

# DESENVOLVIMENTO E FABRICAÇÃO DE COMBUSTÍVEIS NA FORMA DE DISPERSÕES PARA OS REATORES IEA-R1/SP E ARGONAUTA/RJ

P.E.O. Lainetti\*, J.A.B. de Souza\*\*, G. H. Marcondes\*\*

\* Departamento de Tecnologia de Combustíveis - MC  
Diretoria de Materiais - M  
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP  
Travessa R, nº. 400, Cidade Universitária - S.Paulo - SP - Brasil  
e-mail: lainetti@net.ipen.br

\*\* Divisão de Desenvolvimento do Elemento Combustível - MCP  
Departamento de Tecnologia de Combustíveis - MC  
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP  
Travessa R, nº. 400, Cidade Universitária - S.Paulo - SP - Brasil  
e-mail: gilberto@net.ipen.br  
e-mail: jasouza@net.ipen.br

## RESUMO

O reator IEA-R1 é um reator do tipo piscina e que tem operado a potência de 2 MW. Este reator é usado para a produção de radioisótopos, pesquisas nas áreas de radioquímica e física nuclear, análises de ativação neutrônica, treinamento de pessoal e como uma instalação para testes de irradiação. O núcleo do reator consiste de 30 elementos constituídos de placas combustíveis contendo dispersões de compostos de urânio em uma matriz de alumínio. O programa de fabricação deste tipo de combustíveis começou no IPEN em 1984 com o objetivo de substituir elementos combustíveis importados de alto enriquecimento isotópico e que apresentavam elevadas taxas de queima. Foram fabricados até o presente 22 elementos combustíveis completos e mais 2 parciais, dos quais 18 encontram-se atualmente no núcleo do reator. As primeiras atividades que conduziram ao atual estágio de desenvolvimento foram iniciadas em 1962, no então Instituto de Energia Atômica - IEA, com pesquisas e produção rotineira de elementos combustíveis para o reator Argonauta do IEN/RJ. Este trabalho descreve a experiência acumulada desde aqueles desenvolvimentos pioneiros, bem como as atividades presentes de desenvolvimento de combustíveis com maiores carregamentos de urânio, constituídos de silicetos, cujo objetivo principal será atender a operação a maiores potências (5 MW) do reator IEA-R1

## INTRODUÇÃO

O IEA-R1 é um reator de pesquisas do tipo piscina, moderado e refrigerado a água leve, que se tornou crítico em 17 de setembro de 1957. Este reator pertence à CNEN e está localizado no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP. Até o presente, o reator tem sido operado a potência 2 MW, embora tenha sido projetado para 5 MW.

Nos anos 70, preocupações quanto aos riscos de proliferação e de desvio de urânio levaram o U.S. Department of Energy, em 1977, ao estabelecimento de um programa internacional que tinha como objetivo o desenvolvimento da tecnologia necessária para reduzir, e até mesmo eliminar, o uso do urânio altamente enriquecido (até 93 % em peso de  $^{235}\text{U}$ ) em reatores de pesquisa e testes

de materiais [1,2]. Este programa foi denominado "Reduced Enrichment Research and Test Reactor - RERTR", e estimulou em 1981, juntamente com as restrições quanto ao fornecimento de combustíveis contendo urânio de alto enriquecimento, a decisão do IPEN de iniciar a conversão do reator IEA-R1 para combustíveis de baixo enriquecimento. Os primeiros estudos concluíram que a conversão era possível [3], decidindo-se então pelo desenvolvimento da tecnologia de fabricação de placas combustíveis no IPEN utilizando enriquecimento isotópico de até 19,9 % em peso de  $^{235}\text{U}$  - LEU ("Low Enriched Uranium"). Até então, o reator vinha sendo operado exclusivamente com elementos combustíveis importados de alto enriquecimento isotópico (93 %).

