

CARACTERÍSTICAS DO DESEMPENHO DE VARETAS COMBUSTÍVEIS SUBMETIDAS À QUEIMA PROLONGADA

ADOLFO MARRA NETO
SUPERVISÃO DE PROJETO DE COMBUSTÍVEIS NUCLEARES
DEPARTAMENTO DE TECNOLOGIA DE REATORES
IPEN-CNEN/SP

RESUMO

Este trabalho discute os principais aspectos relacionados ao desempenho de varetas combustíveis de reatores LWR submetidas à queima prolongada, dando ênfase aos fenômenos que, efetivamente, podem limitar o tempo de permanência destas varetas no reator. Também são apresentadas propostas de alterações nas especificações de projeto de varetas combustíveis que visam melhorar o desempenho global das varetas em queima prolongada.

INTRODUÇÃO

Nos últimos anos, os países detentores da tecnologia de projeto e construção de centrais nucleares de potência têm mostrado grande interesse em desenvolver combustíveis para operar em queima prolongada ("extended burnup").

As principais vantagens visadas com a queima prolongada de combustíveis nucleares são de ordem econômica e operacional. A razão (energia gerada)/(custo do elemento combustível) pode ser melhorada, bem como os custos para transporte e estocagem de elementos irradiados podem ser reduzidos. Além disso, com a queima prolongada é possível aumentar o período dos ciclos de operação do núcleo, reduzindo-se, desta forma, a necessidade de manuseio de elementos para rearranjos e substituições no núcleo.

Diversos programas experimentais de irradiação vem sendo realizados em todo o mundo com a finalidade de avaliar o desempenho de combustíveis nucleares convencionais e avançados em queima prolongada. O principal interesse nesses programas tem consistido em estabelecer quais fatores efetivamente limitam o tempo de permanência do combustível no núcleo e quais providências podem ser tomadas para prolongar a queima com segurança.

Os principais aspectos investigados sobre o desempenho de varetas combustíveis operando em queima prolongada relacionam-se às variações dimensionais e mudanças nas propriedades materiais dos seus componentes, ao comportamento de corrosão do revestimento das varetas, ao comportamento de liberação dos gases de fissão das pastilhas combustíveis e à ocorrência de interações pastilha-revestimento. Também tem-se investigado os efeitos causados pelos maiores picos de potência que podem ocorrer nos combustíveis devido aos maiores enriquecimentos de ^{235}U , necessário para prolongar a queima.

Visando obter a capacitação para o projeto de elementos combustíveis que operem em queima prolongada, iniciou-se na Supervisão de Projeto de Combustíveis Nucleares do IPEN-CNEN/SP o estudo das características do desempenho de varetas combustíveis submetidas a queima prolongada, com base em

informações obtidas na literatura disponível. As principais informações obtidas até o presente momento serão apresentadas e discutidas neste trabalho.

PROGRAMAS DE IRRADIAÇÃO DE VARETAS COMBUSTÍVEIS EM QUEIMA PROLONGADA

Programas de irradiação de varetas combustíveis de LWR em queima prolongada vem sendo realizados na Europa, E.U.A. e Japão. A seguir serão apresentados os resultados obtidos em alguns dos programas mais abrangentes e suas principais conclusões.

Programa francês. No programa francês de irradiação em queima prolongada realizado pelo FRAGEMA em conjunto com a FRAMATOME, EDF e CEA, 6.627 elementos combustíveis convencionais de PWR haviam sido irradiados em queima prolongada até dezembro de 1989 [1]. Combustíveis com enriquecimentos de 3,1% foram irradiados até atingirem queimas de 55 GWd/tU e combustíveis com enriquecimento de 4,5% atingiram queimas de 58 GWd/tU, operando em reatores de 900 MWe. As análises realizadas neste programa abrangeram medidas do inchamento de pastilhas combustíveis, liberação dos gases de fissão, crescimento das varetas combustíveis causado por irradiação e o comportamento de corrosão da superfície externa do revestimento por água.

Os dados sobre o inchamento do combustível na direção axial da coluna de pastilhas em função da queima são representados na Figura 1. Medidas do inchamento radial das pastilhas não haviam sido publicadas até o momento da elaboração deste trabalho.

