

ESTRATÉGIA DE UTILIZAÇÃO DE COMBUSTÍVEIS TIPO MTR DE ALTO TEOR DE URÂNIO PARA OPERAÇÃO DO REATOR IEAR1 A 5 MW

J.A. Perrotta

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN/CNEN-SP)
Divisão de Engenharia do Núcleo (REN)
Caixa Postal 11.049; CEP 05422-970; Pinheiros, São Paulo, SP, Brasil
e-mail - perrotta@net.ipen.br

RESUMO

O reator IEAR1 do IPEN/CNEN-SP é do tipo MTR, piscina, e vem operando desde 1957 com potência máxima de 2 MW.

Devido a necessidade de produção de Tc-99 (Mo-99), radioisótopo importante para aplicações médicas, deve-se aumentar o fluxo térmico/epitérmico, em algumas posições do núcleo, para valores próximos a 1×10^{14} n/cm².s. Isto é conseguido aumentando-se a potência do reator e otimizando seu núcleo.

Foi decidido realizar o aumento da potência para 5 MW, otimizar o núcleo do reator através do aumento da densidade de urânio nos combustíveis tipo placa fabricados no IPEN/CNEN-SP e utilizar dispositivos apropriados para irradiação.

Este trabalho descreve a estratégia a ser adotada nesta otimização, dando ênfase a escolha do tipo de combustível. São descritas a experiência mundial na utilização de combustíveis tipo placa de alta densidade em U e a experiência em engenharia do núcleo e irradiação de combustíveis existentes no IPEN/CNEN-SP que dão suporte à estratégia adotada.

INTRODUÇÃO

O reator IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP é do tipo MTR, piscina, e vem operando desde 1957 em potência máxima de 2MW, embora que 5 MW seja a nominal de projeto.

O núcleo do reator é constituído de um grupo de elementos combustíveis tipo placa, quatro elementos de controle e refletores de grafite. Dispositivos de irradiação são colocados normalmente ao redor do núcleo ou em posições ocupadas por refletores.

Em termos de configuração do núcleo e utilização de combustíveis, pode-se analisar o reator por ciclos de estratégia de recarga.

O primeiro ciclo corresponde à primeira carga do reator, com combustíveis de liga de U-Al e enriquecimento de 20% de origem americana. Estes combustíveis apresentaram vazamento de produtos de fissão logo na primeira criticalidade do reator devido a problemas de corrosão nas placas combustíveis. Estes foram imediatamente substituídos por uma segunda carga com o mesmo tipo de combustível e enriquecimento, mas com uma montagem mecânica do elemento combustível que inibiu a corrosão causadora da falha nas placas combustíveis da primeira carga.

O segundo ciclo corresponde a uma recarga completa do reator (retirada dos combustíveis queimados e entrada de um novo núcleo) utilizando-se combustível de liga U-Al e enriquecimento de 93% de origem americana. Houve também neste ciclo a troca de elementos combustíveis de controle de concepção americana por elementos de concepção e fornecimento franceses (CERCA).

O terceiro ciclo se caracteriza pela restrição internacional de fornecimento de ECs com alto enriquecimento e dificuldades de compra de um novo núcleo completo por parte do IPEN. Foram comprados 5 elementos combustíveis na Alemanha (NUKEN) de dispersão de UAl_x-Al com 20% de enriquecimento e mesma quantidade de ²³⁵U que os combustíveis de 93% de origem americana. Nesta recarga parcial os elementos combustíveis americanos, que já possuíam queima significativa, tiveram que permanecer no núcleo e devido à necessidade de reatividade este núcleo teve o seu número de combustíveis aumentado.

