

DESENVOLVIMENTO DE COMBUSTÍVEIS DE BAIXO ENRIQUECIMENTO PARA
REATORES DE ENSAIOS DE MATERIAIS



José Carlos Bressiani (1)

Michelangelo Durazzo (2)

Lalgudi Venkataraman Ramanathan. (3)

Clauer Trench de Freitas (4)

Tornou-se necessário considerar a utilização de urânio de baixo enriquecimento para a produção de combustível para reatores de ensaios de materiais, como o existente no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares de São Paulo (IPEN). São aqui apresentados os resultados de pesquisas para produzir combustível tipo placa com 20% de enriquecimento, no IPEN. São considerados dois tipos de combustíveis: um utilizando núcleos constituídos por dispersões $U_3O_8 + Al$ e o outro formado por núcleos contendo $UAl_x + Al$. Exponem-se os problemas críticos de reatividades dos componentes de núcleo. No que se refere aos núcleos de $U_3O_8 + Al$, descrevem-se os resultados preliminares relativos a geração de hidrogênio quando a dispersão é exposta a ação de água, no intervalo de temperatura de $20^{\circ}C - 60^{\circ}C$. No concernente as dispersões $UAl_x + Al$, discute-se principalmente a formação do intermetálico UAl_x em função das condições de laminação.

-
- (1) Engenheiro de Materiais - Centro de Metalurgia Nuclear - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - SP
 - (2) Membro da ABM - Engenheiro Metalurgista - Centro de Metalurgia Nuclear - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - SP
 - (3) Doutor em Engenharia Metalúrgica - Gerente da Área de Combustíveis Nucleares do Centro de Metalurgia Nuclear - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - SP.
 - (4) Membro da ABM. Doutor em Engenharia Cerâmica - Gerente do Centro de Metalurgia Nuclear - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - SP.

1. Introdução

Elementos combustíveis à base de Urânio enriquecido no isótopo U-235 são utilizados pela maioria dos reatores nucleares moderados e arrefecidos por água destinados à pesquisa, à produção de rádio-isótopos e à ensaios de materiais (1).

Uma das opções para a produção de tais elementos combustíveis é a fabricação de elementos à base de dispersões e uma outra é a fabricação de elementos com núcleo metálico à base de liga Urânio e Alumínio com teores de Urânio variando conforme o grau de enriquecimento.

Os elementos combustíveis à base de dispersões apresentam vantagens em relação a elementos combustíveis de ligas, principalmente a possibilidade de fabricação de núcleos com uma grande gama de variação de concentração das fases dispersas e resistência a danos de irradiação dos elementos combustíveis durante tempo prolongado de serviço.

Desde que elementos combustíveis utilizando núcleo de dispersão U_3O_8 -Al e revestidos com liga de Al são utilizados em alguns tipos de reatores nucleares que usam água como moderador e arrefecedor e nenhum dado é disponível sobre o seu comportamento no caso de ruptura ou corrosão localizada (pitting) do revestimento, é razoável que se estude e caracterize o comportamento de tais elementos em condições de falha do revestimento. Além disso, é importante considerar o perigo que representa o Hidrogênio gerado pela reação do núcleo da placa combustível com a água deionizada quando o reator está em operação.

Numa primeira parte deste trabalho é desenvolvido um método para se estudar as condições de ruptura do revestimento de elementos combustíveis contendo núcleos de dispersão ...

U_3O_8 -Al, é descrita a reação deste núcleo com água deionizada através da evolução de Hidrogênio para várias temperaturas e, ainda, são discutidos alguns dos resultados mais importantes.

Não se tem conhecimento de estudos realizados sobre dispersões utilizando-se como fase dispersa urânio metálico e como matriz alumínio.

O sistema urânio metálico-alumínio na faixa de concentrações útil para uso em elementos combustíveis, apresenta uma série de reações até atingir o UAl_4 que é o produto termodinamicamente mais estável. Essas reações devem ser perfeitamente conhecidas para dar ao projetista subsídios necessários para que ele possa optar pela possível utilização ou não do sistema nessa forma de dispersão.