A experiência do IPEN na fabricação de combustíveis na forma de dispersões teve início nos anos

60), com uma série de trabalhos de desenvolvimento e a fabricação de elementos combustíveis para o reator Argonauta do IEN-CNEN/RJ. Nos anos 80 e 90, a ênfase foi o desenvolvimento e a fabricação de elementos combustíveis para o IEA-R1, substituindo-se os elementos importados para possibilitar a continuidade da operação do reator. Estes elementos combustíveis apresentam projeto significativamente mais complexo que os do Argonauta, com especificações mais restritivas.

Procurar-se-á, neste trabalho, fazer uma revisão das atividades desenvolvidas no IPEN, no campo dos combustíveis na forma de dispersões, até o presente, quando a prioridade é a fabricação de uma quantidade substancialmente maior de E.Cs. para atender a maior demanda do reator IEA-R1, devido ao aumento de potência, e o desenvolvimento de combustíveis com maiores carregamentos de urânio.

### HISTÓRICO DO DESENVOLVIMENTO DA FABRICAÇÃO DE DISPERSÕES NO IPEN

As primeiras atividades experimentais no desenvolvimento da fabricação de combustíveis na forma de dispersões de óxidos ocorreram em 1962 na então denominada Divisão de Metalurgia Nuclear. Até 1965 o IPEN (naquele tempo denominado Instituto de Energia Atômica) já havia produzido 9 elementos combustíveis para o reator Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear - IEN-CNEN/RJ. Anteriormente a esta campanha de produção dos elementos combustíveis, algumas séries de estudos experimentais foram desenvolvidas, utilizando-se diferentes proporções de  $U_3O_8$  natural e pó de alumínio, para obter os parâmetros necessários à determinação da composição final e ao projeto da matriz de compactação de briquetes. Estes estudos preliminares foram realizados

empregando-se duas técnicas, a saber: fundição do revestimento ("cast cladding") e o processo conhecido como técnica de laminação de moldura ("picture frame rolling technique"). Este último foi escolhido em função dos bons resultados obtidos em termos de obtenção de resultados reprodutíveis e uniformes e da não-existência de defeitos superficiais e nas extremidades do núcleo deformado. Na figura 1 é apresentado, de maneira esquemática, o método de fabricação empregado nesta técnica, para preparação do conjunto briquete-moldura-revestimento, que sofre então uma série de passes de laminação a quente, seguidos de passes de laminação a frio para acerto final das dimensões das placas. A figura 2 ilustra a deformação mecânica do revestimento e núcleo por meio da laminação.

Os elementos combustíveis fabricados para o reator Argonauta, cuja potência de operação de projeto é de 10 kW térmicos, eram constituídos de 17 placas combustíveis contendo  $U_3O_8$  disperso em alumínio, com enriquecimento isotópico de 19,9 % em peso de  $^{235}U$ . As placas, segundo o projeto deste tipo de combustível, são mantidas unidas por meio de um pino que atravessa as placas. O óxido de urânio enriquecido foi fornecido pela United States Atomic Energy Commission para a CNEN, em função de um acordo de cooperação existente naquela época [4,5,6]. As principais especificações para as placas combustíveis então fabricadas são mostradas na tabela 1.

Entre 1965 e 1981 foram realizados alguns experimentos, baseados na experiência obtida na fabricação das placas e elementos combustíveis para o reator Argonauta. Estas atividades foram conduzidas com o objetivo de determinar a influência de alguns parâmetros em cada uma das diversas fases que compõem o processo de fabricação, bem como a caracterização físico-química de matérias primas e produtos intermediários [8,9,10,11,12,13].

TABELA 1. Especificações das Placas Combustíveis  $U_3O_8$ -Al do Reator Argonauta (IEN-RJ) [7]

Enriquecimo. % em peso $^{235}U$	massa de $U_3O_8$ no núcleo (g)	massa Al (núcleo + revestim. g)	comprimento da placa (mm)	Largura da placa (mm)	Espessura da Placa(mm)	Espessura do núcleo(mm)
19,91	124,6	216,4	610	73	2,42±0,02	1,86

Como uma consequência dos desenvolvimentos preliminares e do programa estabelecido em 1981, o IPEN iniciou em 1984 a fabricação de elementos combustíveis do tipo MTR ("Material Testing Reactor"). De acordo com este programa, elementos combustíveis de baixo enriquecimento produzidos no IPEN deveriam substituir elementos importados de alto enriquecimento, e que já apresentavam elevada taxa de queima ("burnup"), de maneira a assegurar a continuidade da operação do reator.