O quarto ciclo começa com a necessidade de reposição dos combustíveis de alto enriquecimento que já estavam com alta queima. A estratégia adotada foi de fabricar os combustíveis novos no IPEN. Iniciou-se então a fabricação seriada de combustíveis de dispersão de U₃O₈-Al, com 20%

de enriquecimento e mesma quantidade de ^{235}U nas placas combustíveis que os combustíveis de 93% de enriquecimento de origem americana. A partir deste ciclo a estratégia foi realizar substituições individuais dos combustíveis de alto enriquecimento por combustíveis de baixo enriquecimento. A preocupação foi manter o reator operando em detrimento da otimização do núcleo para irradiações já que as limitações de fornecimento de combustíveis impunham tal atitude.



Figura 1. Histograma de Queima em 1988

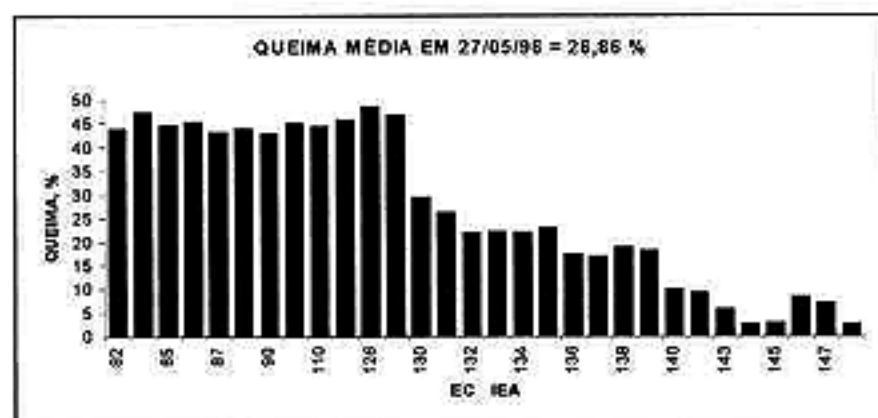


Figura 2. Histograma de Queima em 1996

TABELA 1. Características dos ECs que Operaram no Núcleo do Reator IEA-R1

Elemento Combustível	Data Entrada no Reator	Origem	Enriq. (%)	Material combustível
82 a 114	1970	UNC (EUA)	93	Liga U-Al
119 a 122	1975	CERCA (FR)	93	Liga U-Al
123 a 127	21/12/1981	NUKEN (RFA)	20	Dispersão $\text{UAl}_x\text{-Al}$
128 ^(*)	18/11/1985	IPEN/ CNEN-SP	20	Dispersão $\text{U}_3\text{O}_8\text{-Al}$
129 ^(**)	18/11/1985			
130	05/09/1988			
131	16/02/1989			
132	20/02/1990			
133	11/06/1990			
134 a 137	21/09/1990			
138	25/11/1991			
139	20/07/1992			
140, 141	01/10/1993			
143	13/12/1994			
144, 145	16/10/1995			
146	16/09/1994			
147	23/03/1995			
148	16/10/1995			

(*) elemento com 2 placas combustíveis

(**) elemento com 10 placas combustíveis

As figuras 1 e 2 mostram, respectivamente, o histograma de queima em 1988 quando os combustíveis IPEN iniciaram sua entrada no núcleo e um histograma recente. A tabela 1 descreve a origem destes combustíveis.

Devido à necessidade de produção de ^{99}Tc (^{99}Mo), radioisótopo importante para aplicações médicas, deve-se aumentar o fluxo térmico/epitérmico em algumas posições do núcleo para valores próximos a $1 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$, sendo que o valor atual é da ordem de $2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$. Para tal há a necessidade de se aumentar a potência do reator e se otimizar o núcleo. Este aumento de potência e otimização do núcleo se caracteriza como o quinto ciclo de estratégia de recarga do reator e é o motivo da apresentação deste trabalho.

CONVERSÃO HEU PARA LEU

A relação de conversão de alto enriquecimento (HEU) para baixo enriquecimento (LEU), para manter reatividade no núcleo e um razoável balanço de neutrons, é dado por:[1]

$$\left(\frac{{}_b N_{235}}{a N_{235}} \right) \geq 1,15 \quad (1)$$

onde N_{235} é o número de átomos de ^{235}U , a é o índice de alto enriquecimento, b é o índice de baixo enriquecimento.