Verificou-se que o inchamento axial evolui a uma taxa praticamente constante ao longo da queima, não superando 1,2% após queimas de 58 GWd/tU. Concluiu-se, portanto, que para os combustíveis empregados pelo FRAGEMA o crescimento da coluna de pastilhas combustíveis não resulta em problemas na operação em altas queimas.

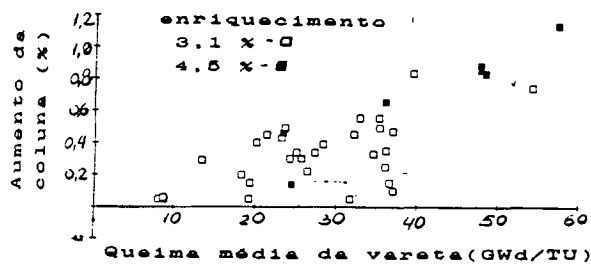


Figura 1: Aumento axial da coluna de pastilhas em função da queima em varetas irradiadas no programa francês de queima prolongada.

Observou-se que a taxa de liberação de gases de fissão do combustível eleva-se rapidamente a partir de queimas superiores a 30 GWd/tU (Figura 2), indicando que este parâmetro deve ser considerado com atenção especial em combustíveis submetidos a queima prolongada, embora nos combustíveis irradiados nos testes do FRAGEMAs essa liberação não tenha superado 3%.

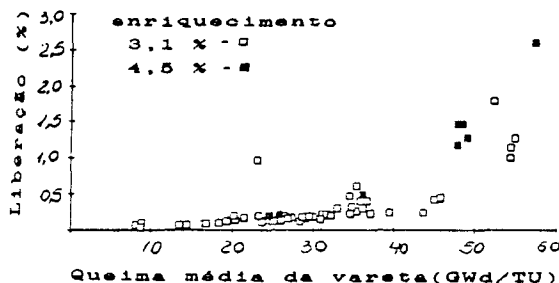


Figura 2: Comportamento de liberação de gases de fissão em função da queima em varetas irradiadas no programa francês de queima prolongada.

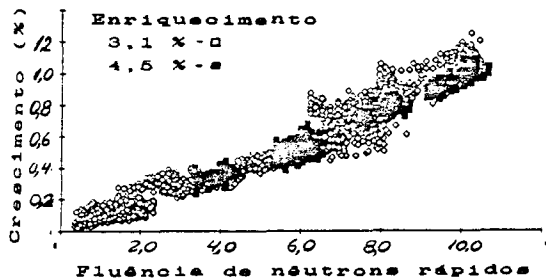


Figura 3: Crescimento axial das varetas combustíveis em função da fluência de nêutrons rápidos observado no programa francês de queima prolongada.

A taxa de crescimento axial do revestimento das varetas combustíveis apresentou-se praticamente constante ao longo de todo o período de irradiação (Figura 3). As dispersões dos resultados observados em varetas com enriquecimentos de 4,5% foram menores que as

observadas em varetas com enriquecimentos de 3,1%. Segundo a referência consultada este efeito provavelmente deveu-se a melhorias efetuadas na manufatura das varetas combustíveis com 4,5%, tendo-se reduzido desvios das propriedades dos componentes das varetas (especialmente o revestimento).

A máxima espessura da camada de óxido que se forma na superfície externa do revestimento das varetas em função da queima média das varetas é mostrada na Figura 4. Segundo os dados apresentados pelo FRAGEMAs, o aumento da espessura da camada de corrosão na superfície externa do combustível é significativa em queima prolongada. Observou-se que em varetas combustíveis com enriquecimentos de 4,5% a taxa de formação da camada de óxido foi significativamente superior à observada em varetas combustíveis enriquecidas a 3,1%. Este fato foi atribuído aos mais altos níveis de potência (e, portanto, às maiores temperaturas) a que se sujeitou o revestimento dos combustíveis enriquecidos a 4,5% durante a irradiação.