Numa segunda parte deste trabalho é feito um estudo sobre o comportamento da reação urânio-alumínio visando o possível aproveitamento de elementos combustíveis tendo como núcleo dispersão de urânio em alumínio para reatores de pesquisa e ensaios de materiais.

Para a fabricação das placas de elementos combustíveis foi utilizada a técnica de montagem de núcleo, moldura revestimento (picture frame technique) e posterior laminação a quente. Esta técnica é bastante utilizada na fabricação de elementos combustíveis tipo placa (2,3,4,5,6,7,8).

2. Parte I: Geração de Hidrogênio como produto da reação do núcleo da placa combustível com água deionizada.

2.1 - Procedimento Experimental

A ruptura das placas combustíveis foi reproduzida por um corte efetuado sob água deionizada em amostras das placas combustíveis estudadas, utilizando-se para isso uma serra circular de aço inóx.

Para os ensaios foram utilizadas amostras de 75mm de comprimento cortadas de dois tipos de placas combustíveis estudadas. O formato das amostras e a maneira com que foram retiradas estão esquematizados na fig. 1 A.

Retirada a amostra, esta é selada por resina Epoxi nas suas duas extremidades onde o núcleo fica exposto. A seguir a amostra é acoplada em blocos de Al por meio de 4 parafusos de aço inóx, como esquematiza a fig. 1 B.

O conjunto é então movido em direção à serra circular sob água deionizada armazenada em um tanque de plástico. O Hidrogênio gerado na reação do núcleo com a água é recolhido utilizando-se um medidor graduado. A fig. 1 C mostra um diagrama esquemático de todo o conjunto montado.

A temperatura do sistema é controlada por um aquecedor HAAKE FS, tipo F 423 com controlador automático de temperatura.

As amostras foram cortadas à várias condições de temperatura e foram plotados os volumes de Hidrogênio gerado em função do tempo de ensaio.

2.2 - Resultados e discussões

As microestruturas dos dois tipos de placas combustíveis (tipo A e tipo B) contendo núcleos de dispersão U_3O_8-Al , estão apresentadas nas figuras 2 a e 2 b, respectivamente.

Os resultados obtidos através da técnica experimental anteriormente descrita estão apresentados nas figuras 3 e 4, para várias temperaturas.

Essas curvas mostram a variação da relação volume de Hidrogênio gerado/unidade de volume do núcleo da placa combustível, em função do tempo. Verificou-se que a velocidade de evolução do Hidrogênio inicialmente aumenta seguida por um pronunciado aumento após um tempo que depende da temperatura

de ensaio, e, finalmente, decresce novamente caminhando para uma situação de equilíbrio.

Nas micrografias das placas ensaiadas podemos observar que a maior parte da fase metálica da dispersão está envolvida pela fase cerâmica que deve apresentar canais contínuos que possibilitam a migração da água e sua posterior reação com áreas de Alumínio que não apresentam a característica camada protetiva de óxido que deve ter sido quebrada pela ação abrasiva do U_3O_8 durante a operação de laminação.

Os reduzidos níveis de evolução de Hidrogênio encontrados em ensaios com placa combustível fabricada com "cermet" que utilizou pó de U_3O_8 previamente sinterizado, são devidos, provavelmente, à redução do número de canais no "cermet" que utilizou o óxido de urânio previamente sinterizado.

Um outro fator que deve contribuir na evolução de Hidrogênio é a criação de uma situação de "crevice corrosion", na qual é diminuído localmente o pH da água contribuindo para o fenômeno de evolução do gás.

2.3 - Conclusões

Quando o núcleo da placa combustível é exposto à ação da água deionizada, este reage produzindo Hidrogênio.

O Hidrogênio produzido é resultado da reação da água, que deve penetrar por canais contínuos existentes na fase cerâmica, com áreas de Alumínio, presente na dispersão, que não apresentam a camada de óxido protetiva característica desse material.

A evolução do gás apresenta 3 etapas. Uma primeira etapa onde a evolução de Hidrogênio é muito lenta seguida de uma segunda etapa onde há um pronunciado aumento na velocidade de evolução do gás e, finalmente, uma terceira etapa onde se atinge uma situação de equilíbrio entre a velocidade da água que migra

para o interior do núcleo e a velocidade com que o Hidrogênio produzido migra para fora do núcleo.