O número de átomos de ^{235}U no combustível de baixo enriquecimento (<20%) deve ser ~15% maior do que o de alto enriquecimento (93%) devido à compensação da maior quantidade de ^{238}U no de baixo enriquecimento.

Obs: Para os combustíveis atuais de fabricação IPEN esta relação é igual a 1.

Desenvolvendo a relação (1), tem-se:

$$\left(\frac{{}_b \rho_U \cdot {}_b V_U \cdot {}_b \varepsilon}{{}_a \rho_U \cdot {}_a V_U \cdot {}_a \varepsilon} \right) \geq 1,15 \quad (2)$$

onde ρ_U é a densidade de U na placa, V_U o volume de U na placa e ε o enriquecimento.

Para ${}_b \varepsilon = 0,20$ e ${}_a \varepsilon = 0,93$ tem-se:

$$\left(\frac{{}_b \rho_U \cdot {}_b V_U}{{}_a \rho_U \cdot {}_a V_U} \right) \geq 5,3 \quad (3)$$

Obs: Para os combustíveis atuais de fabricação IPEN esta relação é igual a 4,5.

O aumento de U na placa LEU para uma relação como em (3) pode ser obtido da seguinte forma:

i) aumentando-se o volume do cerne na placa através da diminuição da espessura do revestimento (para a mesma espessura de placa combustível);

ii) aumentando-se o volume do cerne na placa através do aumento da espessura da placa combustível (mantendo-se a espessura do revestimento e diminuindo-se o canal de água entre placas combustíveis no elemento combustível);

iii) mantendo-se o composto de urânio no cerne (U_3O_8) mas aumentando-se sua percentagem volumétrica na dispersão;

iv) mudando-se o composto do cerne de U_3O_8 para um composto com maior teor de U de forma a se obter maiores quantidades de ^{235}U no mesmo percentual volumétrico da dispersão.

A opção (i) foi adotada para aumentar o volume da dispersão de UAl_3 -Al (de fabricação alemã) e de U_3O_8 -Al (de fabricação IPEN) em substituição a liga de U-Al. A espessura do revestimento passou de 0,51 mm para 0,38 mm. Esta espessura é adotada, internacionalmente, na maioria dos combustíveis de alta densidade [1]. Diminuir mais ainda esta espessura não seria conveniente.

A opção (ii) implica numa maior perda de carga e menor relação água/urânio no combustível. Esta opção não será adotada para o IEA-R1, mantendo-se a geometria dos combustíveis atuais.

A opção (iii) tem um limite de $3,1 \text{ gU/cm}^3$ para a dispersão, que corresponde a uma fração de 45% em volume de U_3O_8 na dispersão. Um valor de $2,1 \text{ gU/cm}^3$ atende à relação (3).

A opção (iv), utilizando U_3Si_2 disperso em Al, e mesma fração volumétrica atual do combustível de U_3O_8 -Al do IPEN (27%) na dispersão, se obtém uma densidade de $3,0 \text{ gU/cm}^3$. U_3Si_2 tem sido utilizado internacionalmente como padrão de sucesso para combustível de alto teor de U para reatores tipo MTR.

A tabela 2 apresenta dados comparativos da relação ^{235}U de alto e baixo enriquecimento para as placas combustíveis do reator IEA-R1.