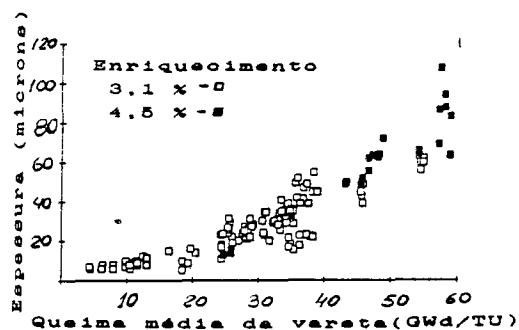


Figura 4: Máxima espessura da camada de óxido no revestimento de varetas combustíveis irradiadas no programa francês em função da queima.

Programa da ABB-CE. A Asea Brown Boveri em conjunto com a Combustion Engineering (EUA) haviam irradiado, até abril de 1990, aproximadamente 1.000.000 de varetas combustíveis de reatores PWR, tendo algumas destas varetas atingido queimas superiores a 50 GWd/tU[2]. Neste programa foram investigados o comportamento de liberação de gases de fissão de pastilhas de UO_2 , a estabilidade dimensional, as propriedades mecânicas e a resistência à corrosão por água do revestimento de zircaloy-4 de varetas submetidas a queima prolongada.

A Figura 5 representa o comportamento de crescimento axial das varetas combustíveis em função da fluência de nêutrons. Os resultados não indicaram nenhuma mudança abrupta neste comportamento resultante da queima prolongada propriamente. O crescimento axial mais acentuado ocasionalmente observado no revestimento de algumas varetas combustíveis foi atribuído à ocorrência de contato rígido pastilha-revestimento, quando o inchamento das pastilhas acarreta o crescimento forçado do revestimento.

Além de irradiar varetas combustíveis convencionais, a ABB-CE irradiou varetas experimentais especialmente desenvolvidas para queima prolongada. Foi investigado o desempenho de varetas contendo pastilhas de UO_2 com tamanhos de grãos maiores que 40 microns (com o propósito de reduzir a liberação dos gases de fissão) e dimensões geométricas menores (para reduzir ocorrência

de interações pastilha-revestimento). Foi investigado, também, o desempenho de varetas contendo pastilhas anulares de UO_2 e revestidas com uma camada de grafite na superfície interna do revestimento.

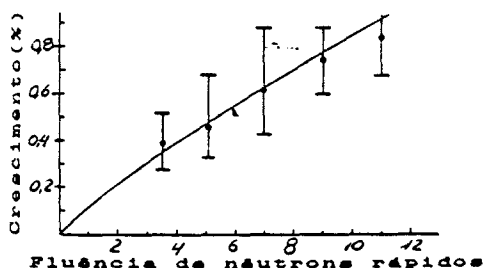


Figura 5: Crescimento axial das varetas combustíveis irradiadas no programa de queima prolongada da ABB-CE.

Observou-se que as varetas com pastilhas de UO_2 anulares ou com pastilhas de tamanhos reduzidos (foram utilizadas pastilhas com razão altura/diâmetro igual a 0,8) apresentaram crescimentos inferiores aos observados em varetas convencionais (aproximadamente 17% menor ao longo de todo o período de irradiação). Chegou-se à conclusão de que provavelmente isso deveu-se ao fato de haver ocorrido nessas varetas menos interações mecânicas pastilha-revestimento do que é observado em varetas com pastilhas convencionais. Isso mostra que o grau de interação pode ser controlado por efeitos geométricos e/ou efeitos térmicos, como no caso de pastilhas anulares, que apresentam temperaturas centrais mais baixas.

Na Figura 6 apresenta-se as máximas espessuras da camada de óxido nas superfícies externas do revestimento ao longo da irradiação. A dispersão nos resultados apresentados é causada pelas diferenças nas temperaturas do refrigerante e do histórico de operação das varetas. O nível de corrosão do revestimento das varetas mostrou-se muito sensível às condições térmicas do refrigerante.

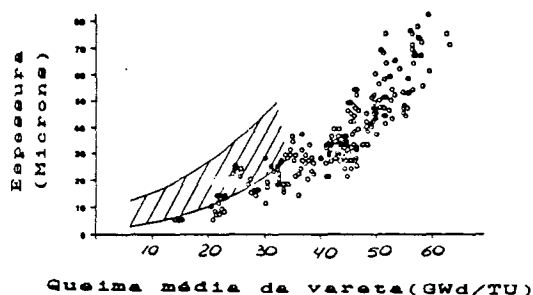


Figura 6: Espessura da camada de óxido no revestimento de varetas combustíveis irradiadas no programa de queima prolongada da ABB-CE.