A duração da primeira etapa diminui com o aumento da temperatura da água.

A velocidade de evolução de Hidrogênio na segunda etapa é tanto maior quanto maior é a temperatura da água.

Desde que, através deste trabalho, verificou-se a formação de quantidades consideráveis de Hidrogênio quando o núcleo é exposto à ação da água e que sua formação é indesejável no núcleo do reator quando em funcionamento, conclui-se que é necessária a continuidade de pesquisas no sentido de se entender o fenômeno para que seja possível minimizá-lo.

3. Parte II: Estudo da reação urânio-alumínio em elementos combustíveis com núcleos de dispersões urânio metálico-alumínio

3.1 - Procedimento Experimental

Na fabricação dos briquetes de urânio-alumínio foram utilizados pó de Alumínio 1100 e pó de urânio metálico. A distribuição granulométrica do pó de Alumínio está apresentada na tabela abaixo, enquanto que o pó de urânio utilizado foi selecionado através de peneiramento no intervalo de 150 e 270 mesh, onde as partículas podem possuir um tamanho de 53 a 105 μ m.

TABELA I - Distribuição granulométrica do pó de alumínio

Tamanho, μ m	Peneiras, malhas por polegada linear	% em peso
> 149	+ 100	0
149 - 105	- 100 + 150	4,2
105 - 53	- 150 + 270	84,1
53 - 44	- 270 + 325	9,7
< 44	- 325	2,0

Após a pesagem dos pós de urânio e alumínio para um teor de 45% em peso de urânio, fez-se a mistura, umidecendo-os em álcool, para se obter uma distribuição mais homogênea das partículas. A prensagem foi feita a frio em prensa hidráulica manual com capacidade para 100 toneladas. A densidade dos briquetes após compactação com $2,5 \text{ t/cm}^2$ foi de 95% da densidade teórica. Após a montagem do conjunto moldura-núcleo-revestimento e posterior laminação, as placas sofreram tratamentos térmicos em diferentes temperaturas e por diversos tempos.

Esses tratamentos térmicos foram realizados com o objetivo de se conhecer o desenvolvimento da reação entre o urânio e o Alumínio na dispersão, sendo os produtos desta reação posteriormente identificados por difração de raios-X.

3.2 - Resultados e Discussões

Os produtos identificados através de difração de raios-X após cada tratamento térmico são mostrados nas figuras 5, 6 e 7 onde são apresentados os valores das intensidades integradas, para cada composto formado, normalizados em relação ao Alumínio, em função do tempo e da temperatura de tratamento.

Analisando os dados obtidos pode-se dizer que o UAl_2 , formado durante os tratamentos térmicos, se transforma para UAl_3 rapidamente pois, como pode ser visto nas figuras 5, 6 e 7, os valores da intensidade integrada referentes ao UAl_2 permanecem baixos para todos os tempos de tratamento até que todo o urânio seja transformado.

Por outro lado, a reação de UAl_3 para UAl_4 é relativamente mais lenta comparando-a com a reação de UAl_2 para UAl_3 , pois existe um acúmulo de UAl_3 durante os tratamentos.

Outro fato constatado é que a reação urânio-Alumínio se

completa, ou seja, todo o produto de urânio e alumínio se encontra na forma de UAl_4 após 96 horas de tratamento a $600^{\circ}C$.

Nas figuras 8a, 8b e 8c são apresentadas micrografias de amostras tratadas por 96 horas a 100, 300 e $600^{\circ}C$, respectivamente.

Observa-se na micrografia da figura 8a que ocorreu a formação de uma quantidade considerável de produtos de reação e que, como mostrado anteriormente, são constituídos por UAl_2 , UAl_4 e UAl_3 em ordem crescente de quantidade.

Na figura 8b observa-se que algumas partículas já se transformaram completamente nos produtos UAl_2 , UAl_3 e UAl_4 , mas a quantidade de UAl_4 passou a ser maior do que a de UAl_3 .

Na figura 8c pode ser notado que todo o urânio se transformou e que o produto formado neste caso é constituído apenas de UAl_4 .