TABELA 2. Relação de U^{235} para ECs do Reator IEAR1

	origem	tipo	ϵ (%)	ρ (g/cm^3)	e_c (cm)	e_r (cm)	e_p (cm)	V_U (cm^3)	$g^{235}\text{U}$ por EC	$g^{235}\text{U}$ /placa	rel. b/a
#1 carr	USA	U-Al	20	1,86	0,061	0,038	0,137	23	≈160	≈8	4,0
#2 carr	USA	U-Al	20	1,86	0,061	0,038	0,137	23	≈160	≈8	4,0
#3 carr	USA	U-Al	93	0,58	0,051	0,051	0,152	19	186	10,3	-
#4 carr	Fr	U-Al	93	0,58	0,051	0,051	0,152	19	130	10,3	-
#5 carr	RFA	UAl_3 -Al	20	1,90	0,076	0,038	0,152	28	180	10	4,6
#6 carr	IPEN	U_3O_8 -Al	20	1,80	0,076	0,038	0,152	28	176,4	9,8	4,5
op.1	IPEN	U_3Si_2 -Al	20	3,0	0,076	0,038	0,152	28	302	16,8	7,6
op.2	IPEN	U_3O_8 -Al	20	3,0	0,076	0,038	0,152	28	302	16,8	7,6
op.3	IPEN	U_3O_8 -Al	20	2,1	0,076	0,038	0,152	28	210	11,	5,3

Lembrando que o fluxo térmico médio de um reator é proporcional à relação da potência do reator sobre a massa de ^{235}U (potência específica) e que o fluxo rápido médio é proporcional à relação de potência sobre o volume do reator (densidade de potência), a mudança dos combustíveis atuais para valores superiores a 5,3 na relação (3) traria as seguintes vantagens para o reator:

i) diminuição do volume do reator (menor número de combustíveis utilizados no núcleo), aumentando a densidade de potência nos combustíveis, trazendo vantagens em fluxo para posições de irradiação;

ii) diminuição do número de combustíveis que devem ser trocados por ciclo de queima, minimizando, desta forma, o número de combustíveis estocados na piscina bem como o número de combustíveis que devem ser produzidos no IPEN.

ESTRATÉGIA A SER ADOTADA

É objetivo atual do IPEN aumentar sua produção de radioisótopos para aplicação médica, principalmente referente ao ^{99}Tc (^{99}Mo). Para tal é necessário aumentar o

fluxo térmico na posição de irradiação da amostra para valores próximos a $1 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$.

Consegue-se aumentar o fluxo da seguinte forma:

i) aumentando-se a potência do reator;

ii) utilizando-se menor volume de núcleo com combustíveis de maior densidade de U e refletores mais eficientes;

iii) utilizando-se dispositivos especiais de irradiação que aumentem localmente o fluxo.

Os seguintes itens serão adotados no reator IEAR1:

i) a potência máxima será aumentada de 2 MW para 5 MW;

ii) o combustível atual deve ser alterado para ter maiores concentrações de U;

iii) será utilizada uma menor quantidade de combustíveis no núcleo (diminuição de 30 para até 20 elementos combustíveis no núcleo). Este menor núcleo estará limitado pelas condições neutrônicas e termohidráulicas;

iv) numa primeira etapa não se alterará o refletor, mas no futuro deverão ser utilizados refletores de berílio metálico;

v) estão sendo projetados dispositivos especiais para irradiação de ^{99}Mo . Um "flux-trap" de berílio já está sendo importado da França para este fim.

Em relação aos combustíveis, a estratégia adotada é a seguinte:

i) serão fabricados os combustíveis de $1,9 \text{ gU/cm}^3$ para atender a demanda do reator para 96;

ii) deverá ser aumentada a fração volumétrica de U_3O_8 para 33% na dispersão da placa combustível. Com este aumento a densidade de U na placa passa para $2,3 \text{ gU/cm}^3$, a qual permite ter uma relação de reatividade apropriada para operação do reator a 5 MW. Neste tipo de combustível os parâmetros de fabricação ainda permanecem basicamente os mesmos dos combustíveis com 27% em volume de U_3O_8 . Serão fabricados tantos combustíveis quantos necessários para operação inicial e para os 2 primeiros anos de operação a 5 MW.

iii) serão desenvolvidos combustíveis a base de dispersão de U_3Si_2 -Al, contendo no máximo 27% em volume (fração volumétrica atual dos combustíveis de U_3O_8 -Al do IPEN), que permitirá alcançar a densidade de $3,0 \text{ gU/cm}^3$ e melhorar o desempenho do núcleo do reator. A princípio o pó de U_3Si_2 deverá ser adquirido no exterior e posteriormente desenvolvido no IPEN. A partir de 1998 deverão ser fabricados os primeiros combustíveis deste tipo e colocados progressivamente no reator IEA-R1 até completa reposição do núcleo de combustíveis de U_3O_8 -Al por estes de U_3Si_2 -Al.