A fração de gás liberada das pastilhas permaneceu inferior a 2% para varetas irradiadas sob condições normais de operação até queimas médias de 56 Gwd/tU. Percebeu-se, entretanto, que a taxa de liberação de gás é mais acentuada a partir de queimas superiores a 30 Gwd/tU devido ao acentuado aumento da porosidade em uma fina

camada da região superficial da pastilha (efeito "RIM"). Verificou-se que a espessura desta região de formação de poros varia em função da queima local da pastilha e possui uma relação superfície-volume centenas de vezes superior à da porosidade original da pastilha.

Programa japonês. No Centro de Testes de Engenharia Nuclear de Potência japonês (NUPEC) vem sendo realizados os testes de irradiação do programa japonês de queima prolongada de combustíveis para reatores nucleares de potência PWR e BWR[3], onde estão sendo analisados os aspectos relacionados à integridade dos elementos combustíveis, liberação dos gases de fissão, variações nas propriedades mecânicas e na resistência a corrosão por água do revestimento das varetas e às mudanças nas características microestruturais do revestimento e das pastilhas combustíveis de UO_2 e $(U,Gd)O_2$. As informações do programa japonês apresentadas no presente trabalho são referentes aos resultados de exames pós irradiação de varetas irradiadas em reatores BWR. Os resultados de exames pós irradiação de varetas irradiadas em reatores PWR não estavam disponíveis até o momento da elaboração deste trabalho.

O crescimento axial observado nas varetas analisadas (revestimento de zircaloy-2) não superou 0,5% após queimas de 48 Gwd/tU (Figura 7).

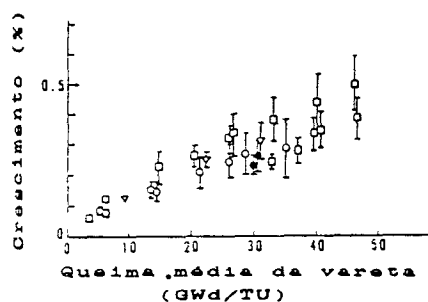


Figura 7: Crescimento axial de varetas de zircaloy-2 irradiadas no programa de queima prolongada japonês.

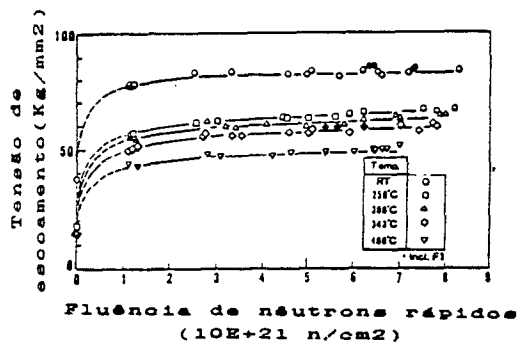


Figura 8: Tensão de escoamento do zircaloy-2 em função da fluência de nêutrons para diversas temperaturas (programa de queima prolongada japonês).

A Figura 8 mostra as curvas que representam a tensão de escoamento do zircaloy-2 em função da fluência de nêutrons rápidos levantadas no programa da NUPEC. Os testes para a obtenção destas curvas foram realizados em diversas temperaturas. Observou-se uma elevação da tensão limite de escoamento do zircaloy-2 que tende a

saturar em níveis relativamente baixos de fluência (aproximadamente $1 \cdot 10^{21} \text{n/cm}^2$), permanecendo constante até fluências próximas a $8 \cdot 10^{21} \text{n/cm}^2$. A deformação plástica de ruptura diminui com a irradiação e também tende a saturar em aproximadamente $1 \cdot 10^{21} \text{n/cm}^2$. O valor mínimo da deformação de ruptura observado foi de 2%.

Quanto ao comportamento de corrosão da superfície externa do revestimento, observou-se uma larga dispersão nos valores obtidos que deveu-se às diferenças na composição das ligas dos revestimentos, bem como às diferentes condições químicas e termohidráulicas do refrigerante dos reatores BWR utilizados no programa.