A reação entre urânio e alumínio inicia-se geralmente nas protuberâncias das partículas de urânio, desenvolvendo-se posteriormente para toda a superfície da mesma. A reação continua para o interior das partículas de urânio indicando que ocorre difusão do Alumínio através dos produtos da reação mais rapidamente do que difusão do urânio nestes produtos, conclusões essas a que já haviam chegado Kiessling(9) e Castleman (10).

A variação linear na espessura das placas, após todo o urânio ter sido transformado em UAl_4 , foi de aproximadamente 2%. Para se obter as placas nas dimensões de projeto deve-se interromper a laminação das mesmas quando a espessura estiver um pouco maior do que a especificada (~5%), realizar um tratamento térmico a $600^{\circ}C$ por um tempo não inferior a

96 horas e, em seguida, terminar a laminação. Desse modo, as placas se constituirão de uma dispersão de $UAl_4 + Al$ perfeitamente estáveis do ponto de vista de reação.

3.3 - Conclusões

As reações entre urânio e alumínio nas dispersões ocorrem mesmo para temperaturas da ordem de $100^{\circ}C$ e se completam quando prolongadas por 96 horas a $600^{\circ}C$. Essa reação inicia-se com a formação de UAl_2 posteriormente ocorrendo a passagem para UAl_3 e do UAl_3 para UAl_4 . A velocidade dessa reação é maior nas placas laminadas do que nas dispersões apenas compactadas.

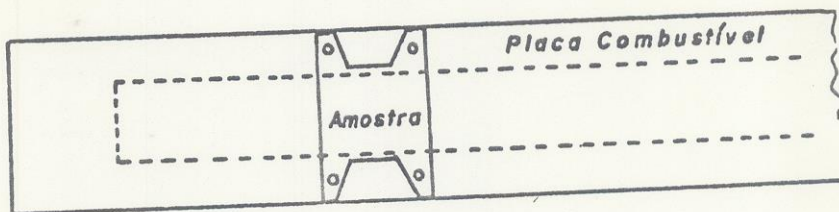
A variação na espessura das placas combustíveis provocada pela reação entre urânio e alumínio é perfeitamente aceitável do ponto de vista de projeto.

Bibliografia

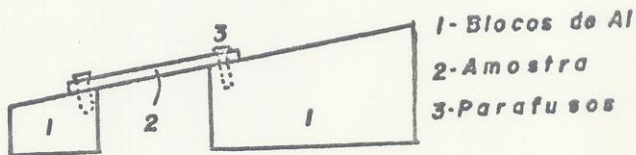
- (1) - SAWYER, H.F. & LOEW NSTEIN, P. - Nuclear Reactor Fuel Elements - Metallurgy and Fabrication. Apendice B, p. 690 - 696. Interscience Publishers, 1962.
- (2) - CUNNINGHAM, J.E. & BEAVER, R.J. - APPR fuel technology. In: United Nations. Peaceful Uses of Atomic energy: proceedings of the second international conference on ... held in Geneva, 1 September - 13 September 1958, U. 6: Basic metallurgy and fabrication of fuels. Geneva, 1958 P. 521-30.
- (3) - CUNNINGHAM, J.E. & BOYLE, E.J. - MTR-type fuel elements. In: United Nations. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the international conference on ... held in Geneva. 8 August - 20 August 1955, U. 9: Reactor technology and chemical processing. New York, N.Y. 1956, p.203-7.