A fabricação teve início com a produção de 2 elementos, constituídos de dispersões de  $U_3O_8$ -Al com cerca de 20 % de enriquecimento isotópico, chamados de parciais. Isto porque os elementos, cujos números eram IEA-R1 128 e 129, possuíam 2 e 10 placas combustíveis respectivamente, enquanto os elementos padrão normais

são constituídos de 18 placas. Estes elementos eram geometricamente idênticos aos importados, havendo apenas a substituição das placas combustíveis ausentes por placas de alumínio. Um programa de qualificação dos elementos combustíveis foi conduzido no IPEN antes do início da produção regular. Inicialmente, os elementos foram colocados na periferia do núcleo, esperando-se até que atingissem uma taxa de queima equivalente a 4 % antes da sua mudança para pontos internos do caroço, onde os fluxos neutrônicos são mais elevados. As especificações destes elementos combustíveis foram desenvolvidas com base na experiência internacional de utilização de placas na forma de dispersões em reatores de pesquisa e nos exames de pós-irradiação. Dessa forma

também foram estabelecidos os procedimentos de inspeção para qualificação dos combustíveis [14,15].

Em 1988, após os testes com os elementos parciais, que permitiram avaliar o seu bom desempenho operacional, foi iniciada a produção regular, com a entrega para o reator dos primeiros elementos completos do tipo padrão, série esta que foi iniciada com o elemento IEA-R1 130. Desde então foram produzidos 18 elementos completos do tipo padrão e mais quatro do tipo controle, constituídos de 12 placas combustíveis e com características que permitem a inserção das barras de controle do reator. Na figura 3 pode-se observar um gráfico com a produção de elementos combustíveis ao longo dos anos. Em 1991 também foram produzidas 26 placas combustíveis para o reator Argonauta.

Os elementos fabricados atualmente são constituídos de dispersões de  $U_3O_8$  em alumínio, com concentrações de urânio de cerca de  $1,8 \text{ g/cm}^3$  e aproximadamente 27 % de fração volumétrica da fase dispersa no núcleo. O enriquecimento do urânio empregado nos combustíveis é de  $19,90 \pm 0,05 \%$  em peso de  $^{235}\text{U}$ . Em outras palavras, cada placa combustível contém, atualmente, cerca de 9,9 g de U, o que equivale a cerca de 180 g deste isótopo fissil por elemento combustível do tipo padrão (18 placas por elemento). Com a produção destes elementos no país, evitou-se a compra no mercado externo, representando uma economia de divisas da ordem de a US\$ 1,5 milhões. Os primeiros elementos constituídos de dispersões  $U_3O_8$ -Al produzidos no IPEN já apresentam taxas de queima próximas de 30 % (elemento IEA-R1 n° 130 já atingiu 30 % de átomos de  $^{235}\text{U}$  queimados), o que atesta um bom desempenho operacional.

Além de constituir uma ferramenta útil na pesquisa e no treinamento de pessoal, o reator IEA-R1 pode ser utilizado na produção de radioisótopos de emprego industrial e na medicina. Nas condições atuais de operação do reator, ou seja: potência de 2 MW, fluxo neutrônico de  $1,5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2$ , operação 8 horas por dia, 5 dias por semana, a produção de radioisótopos tem atendido razoavelmente a demanda nacional [16]. No campo da medicina nuclear as condições são algo diferentes. É possível produzir alguns radioisótopos, como por exemplo:  $^{24}\text{Na}$ ,  $^{42}\text{K}$ ,  $^{82}\text{Br}$ ,  $^{35}\text{S}$ ,  $^{32}\text{P}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ , e  $^{131}\text{I}$ . Contudo, alguns radioisótopos como o  $^{125}\text{I}$  e o  $^{99}\text{Mo}$  (gerador do  $^{99m}\text{Tc}$ ) não podem ser produzidos. Para tornar possível a produção destes radioisótopos as condições de operação têm que ser modificadas, com o aumento da potência para 5 MW, o aumento do fluxo neutrônico para cerca de  $10^{14} \text{ n/cm}^2$  e a operação contínua em ciclos de pelo menos 3 semanas [17]. Para tornar possível estas condições de operação do reator, combustíveis com maiores densidades de urânio devem ser produzidos.