As taxas de liberação de gases de fissão do combustível em função da queima são mostradas na Figura 9. Observa-se uma dispersão relativamente grande nos valores de liberação a partir de queimas superiores a 15 GWd/tU. Em queimas de 30 GWd/tU, enquanto algumas varetas apresentaram liberações inferiores a 1%, outras apresentaram liberações da ordem de 25%.

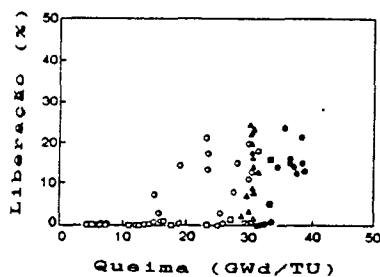


Figura 9: Liberação dos gases de fissão de pastilhas combustíveis de varetas irradiadas no programa japonês de queima prolongada.

A Figura 10 relaciona a taxa de liberação de gases de fissão com a máxima potência atingida durante a operação de varetas que alcançaram queimas superiores a 10 GWd/tU. Observa-se que existe uma forte dependência da liberação de gases de fissão com a máxima potência atingida na vareta durante a irradiação. A liberação intensifica-se em varetas onde a máxima potência atingida supera 250 W/cm, aumentando bruscamente com a elevação da potência. Em geral a máxima potência é atingida nos primeiros ciclos de irradiação.

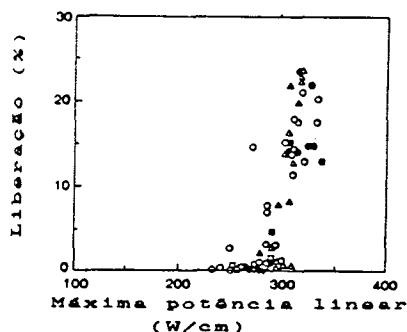


Figura 10: Liberação de gás de fissão em função da máxima potência atingida no combustível durante a operação.

Constatou-se que em queimas superiores a 10 GWd/tU a liberação de gases do combustível depende

fortemente da máxima potência atingida e pouco da queima máxima. Concluiu-se, portanto, que a liberação dos gases de fissão não é controlada apenas por mecanismos que dependem exclusivamente da temperatura instantânea, como a difusão dos gases na matriz do combustível, mas também depende dos efeitos causados por mudanças estruturais permanentes que ocorrem quando a potência linear no combustível supera 250 W/cm.

Nas análises micrográficas de pastilhas combustíveis que apresentaram elevada liberação de gases de fissão, observou-se que em geral a região periférica destas pastilhas apresenta poucas mudanças com relação à estrutura original, exceto em uma fina camada na superfície do combustível onde se forma uma estrutura com porosidade bastante acentuada (a estrutura "RIM"). Na região intermediária destas pastilhas é comum observar-se o crescimento do número e tamanho de poros intergranulares. Na região central das pastilhas normalmente observa-se o crescimento de grãos e a presença de muitos poros interligados nos contornos de grãos, formando caminhos que facilitam a liberação dos gases de fissão.

FATORES QUE LIMITAM A QUEIMA PROLONGADA DE ELEMENTOS COMBUSTÍVEIS

A partir dos resultados obtidos em programas de irradiação de elementos combustíveis em queima prolongada, pôde-se concluir que variações bruscas nas características do desempenho de varetas irradiadas até queimas da ordem de 60 GWd/tU são decorrentes das características de operação do combustível e não propriamente do nível de queima atingido.

Os fatores que efetivamente tem se mostrado limitantes na operação de elementos combustíveis em queima prolongada são a liberação dos gases de fissão das pastilhas combustíveis, responsável pela elevação da pressão interna da vareta e a corrosão da superfície externa do revestimento.

Embora varetas combustíveis irradiadas em diversos reatores tenham apresentado diferentes taxas de liberação de gases de fissão devido às diferentes características de projeto e irradiação destas varetas, todos os exames indicaram a ocorrência de uma significativa elevação da taxa de liberação de gás das pastilhas combustíveis a partir de queimas superiores a 30 GWd/tU.

A formação de uma estrutura altamente porosa tem sido observada em uma fina camada da superfície de pastilhas combustíveis de varetas submetidas a queimas superiores a 30 GWd/tU. Essa estrutura, comumente denominada estrutura "RIM" é mostrada na Figura 11.