- (4) - GIBSON, G.W. - The development of powdered uranium - aluminide compounds for use as nuclear reactor fuels. Idaho Falls, Idaho, Idaho Nuclear Corp., 1967 (IN-1133)
- (5) - KAUFMAN, A.R. - Nuclear reactor fuel elements, metallurgy and fabrication. New York, N.Y.; Interscience, 1962.
- (6) - NAZARÉ, S.; ONDRAEK, G.; THUMMLER, F. - Investigations on UAl_x -Al dispersion fuels for high-flux reactors. J. Nucl. Mater., 56 : 251-9, 1975
- (7) - SOUZA SANTOS, T.D.; HAYDT, H.M.; FREITAS, C.T. - Development in fuel fabrication for research reactors in Brazil In: United Nations. Peaceful uses of atomic energy: proceeding of the third International conference on...held in Geneva. 31 August - 9 September 1964. V.10 : Nuclear fuels, I. Fabrication and reprocessing. New York, N.Y., 1965.
- (8) - WICK, D.J.; NELSON, T.C.; FRESHLEY, M.D. - Plutonium fuels development. In: United Nations. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the second international conference on... held in Geneva, 1 September - 13 September 1958, U. 6: Basic metallurgy and fabrication of fuels. Geneva, 1958, p.700-9
- (9) - KIESSLING, R. - The solid state reaction between uranium and Aluminium. In: United Nations. Peaceful uses of atomic energy: proceedings of the international conference on... held in Geneva - 8 August - 20 August 1955, V. 9: Reactor technology and chemical processings, New York, N.Y. 1956, p. 69-73
- (10)- CASTHEMAN, L.S. - Layer growth during interdiffusion in the aluminum - uranium alloy systems. J. Nucl. Mater., 3 (1): 1-15, 1961.

(a)



(b)



(c)

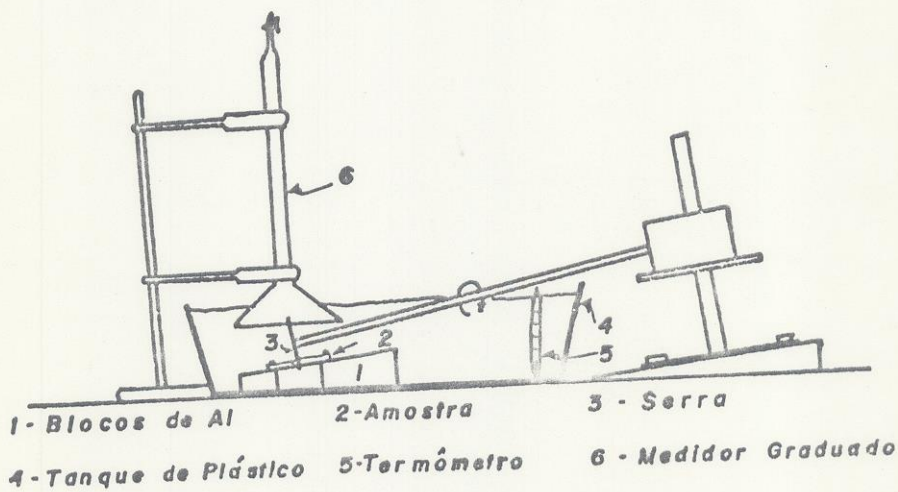


Fig. 1. a) Obtenção da amostra
b) Fixação da amostra
c) Esquema do Conjunto Montado

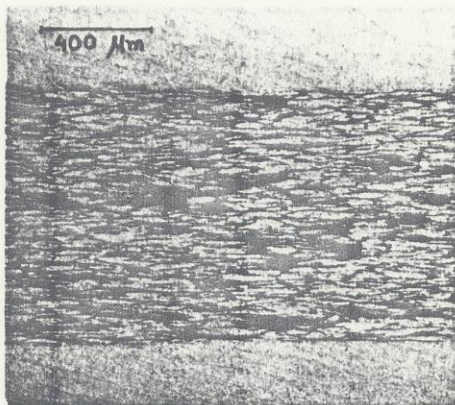


Fig. 2a - Micrografia da secção transversal da placa Tipo A evidenciando seu núcleo de dispersão U_3O_8-Al . Sem ataque.

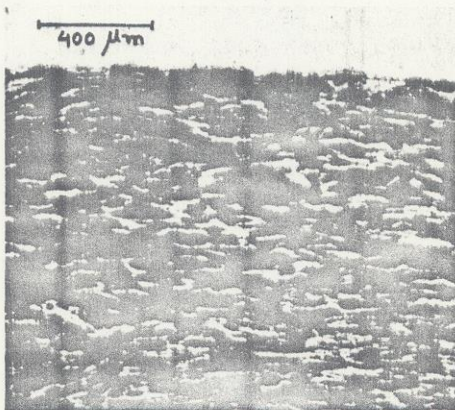


Fig. 2b - Micrografia da secção transversal da placa tipo B evidenciando seu núcleo de dispersão U_3O_8-Al . Sem ataque.