#### DESENVOLVIMENTO DE COMBUSTÍVEIS COM MAIORES CARREGAMENTOS DE U.

Além da produção rotineira de elementos combustíveis dos tipos padrão e de controle contendo dispersões de  $U_3O_8$  em alumínio, o desenvolvimento de combustíveis avançados com maiores carregamentos de urânio por placa constitui uma das atividades essenciais do Departamento de Tecnologia de Combustíveis do IPEN. Para tanto, diversos processos, tanto químicos quanto cerâmicos e metalúrgicos, associados à obtenção do intermetálico  $U_3Si_2$ , e também à produção de placas, vêm sendo desenvolvidos.

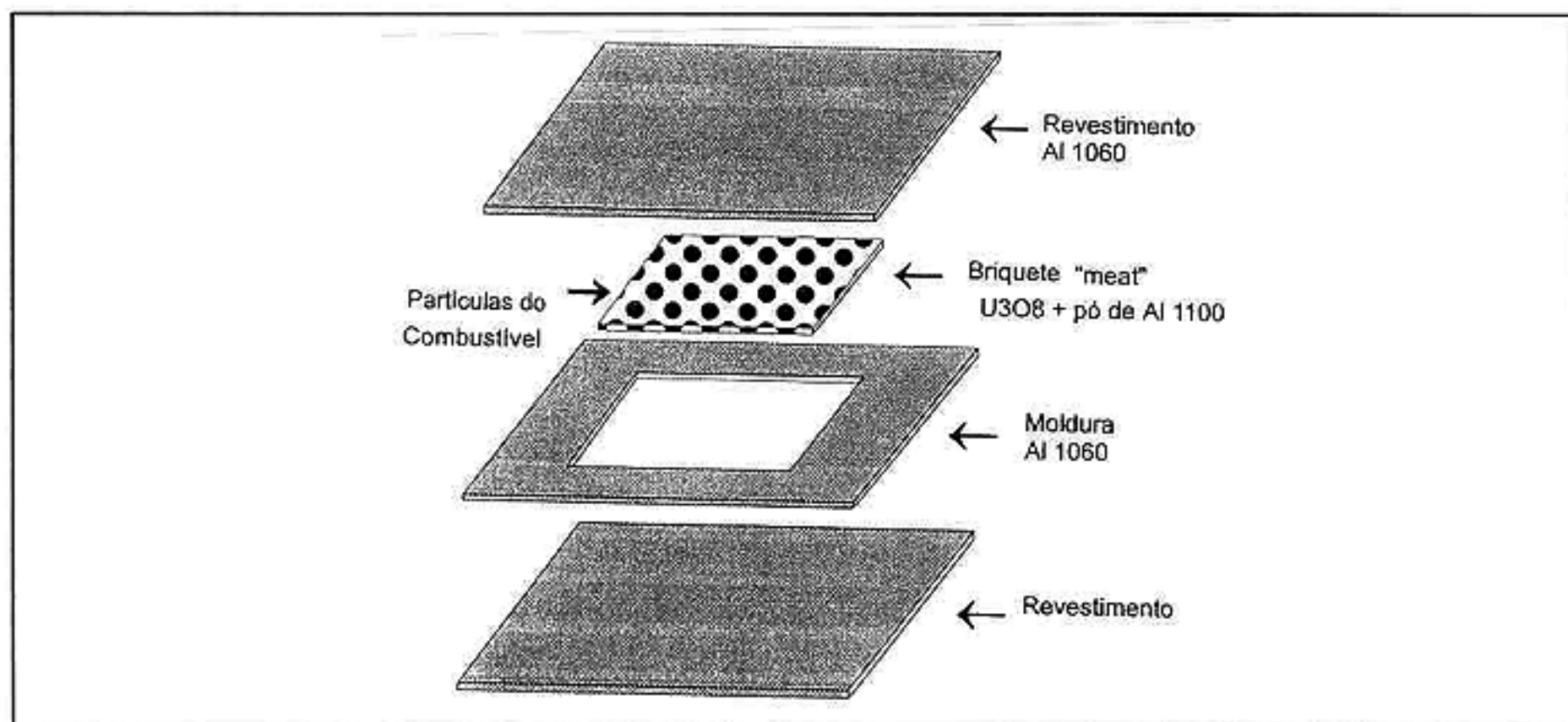


Figura 1. Perspectiva explodida do conjunto briquete-moldura-revestimento

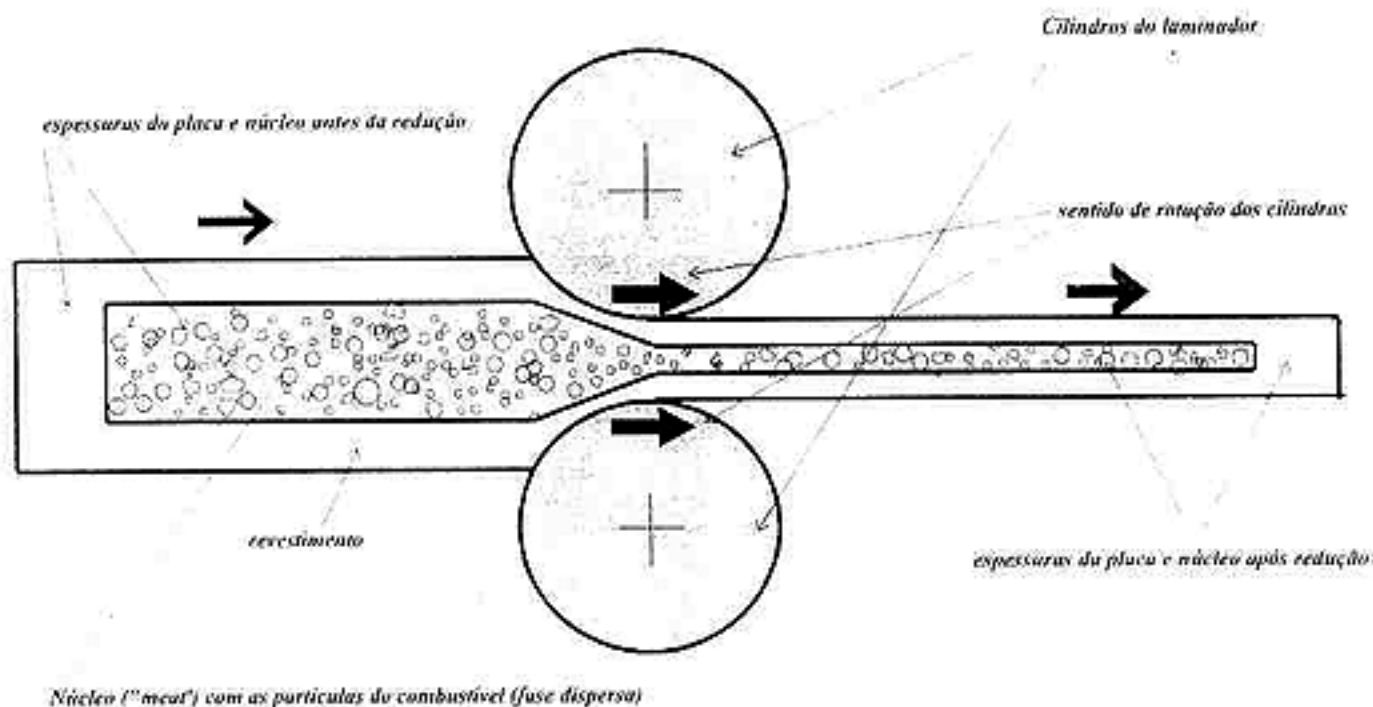


Figura 2. Desenho esquemático de um passe de laminação de uma placa combustível

Cabe frisar que a necessidade de manter o projeto mecânico dos elementos combustíveis, aliada às restrições impostas em termos de fornecimento de urânio altamente enriquecido, determinam que as únicas alternativas existentes, para manter o desempenho do combustível e as características do reator, são o aumento da fração volumétrica da fase dispersa e/ou a substituição por um composto com maior massa específica de urânio. Em função das suas excelentes propriedades, como a massa específica de urânio elevada, relativa facilidade de fabricação e desempenho sob irradiação, o  $U_3Si_2$  foi o composto escolhido para a fabricação de elementos combustíveis avançados com concentração de U elevada.

