se encontram dispostos de uma forma contínua no núcleo da placa, há uma grande possibilidade das bolhas formadas nos mesmos se interligarem ao longo da queima, levando estas placas a aumentos de volume que dependendo da extensão destas interligações podem ser de grande magnitude. Os processos combinados de geração de produtos de fissão gasosos e de reações químicas matriz-partícula a altas densidades de fissão podem levar a placas combustíveis a aumentos de volume além dos limites aceitáveis. Para que a placa combustível possa então apresentar um bom desempenho sob irradiação, é necessário que estas reações não ocorram em grandes proporções ao longo da queima.

Reações Químicas nas Dispersões UAl_4 -Al. Estudos referentes as reações entre os compostos intermetálicos e o alumínio em ambientes fora do reator indicavam que apenas o UAl_4 formaria uma dispersão estável com o alumínio. O UAl_2 e o UAl_3 por sua vez reagiriam com o alumínio da matriz produzindo UAl_4 [2]. Estas reações ocorriam a temperaturas equivalentes a $400^\circ C$, entretanto, as taxas de reação a esta temperatura eram ainda muito baixas. Estas por sua vez, aumentavam a medida que aumentavam também as temperaturas de teste.

Sob irradiação estas reações ocorriam a temperaturas mais baixas, mas como o produto resultante das mesmas era o UAl_4 , que possui uma estrutura cristalina capaz de armazenar facilmente os produtos de fissão gerados ao longo da queima, o aumento de volume apresentado por estas dispersões durante a irradiação era pouco significativo. Além disso, como este produto possui uma condutividade térmica bem próxima a dos reagentes, a condutividade térmica da dispersão não era significativamente afetada quando da ocorrência destas reações no reator. A partir destes estudos, foi concluído que as reações entre os compostos intermetálicos e o alumínio não afetavam de forma significativa o desempenho das placas

combustíveis sob irradiação e que não comprometeriam a segurança do reator.

Reações Químicas nas Dispersões U_3Si_2-Al [2]. A conjugação das fases U_3Si_2 e alumínio também não constitui uma mistura em equilíbrio, podendo ocorrer entre estes dois materiais, sob condições apropriadas reações exotérmicas. O produto mais comum resultante destas reações, o $U(Al, Si)_3$ é menos denso que os reagentes, sendo assim a formação deste composto proporciona um leve aumento de volume a dispersão.

Quando o alumínio se difunde para as áreas de contato com o combustível (a difusão é maior nos contornos de grão) reagindo com ele, o produto resultante desta reação fica localizado em uma região imediatamente adjacente a partícula combustível, envolvendo-a, uma vez que o U_3Si_2 praticamente não possui contornos de grão.

Estudos tem revelado que as taxas de reação entre o U_3Si_2 e o alumínio durante a irradiação são extremamente pequenas e a reação só ocorre nas regiões de recuo dos fragmentos de fissão ao redor das partículas combustíveis. Eles revelaram também que a energia liberada por esta reação durante a irradiação era muito baixa, menor até que a energia necessária para iniciá-la. Estas evidências confirmaram o que já havia sido observado anteriormente em exames dimensionais pós-irradiação, ou seja que a ocorrência destas reações não proporcionavam aumentos de volume significativos às placas combustíveis, não comprometendo portanto o seu desempenho sob irradiação.

Cuidados devem ser tomados, no entanto, ao longo do processo de fabricação das placas combustíveis para evitar possíveis reações químicas matriz-partícula, uma vez que estas placas são submetidas a temperaturas superiores a 500°C em algumas etapas (é imprescindível que as mesmas não permaneçam a estas temperaturas por muito tempo).

Variação Estrutural das Ligas de Al.