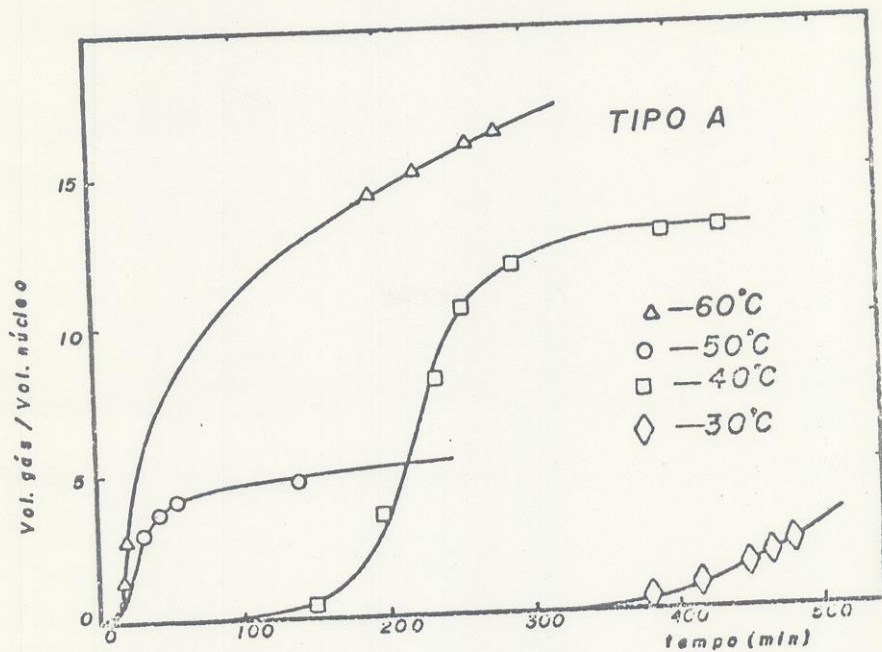


Fig. 3. Variação do volume de gás gerado por unidade de volume do núcleo da placa tipo A em função do tempo de ensaio.

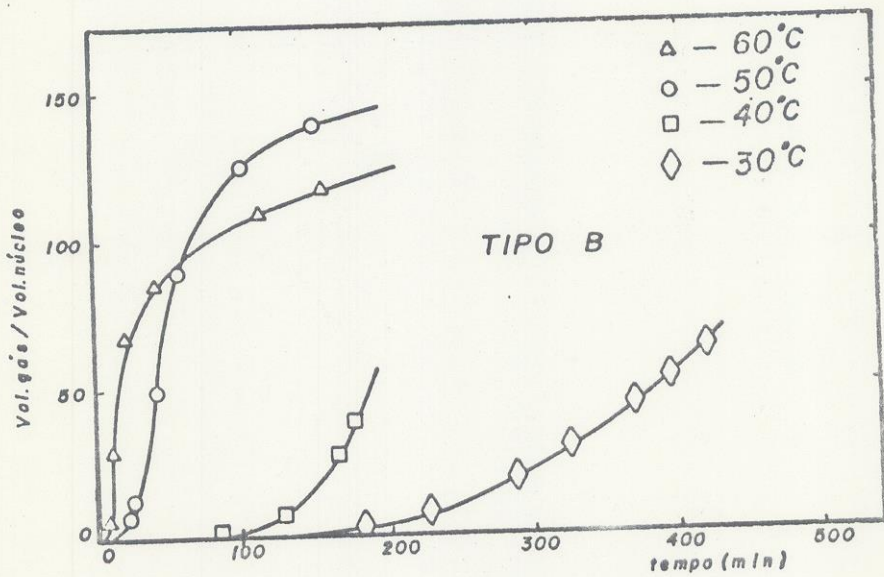


Fig. 4. Idem à figura 3 para a placa tipo B.