Contudo, se por um lado a utilização de um composto contendo maiores quantidades de urânio por unidade de volume (maior massa específica de urânio no composto) preserva o projeto mecânico dos elementos, por outro lado penaliza o processo de fabricação, na medida em que são necessárias mudanças que, em geral, exigem alterações significativas de rotas ou vias de obtenção dos diferentes compostos utilizados, bem como dos equipamentos necessários. Isto significa, em outras palavras, necessidade de investimentos. O desenvolvimento deste combustível implica no domínio tecnológico de todas as atividades envolvidas, que vão desde a reversão do  $UF_6$  para o  $UF_4$ , redução deste último a U metálico, preparação do intermetálico  $U_3Si_2$  por meio de técnicas de elaboração de ligas, cominuição do material em atmosfera controlada e otimizando a faixa de tamanhos de partículas adequada ao emprego em combustíveis na forma de dispersões, fabricação dos núcleos ou cernes (briquetes) e laminação das placas. Na figura 4 é apresentada uma comparação entre as rotas

atual e futura de fabricação de combustíveis na forma de dispersões no IPEN.

Do ponto de vista do desenvolvimento de combustíveis avançados a base de  $U_3Si_2$  foi iniciado, em 1993, um programa de fabricação de miniplacas contendo urânio natural. Em 1994 foi concluída a tarefa, com a emissão de um relatório no qual estão descritas todas as atividades envolvidas na fabricação e caracterização de 8 miniplacas com concentrações de urânio de 2; 2,5; 3,0; 3,5; 4,0 e 4,5 g/cm<sup>3</sup>. [18]

A utilização de combustíveis com maior carregamento de urânio implica em maiores solicitações, do ponto de vista do desempenho operacional dos elementos. Portanto, faz-se necessário o emprego de maior número de métodos de caracterização das placas combustíveis e matérias primas, particularmente métodos não-destrutivos. Vem sendo realizado um esforço de desenvolvimento destes métodos com a colaboração de outras áreas. O desenvolvimento de um método não-destrutivo de avaliação da espessura do revestimento é de fundamental importância. Vem sendo estudado, juntamente com a área de aplicações de radioisótopos do IPEN, o projeto e a montagem de um equipamento de medida de espessura, não-destrutivo, por retroespalhamento  $\beta$ . A avaliação da homogeneidade da distribuição do urânio também vem sendo considerada, podendo ser executada basicamente no mesmo equipamento. Outra área que vem merecendo atenção é o desenvolvimento de métodos de determinação de silício e de alumínio e a quantificação das fases combustíveis no composto urânio-silício. Este desenvolvimento vem sendo realizado em conjunto com o Departamento de Caracterização de Materiais - ME.