QUALIFICAÇÃO DOS COMBUSTÍVEIS DE ALTO TEOR DE U.

Um combustível é considerado como qualificado quando existe uma suficiente base de dados com a qual as autoridades reguladoras possam comprovar o uso seguro em reatores. Até 1978 os principais combustíveis de reatores MTR eram as ligas de U-Al com baixo teor de U e dispersões de U_3O_8 -Al com baixa fração volumétrica do

composto de U. Dois programas internacionais foram realizados a partir de 1978 para converter núcleos de HEU para LEU, a saber: RERTR- Reduced Enrichment of Research and Test Reactors (DOE-USA); e INFCE- International Nuclear Fuel Cycle Evaluation (IAEA). O ponto principal nesta conversão foi o item segurança do reator. Os combustíveis desenvolvidos foram dispersões de UAl_x-Al ; U_3O_8-Al , U_3Si_2-Al e U_3Si-Al . A tabela 3 apresenta um resumo da qualificação destes combustíveis concluída em 1987.

TABELA 3. Resumo da Qualificação de Combustíveis a Dispersão (1987) [1]

	UAl_x-Al	U_3O_8-Al	U_3Si_2-Al	U_3Si-Al
Densidade máxima de U qualificada	2,3 gU/cm ³ - LEU e MBU	3,2 gU/cm ³ - LEU 1,7 gU/cm ³ - MBU	4,8 gU/cm ³ - LEU	6,0 gU/cm ³
Inchamento da partícula combustível	(6 a 10 %) / (10 ²¹ fissões/cm ³)	(4 a 8 %) / (10 ²¹ fissões/cm ³)	(6 a 7 %) / (10 ²¹ fissões/cm ³)	(6 a 8 %) / (10 ²¹ fissões/cm ³)
Temperatura limite para empolamento	>550 °C	475 - 550 °C	515 - 550 °C	500 °C
Limite de queima	Não há	Não há para as densidades de U qualificadas; 1,7x10 ²¹ fissões/cm ³ para maiores densidades de U em MBU.	Não há	2x10 ²¹ fissões/cm ³

Combustíveis de UAl_x-Al e U_3O_8-Al já haviam sido qualificados para baixas frações do composto de U na dispersão (30% em volume) e foram qualificados pelo RERTR para valores até 45% de fração volumétrica. Combustível de U_3Si_2-Al foi considerado de excelente desempenho e em 1988 a NRC-USA já autorizava seu uso para qualquer tipo de reator MTR [2]. Hoje já existe uma especificação padronizada recomendada pela IAEA para este tipo de combustível [3].

A qualificação de combustíveis tipo dispersão passa pelas seguintes etapas:

i) Testes pré-irradiação:

- compatibilidade da fase dispersa com o alumínio nas temperaturas de operação e processo;
- estabilidade da fase dispersa em água fervente;
- reações exotérmicas da fase dispersa com o alumínio;
- condutividade térmica da dispersão.

ii) Testes de irradiação de miniplacas

- miniplacas combustíveis (50x120 mm) são irradiadas e examinadas para gerar uma base de dados para análise básica de desempenho sob irradiação.
- inchamento do cerne em função da queima;
- temperatura limiar para empolamento;
- condição metalúrgica.

iii) Teste de irradiação do elemento combustível completo.

- confirmação em uso do desempenho verificado na miniplaca.

Para realizar esta sequência de testes deve existir a seguinte infraestrutura:

i) Laboratório de Materiais

ii) Reator de Teste de Materiais

iii) Dispositivos de Irradiação

- parâmetros importantes: fluxo, fluência, temperatura
- monitoração: fluxo, temperatura, radionuclídeos na água

iv) Testes não Destrutivos (NDA) na Piscina do Reator

- neutrografia, inspeção visual, varredura gama, inspeção dimensional

v) Laboratório com Células Quentes

- NDA: inspeção visual, dimensional, pesagens, densidade, varredura γ

- DA: teste de empolamento, determinação da queima, metalografia, microscopia ótica, MEV, autoradiografia, liberação de gases.