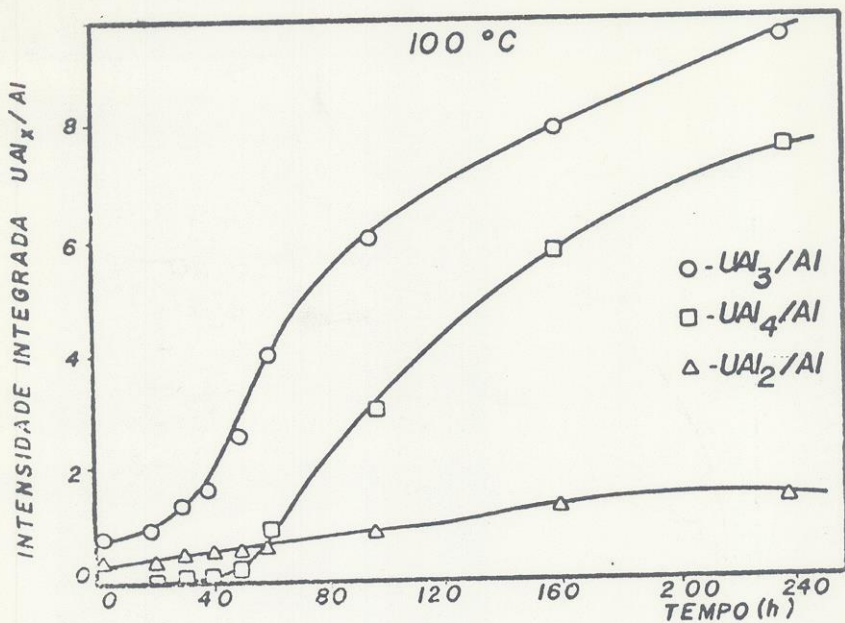


Fig. 5 - Intensidade integrada relativa dos picos de difração de UAl_x/Al , para dispersões de $Al-U$ (45% em peso de U), em função do tempo de tratamento a 100 °C em atmosfera normal.

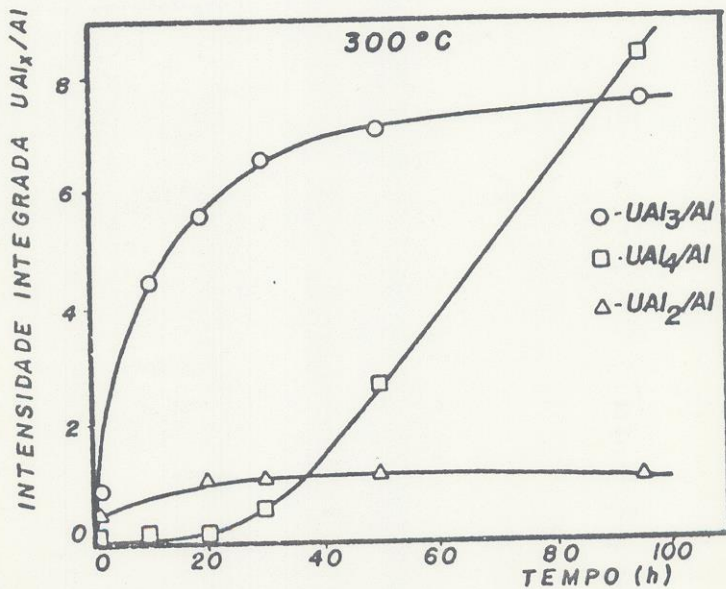


Fig. 6 - Idem à figura 5 para tratamento à 300 °C.

It became necessary to consider the utilization of low enrichment uranium for the production of fuel to be used in materials testing reactors, such as that of the São Paulo "Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares" (IPEN). The research results for the 20% enrichment plate-type fuel production, at IPEN, are presented. Two types of fuels are considered: one has a core made of $U_3O_8 + Al$ dispersions and the other uses nuclei containing $UAl_x - Al$. The critical problems of chemical reactivity between core components are presented. Preliminary results describing hydrogen generation when $U_3O_8 + Al$ is exposed to 20 - 60°C water are shown. Concerning $UAl_x + Al$ dispersions, special attention is given to the formation of the UAl_x intermetallic compound as a function of roll milling conditions.