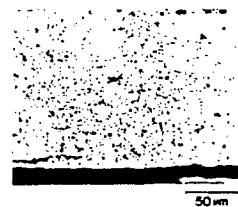


Figura 11: Estrutura "RIM"

O mecanismo responsável pela formação da estrutura "RIM" não está ainda bem esclarecido, mas

acredita-se que esteja relacionado ao fato da queima se processar mais intensamente nas regiões mais externas das pastilhas devido à fissão do plutônio gerado nessa região. A espessura da estrutura "RIM" aumenta linearmente com a queima, entretanto parece não exceder 300 microns em queimas na pastilha de até 60 GWd/tU[4].

Quando os poros presentes na estrutura "RIM" existem isoladamente, estes podem reter os gases de fissão. Entretanto, a densidade numérica destes pequenos poros é tão alta que estes facilmente se conectam, formando caminhos para a liberação de gases de fissão.

Segundo as diversas fontes consultadas, a formação da estrutura "RIM" parece ser a principal responsável pela elevação da taxa de liberação de gases de fissão que se tem observado em combustíveis submetidos a queima prolongada, mesmo quando as potências atingidas nos combustíveis são inferiores ao limiar necessário para que ocorram outras mudanças estruturais nas pastilhas.

A corrosão da superfície externa do revestimento torna-se limitante na queima prolongada de varetas combustíveis à medida que um maior tempo de permanência das varetas no reator implica em uma maior oxidação do revestimento. Na queima prolongada a probabilidade de se atingir os limites estabelecidos pelos critérios de projeto para a espessura máxima da camada de óxido do revestimento aumenta bastante.

A taxa de corrosão da superfície externa do revestimento depende de fatores associados à composição material do revestimento, às condições químicas e termoidráulicas do refrigerante e às temperaturas atingidas no revestimento durante a irradiação. Estes fatores devem ser cuidadosamente controlados quando se pretende prolongar a queima de varetas combustíveis.

PROPOSTAS DE MELHORIAS EM VARETAS COMBUSTÍVEIS PARA OPERAÇÃO EM QUEIMA PROLONGADA

Para permitir que a queima prolongada seja alcançada em reatores nucleares é normalmente necessário aumentar o enriquecimento do combustível. Isso resulta em maiores fatores de pico de potência no núcleo durante a irradiação e, conseqüentemente, maiores temperaturas poderão ser atingidas em algumas varetas combustíveis, acentuando a ocorrência de alguns fenômenos, principalmente a liberação de gases de fissão das pastilhas combustíveis e a corrosão da superfície externa do revestimento.

Algumas medidas têm sido propostas para assegurar um melhor desempenho de varetas combustíveis submetidas à queima prolongada. Uma importante medida adotada neste sentido é a adição de veneno queimável gadolímio em pastilhas de UO_2 com a finalidade de melhorar a evolução da reatividade do combustível ao longo da queima, bem como homogeneizar a queima do combustível no núcleo do reator, reduzindo os fatores de pico de potência que se estabelecem no núcleo.

Outras medidas propostas sugerem modificações nas especificações de projeto das varetas combustíveis.

Doi et alli[5] demonstraram que a utilização de pastilhas combustíveis de UO_2 com tamanhos de grãos maiores que os normalmente especificados para combustíveis comerciais reduzem a liberação de gases de fissão e, conseqüentemente, a elevação da pressão interna das varetas combustíveis.

Moisió et alli[6] irradiaram varetas especialmente projetadas para operação em queima prolongada, contendo pastilhas anulares de UO_2 , que além de proporcionarem maior volume livre para acomodar os gases de fissão liberados, também atingem menores temperaturas centrais. Para reduzir a taxa de corrosão da superfície externa do revestimento empregaram revestimentos de zircaloy com 1% de nióbio na composição da liga.

Corsetti et alli[2] também observaram o melhor desempenho em queima prolongada de varetas combustíveis contendo pastilhas de UO_2 com tamanhos de grãos maiores que 40 microns, dimensões geométricas menores (razão altura/diâmetro igual a 0.8) e também de varetas com pastilhas anulares de UO_2 .