Todas estas etapas foram realizadas no programa RERTR. No caso do IPEN, como não existe um laboratório com células quentes, a qualificação se faz por "qualificação operacional" no reator. O combustível IPEN possui uma especificação e um processo de fabricação à semelhança dos combustíveis listados e qualificados no exterior, por isto a fase de teste de miniplacas e análise em célula quente pode não ser realizada. A qualificação se dá por irradiação de combustíveis normais em operação no núcleo do reator. Os combustíveis começam a irradiação na periferia e, posteriormente, podem ser remanejados para qualquer posição do núcleo. Periodicamente são feitas inspeções visuais destes combustíveis e feita monitoração constante da água da piscina.

Desde 1988, quando entrou o primeiro combustível de fabricação IPEN no reator IEA-R1 um programa de acompanhamento desta irradiação vem sendo realizado. Hoje 2/3 do núcleo do reator já é composto de combustíveis fabricados no IPEN e o combustível já atingiu mais que 30% de queima (em termos de átomos de ²³⁵U) sem alteração em suas características geométricas bem como a atividade da água da piscina vem se mantendo constante dentro de níveis históricos.

No caso dos combustíveis IPEN, a fração volumétrica de 27% na dispersão é baixa e o desempenho da placa combustível sob irradiação é bastante estável já que o volume de matriz metálica (Al) predomina nas mudanças de características ocorridas durante irradiação da placa combustível. A queima máxima estabelecida como critério de retirada do combustível do núcleo (50% em átomos de ²³⁵U) impõe também um conservantismo de utilização.

Esta mesma estratégia utilizada pelo IPEN desde 1988 para qualificação do combustível atual será adotada para o combustível de dispersão de U_3O_8-Al com 2,3 gU/cm³ (33% em fração de U_3O_8 na dispersão) e para o combustível de U_3Si_2-Al com 3,0 gU/cm³ (27% em fração de U_3Si_2 na dispersão). Estas duas dispersões são de baixa fração volumétrica e todas as observações, tanto do programa RERTR como do programa IPEN de qualificação, são válidas podendo-se realizar com segurança uma "qualificação operacional".

CONCLUSÃO

Com a necessidade de se aumentar a produção de radioisótopos para aplicações médicas no reator IEA-R1 se estabeleceu uma estratégia de melhoria do núcleo do reator. Esta melhoria impõe o desenvolvimento e utilização de placas combustíveis a base de dispersão com teores de U acima dos hoje utilizados no IEA-R1. Com a utilização de dispersão de U_3O_8 -Al com $2,3 \text{ g/U/cm}^3$, numa primeira etapa, e de dispersão de U_3Si_2 -Al com $3,0 \text{ g/U/cm}^3$ numa etapa posterior, as metas de otimização do núcleo e maior produção de radioisótopos serão alcançadas.

REFERÊNCIAS

- [1] "Research Reactor Core Conversion Guidebook" - IAEA-TECDOC 643, 1992.
- [2] "Safety Evaluation Report to the Evaluation of Low-Enriched Uranium Silicide-Aluminium Dispersion Fuel for Use in Non-Powered Reactors Fuels" - NUREG 1313, July 1988
- [3] "Standardization of Specifications and Inspection Procedure for LEU Plate-Type Research Reactors Fuels" - IEA-TECDOC 467, 1988

ABSTRACT

IEA-R1 is a MTR, pool type reactor, that operates since 1957 at IPEN/CNEN-SP in São Paulo. In order to produce ^{99}Tc , radioisotope for medical application, an increase in power and core optimization is needed. This paper gives an overview and the strategie for LEU fuel utilization at this reactor in order to fulfil the established objectives.