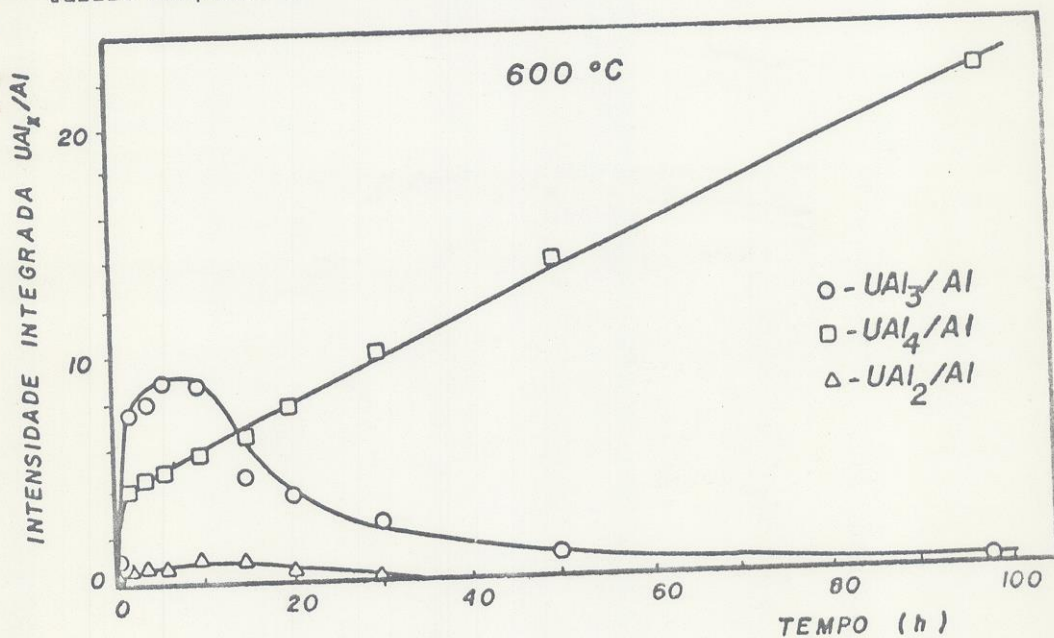


Fig. 7 - Intensidade integrada relativa dos picos de difração de UAl_x/Al , para dispersões de Al-U (45% em peso de U), em função do tempo de tratamento a 600°C em atmosfera normal.

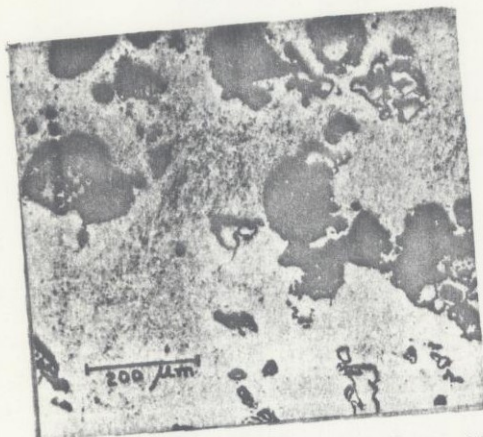


Fig. 8a- Micrografia obtida do núcleo de placa após a laminação e subsequente tratamento térmico por 96 horas à 100°C.



Fig. 8b- Idem a figura 8a para tratamento à 300°C.

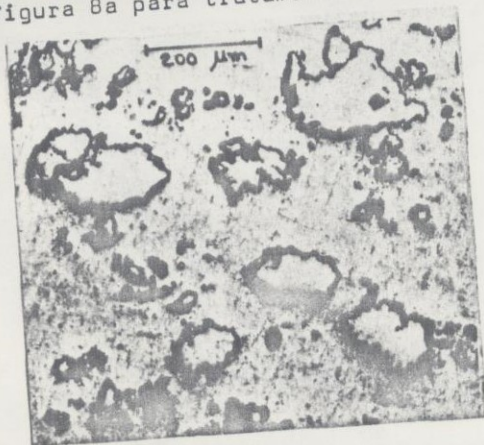


Fig. 8c- Idem à figura 8a para tratamento à 600°C.