Inchamento sob Irradiação [2]. A aglomeração de lacunas no alumínio resulta em seu inchamento. O inchamento varia em magnitude dependendo do tipo de alumínio utilizado e aumenta com a diminuição de elementos de liga ou de impurezas. A presença destes elementos proporcionam a formação de precipitados que capturam hélio e hidrogênio (produtos de transmutação), impedindo que os mesmos atuem na nucleação de vazios. A formação de silício por reações de transmutação também proporciona inchamento no alumínio. O inchamento devido ao silício não é afetado pela presença de elementos de liga, mas pela fluência neutrônica.

Endurecimento sob Irradiação [2]. A irradiação de nêutrons também proporciona endurecimento nas ligas de Al acarretando no aumento das suas tensões de escoamento e de ruptura e na diminuição da sua ductilidade. A magnitude destas variações dependem da temperatura de irradiação e da fluência neutrônica.

Fenômeno que Ocorre Externamente à Placa Combustível, Afetando o seu Desempenho sob Irradiação (Corrosão do Revestimento)

Uma das características exigida do material utilizado como revestimento de placas combustíveis (normalmente alumínio (Al)) é a alta resistência a corrosão [2,3].

Esta resistência deve ser tal que permita um desempenho satisfatório da placa combustível durante toda sua vida útil. A resistência à corrosão do Al é dada pela formação de um filme de óxido protetor e aderente sobre a superfície do metal. Após a formação do filme passivo, a corrosão diminui sensivelmente, e a baixas temperaturas e em vários meios quase não ocorre [2,3]. Elementos de liga podem ser adicionados ao Al para melhorar tanto algumas de suas propriedades mecânicas como a sua resistência à corrosão e oxidação. Alumínio contendo impurezas pode ser utilizado como revestimento de combustíveis nucleares em reatores refrigerados a água a temperaturas entre 130 e 150°C. A temperaturas mais altas, a corrosão generalizada aumenta sensivelmente e a temperaturas acima de 200°C começa a ocorrer corrosão do tipo intergranular, que leva à rápida desintegração do metal. Entre as ligas de Al mais utilizadas como revestimento de combustíveis empregados em MTR, a X-8001 apresenta boa resistência à corrosão até aproximadamente 300°C e a 1100 começa a apresentar corrosão intergranular a temperaturas entre 150 e 200°C. Em Al de alta pureza (>99,9% Al), a corrosão intergranular pode ocorrer mesmo a 100°C.

SINTESE DESENVOLVIDA PARA OS COMBUSTÍVEIS A DISPERSÃO

A partir dos principais fenômenos que ocorrem normalmente durante a irradiação nos combustíveis a dispersão, a seguinte síntese pode ser desenvolvida para cada combustível:

Dispersões U_3O_8-Al [2,3]. Durante a irradiação, as dispersões U_3O_8-Al sofrem inchamentos superiores àqueles normalmente apresentados pelas dispersões $UAlx-Al$. Estes inchamentos são provenientes tanto do acúmulo de produtos de fissão nas porosidades existentes na partícula combustível, como das reações químicas matriz-partícula. Na temperatura de operação de MTR, a taxa de difusão tanto do alumínio como dos gases de fissão gerados ao longo da queima é muito baixa. Contudo, a geração de defeitos pontuais pela irradiação leva a um aumento desta taxa, favorecendo consequentemente a ocorrência de reações e a formação e o crescimento de bolhas de gases, mesmo a baixas temperaturas. Isto proporciona um leve aumento de volume das placas combustíveis. A altas queimas, placas combustíveis que contem grandes concentrações em peso de material fissil (75% em peso de U_3O_8 e enriquecimento de aproximadamente 45% em peso de ^{235}U) são quase que inteiramente constituídas por produtos de reação. Como bolhas de gases de fissão se desenvolvem facilmente nestes produtos, a presença de uma faixa contínua destes materiais facilita a interligação das bolhas proporcionando desta forma, variações dimensionais significativas. Analisando todos os fenômenos que ocorrem normalmente neste tipo de dispersão, é possível afirmar que as mesmas apresentarão um bom desempenho sob irradiação mesmo a queimas mais elevadas se a concentração em peso de U_3O_8 na placa combustível for limitada em 75% (45% em volume) e o enriquecimento em 20%. Como visto antes, cuidado deve-se ter, entretanto, no uso de dispersões U_3O_8-Al com alta concentração em peso de urânio, mas com enriquecimentos da ordem de 45% em peso de ^{235}U . A altas queimas estas placas combustíveis apresentam inchamentos de grande magnitude.