Revestir a superfície interna do revestimento com uma fina camada de grafite tem se mostrado eficiente para reduzir a ocorrência de corrosão sob tensão do revestimento que é observada durante interações pastilha-revestimento[2].

Mogard et alli[7] desenvolveram varetas combustíveis com superfícies internas especialmente conformadas (facetadas), com a finalidade de reduzir os efeitos da interação pastilha-revestimento na homogeneização dos gases internos nas folgas das varetas. Com esta medida evita-se o acúmulo excessivo dos gases de fissão em segmentos isolados das varetas, que é responsável por uma maior depreciação da condutividade térmica da folga nestes segmentos.

CONCLUSÃO

Em programas experimentais de irradiação, varetas combustíveis de LWR tem sido submetidas a queimas de até 60 GWd/tU.

A liberação de gases de fissão do combustível e a oxidação da superfície externa do revestimento têm se apresentado como os principais fatores que limitam o tempo de permanência das varetas combustíveis no núcleo em queima prolongada.

Para melhorar o desempenho global de varetas combustíveis submetidas à queima prolongada sugere-se:

- A utilização de combustível com veneno queimável (U,Gd) O_2 com a finalidade de melhorar a evolução da reatividade do combustível ao longo da queima, bem como homogeneizar a queima do combustível no núcleo do reator, reduzindo os fatores de pico de potência que se estabelecem no núcleo;

- Utilizar pastilhas combustíveis com tamanho médio de grãos superior ao normalmente especificado. Embora pastilhas combustíveis de LWR sejam convencionalmente especificadas com tamanhos de grãos entre 3 e 30 microns, visando obter características mecânicas e estabilidade dimensional adequadas sob irradiação, experiências recentes mostraram que a utilização de pastilhas combustíveis com tamanho médio de grãos entre 30 e 40 microns pode proporcionar uma considerável redução da taxa de liberação de gases de fissão do combustível sem comprometer de forma significativa outros aspectos do desempenho da pastilha;

- Alterações nas dimensões e na geometria das pastilhas combustíveis convencionais visando reduzir os efeitos das interações pastilha-revestimento, bem como reduzir a taxa de elevação da pressão interna da vareta ao longo da queima (neste sentido recomenda-se o emprego de pastilhas anulares);

- A redução da pressão inicial do gás de enchimento das varetas combustíveis, para garantir que no final da irradiação a pressão interna das varetas não supere a pressão do refrigerante. Um valor otimizado para a pressão de enchimento deve ser estabelecido considerando-se que o gás de enchimento tem por função melhorar a condutividade térmica na região da folga pastilha-revestimento e evitar o colapso do revestimento devido à elevada pressão do refrigerante.

- A alteração da composição da liga de zircaloy do revestimento com a finalidade de melhorar sua resistência à corrosão por água (neste sentido têm-se encontrado recomendações de utilizar ligas com 1% de nióbio).

REFERÊNCIAS

- [1] Morel, M. et alli - FRAGEMA Fuel Behaviour at High Burnup - IWGFPT-36, pg 33 (1991);
- [2] Corsetti, L.V. e Smith Jr, G.P. - ABB-CE Experience With High Burnup PWR Fuel Performance - IWGFPT-36, pg 39 (1991);
- [3] Oishi, M. - High Burnup Fuel Behaviour Studies at NUPEC - IWGFPT-36, pg 46 (1991);
- [4] Koizumi, S. - Study on Fission Gas Release From High Burnup Fuel - IWGFPT 36, pg 102 (1991);
- [5] Doi, S. et alli - Improvement of Fuel Pellet for High Burnup - IWGFPT-36, pg 119 (1991);
- [6] Moisis, J. et alli - Experience From Examination of Fuel Rods Irradiated to High Burnup in LOWIISA Reactors - IWGFPR-36, pg 78 (1991);
- [7] Mogard, H. et alli - Improve PCI and FGR Performance of LWR Fuel Using Rifled Cladding - IWGFPT-36, pg 147 (1991);

ABSTRACT

It is discussed here the principal aspects related to LWR fuel pin performance when irradiated in extended burnup conditions. This work emphasizes the phenomena that can limit reactor fuel pin life. It is also suggested some technical design specification modifications for improving the global performance of such pins during extended burnup.