Dispersões UAl_x-Al. Inchamentos devido à formação e coalescência de bolhas de gases de fissão e mudanças de volume devido às reações químicas matriz-partícula não são significativos em dispersões UAl_x-Al. A formação de bolhas tem sido normalmente reprimida pela acomodação dos átomos gasosos formados durante a irradiação no UAl₄ e pela acomodação dos produtos de fissão sólidos nas porosidades existentes no núcleo. Experiências têm demonstrado que a difusão é, conseqüentemente, a aglomeração de gases de fissão nos compostos de UAl_x é relativamente lenta às temperaturas de irradiação. Foi observado que para esta dispersão em particular, o volume de poros existentes tem se mostrado suficiente para acomodar os produtos de fissão gerados ao longo da queima, proporcionando desta forma pequenos inchamentos. Exames pós-irradiação das dispersões UAl_x-Al irradiadas tanto à altas queimas como à baixas queimas, indicaram que a microestrutura resultante nos dois casos era praticamente a mesma. Os fenômenos que ocorrem normalmente nesta dispersão ao longo da queima e as conseqüências decorrentes destes fenômenos são pouco significativas, levando a um excelente desempenho sob irradiação, mesmo a queimas elevadas.

Tabela 1 Especificações técnicas para as partículas combustíveis, para as partículas de alumínio e para as placas combustíveis do EC.

Partícula Combustível			
	U ₃ O ₈	UAl _x	U ₃ Si ₂
Faixa Granulométrica (µm)	44 - 150	44 - 150	44 - 150
Massa Específica (g/cm ³)	> 8.0	> 6.3	> 11.5
Área de Superfície Específica (m ² /g)	< 0,1	< 0,1	< 0,1
Conteúdo de Urânio (% em peso)	> 84	> 69 ± 3,0	0 + 7,5 Si
Teor de Umidade (%)	< 1.0	< 1.0	< 1.0
Partícula de Alumínio			
Diâmetro (µm)	< 150	< 150	< 150
Placas Combustíveis			
Fração em Volume (Limite - (%))	45	45	45
Massa Específica de Urânio (gU/cm ³)	3.2	2.6	5.1
Espessura Mínima do Revestimento (mm)	0,25	0,25	0,25
Ligas de Alumínio mais Utilizadas	1060, 1100, 8001, 6061	1060, 1100, 8001, 6061	6061, AlMg1, AlMg2

Dispersões U₃Si₂-Al. Dispersões U₃Si₂-Al irradiadas a altas queimas não apresentam formações de bolhas de gases de fissão de grande magnitude nas suas partículas combustíveis. O que se observa normalmente neste tipo de dispersão é a formação de pequenas bolhas de gases que se distribuem de uma maneira uniforme nas partículas combustíveis sem tendência alguma a interligação. O tipo e forma destas bolhas permitem uma maior retenção dos produtos de fissão gerados, favorecendo a utilização destas dispersões a queimas superiores a 50% de ²³⁵U. O fato das reações entre o U₃Si₂ e o alumínio ocorrerem apenas nas regiões adjacentes às partículas combustíveis acarreta uma melhor estabilidade das placas combustíveis sob irradiação, pois garante a continuidade da matriz, permitindo desta forma que todo o calor gerado pelas fissões seja transferido para o refrigerante sem maiores problemas. As análises dos fenômenos comuns a este tipo de dispersão indicam também que a mesma apresentará um bom desempenho sob irradiação em reatores que operam a potências mais elevadas.

ESPECIFICAÇÕES TÉCNICAS PARA AS PLACAS COMBUSTÍVEIS DE MTR

Para atender a um bom desempenho sob irradiação e garantir que fenômenos microestruturais não levarão a efeitos indesejáveis nas placas combustíveis, as especificações técnicas, apresentadas na Tabela 1, devem ser previstas.

EXAMES POS-IRRADIAÇÃO DE COMBUSTÍVEIS A DISPERSÃO U₃O₈-AL E VERIFICAÇÃO DAS ESPECIFICAÇÕES TÉCNICAS DO COMBUSTÍVEL A DISPERSÃO U₃O₈-AL FABRICADO NO IPEN

O desempenho satisfatório das dispersões U₃O₈-Al (20% em peso em ²³⁵U) foi comprovado através de exames pós-irradiação desenvolvidos no início dos anos sessenta no Laboratório Nacional de Oak Ridge. Os resultados destes exames revelaram que as dispersões (65% U₃O₈ - 35% Al) comportavam-se confiavelmente em reatores de pesquisa a baixas temperaturas de irradiação até queimas médias de 50% de depleção de ²³⁵U [2]. Com o desenvolvimento dos Reatores de Teste Avançados (ATR) e dos Reatores Produtores de Radioisótopos (HFIR), dispersões altamente enriquecidas (>93% em ²³⁵U) com cerca de 41% U₃O₈ - 59% Al em peso, foram testadas nas condições de operação destes reatores [2]. Nas condições de irradiação destes testes, todas as placas combustíveis apresentaram um excelente desempenho sob irradiação. Testes posteriores desenvolvidos no ORNL demonstraram que dispersões U₃O₈-Al com alto enriquecimento em ²³⁵U comportavam-se satisfatoriamente a níveis de queima da ordem de 1.8 a 2.2.10²¹ fissões/cm³. Com o desenvolvimento do programa RERTR, um conjunto de exames pós-irradiação foram realizados em dispersões com baixo enriquecimento em ²³⁵U e altas concentrações em peso de U₃O₈ (35 a 44% em volume, 2.47 a 3.12 gU/cm³). Os testes demonstraram que as mesmas desempenharam-se satisfatoriamente sob irradiação.

Em 1987 foram qualificados para uso

corrente combustíveis a dispersão U_3O_8 -Al com densidades máximas de $3,2 \text{ gU/cm}^3$ enriquecidas até 20% em ^{235}U . A qualificação do combustível foi baseada no fato que dados suficientes existiam para que o órgão licenciador aprovasse seu uso [2].

O EC a dispersão U_3O_8 fabricado no IPEN e utilizado no reator IEA-R1 consiste de 18 placas combustíveis contendo 56,6% em peso de U_3O_8 em alumínio 1100 (26,0% em volume, $1,83 \text{ gU/cm}^3$). A especificação técnica deste combustível é apresentada na Tabela 2. A depleção máxima de ^{235}U (100%) ocorre a uma densidade de fissão de $9,60 \cdot 10^{20}$ fissões/ cm^3 . Alumínio ASTM 1060 é utilizado para moldura e revestimento. Os materiais e componentes dos ECs IPEN seguem rigorosamente os padrões internacionais, assim como as dimensões propostas para o combustível. De acordo com os exames pós-irradiação descritos acima é esperado para o combustível IPEN, um comportamento estável sob irradiação. A densidade de fissão máxima (100% de depleção de ^{235}U) para o combustível IPEN é relativamente baixa frente as densidades para as quais esse tipo de combustível tem sido testado internacionalmente. As características dos pós de U_3O_8 e alumínio seguem rigorosamente os padrões internacionais, garantindo resultados idênticos aos combustíveis internacionais. O alumínio ASTM 1060 não apresenta problemas de corrosão a temperaturas abaixo de 100°C . Embora atualmente não haja limitações para a queima a ser atingida por combustíveis a dispersão U_3O_8 -Al com alta concentração em peso de material fissil, é recomendado que o combustível IPEN seja irradiado a queimas máximas de 50%, até que possa ser testado a queimas superiores. Esta depleção foi atingida com sucesso no combustível utilizado com 65% U_3O_8 - 35% Al, com mesmo tipo de revestimento e condições operacionais similares as do reator IEA-R1.

Tabela 2 Características principais das placas combustíveis fabricadas no IPEN.

Partícula de U_3O_8	
Diâmetro das Partículas (μm)	< 89 com até 20% inferior a 44
Massa Específica (g/cm^3)	> 8,0
Área de Superfície Específica (m^2/g)	< 0,1
Teor de Unidade (%)	< 1,0
Conteúdo de Urânio (%)	> 84,5
Concentração Isotópica (%)	$19,90 \pm 0,05$ em peso de ^{235}U
Partícula de Alumínio	
Material Base	Alumínio ASTM-1100 (> 99% Al)
Diâmetro das Partículas (μm)	< 44,0
Revestimento	
Material	Alumínio ASTM 1060

CONCLUSOES

A análise de fenômenos que afetam o desempenho sob irradiação de combustíveis a dispersão de MTR mostra uma maior estabilidade das dispersões $UAlx$ -Al e U_3Si_2 -Al em relação as dispersões U_3O_8 -Al. As dispersões U_3O_8 -Al sofrem inchamentos superiores àqueles normalmente apresentados pelas dispersões $UAlx$ -Al e U_3Si_2 -Al, provenientes tanto de um maior acúmulo de produtos de fissão nas porosidades existentes na partícula combustível como de uma maior taxa de reação química entre esta partícula e a matriz de alumínio. O inchamento é função principalmente da densidade de fissão e da quantidade inicial de vazios provenientes de fabricação. O aumento da concentração de urânio na dispersão U_3O_8 -Al aumenta a concentração de vazios de fabricação podendo levar a inchamentos menores em combustíveis com maiores carregamentos de urânio.

As dispersões $UAlx$ -Al apesar de comprovada estabilidade sob irradiação é utilizada em menor escala em MTR, devido a sua mais baixa massa específica. As dispersões U_3Si_2 -Al por apresentarem uma melhor estabilidade sob irradiação e uma maior massa específica em relação às dispersões $UAlx$ -Al e U_3O_8 -Al é dentre estes combustíveis os mais promissores para utilização em MTR.

A análise do desempenho e os exames pós-irradiação conduzidos em combustíveis a dispersão U_3O_8 -Al mostram que as especificações técnicas de fabricação dos ECs a dispersão U_3O_8 -Al fabricados no Departamento de Metalurgia Nuclear do IPEN garantem o seu bom desempenho sob irradiação pelo menos até 50% de queima de ^{235}U .

REFERENCIAS

- [1] HOLDEN, A.N. Dispersion fuel elements. New York, N.Y., Gordon & Breach, 1968.
- [2] SIMOES, A. V. Desempenho sob irradiação de combustíveis a dispersão utilizados em MTR. São Paulo, 1993. (Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).
- [3] SAMOILOV, A.G.; KASHTANOV, A.I.; VOLVOK, V.S. Dispersion fuel nuclear reactor elements. Jerusalem, 1968.

ABSTRACT

The U_3O_8 -Al, $UAlx$ -Al and U_3Si_2 -Al dispersion fuels of Material Test Reactors (MTR) are analyzed in terms of their irradiation performance. The analysis focuses fuel pre- and post-irradiation micro-structural aspects, matrix-particle chemical reactions, and the most relevant phenomena for the fuel irradiation performance. It shows that the irradiation performance is connected with the microstructural modification that can occur during the fabrication processes and under fuel irradiation, allowing the definition of the best technical design specifications for those fuels.