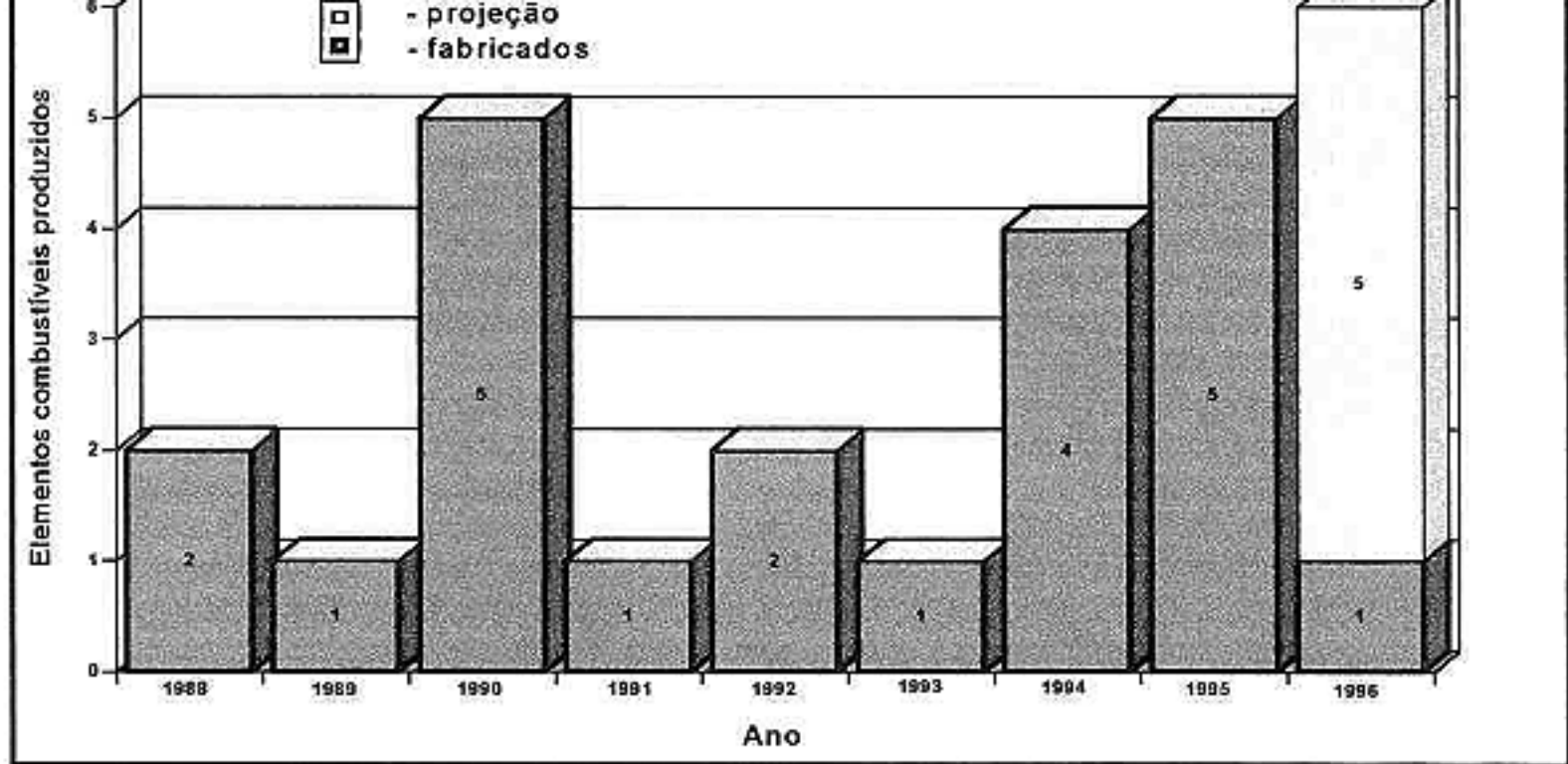


Figura 3. Gráfico com a produção de elementos combustíveis para o reator IEA-R1 anualizada.

### CONCLUSÕES

O Departamento de Tecnologia de Combustíveis do IPEN vem se preparando para os novos desafios, tanto a nível de aumento da produção de elementos, como no desenvolvimento de combustíveis com maiores carregamentos de urânio. Está em andamento o projeto de recuperação do prédio 9M, onde se pretende instalar futuramente as Divisões de Processos Químicos e de Desenvolvimento do E.C.. Com isso, reduzir-se-á a

dispersão dos processos de produção em vários prédios existente hoje, aumentando-se a eficiência global da fabricação pela racionalização das atividades e pelo diminuição do fluxo de materiais, o que proporcionará maiores garantias físicas ao material sob Salvaguardas. Em um futuro próximo, haverá condições para atender o fornecimento de elementos do tipo placa para qualquer reator de pesquisas a ser construído no País que utilize esta forma de combustível.

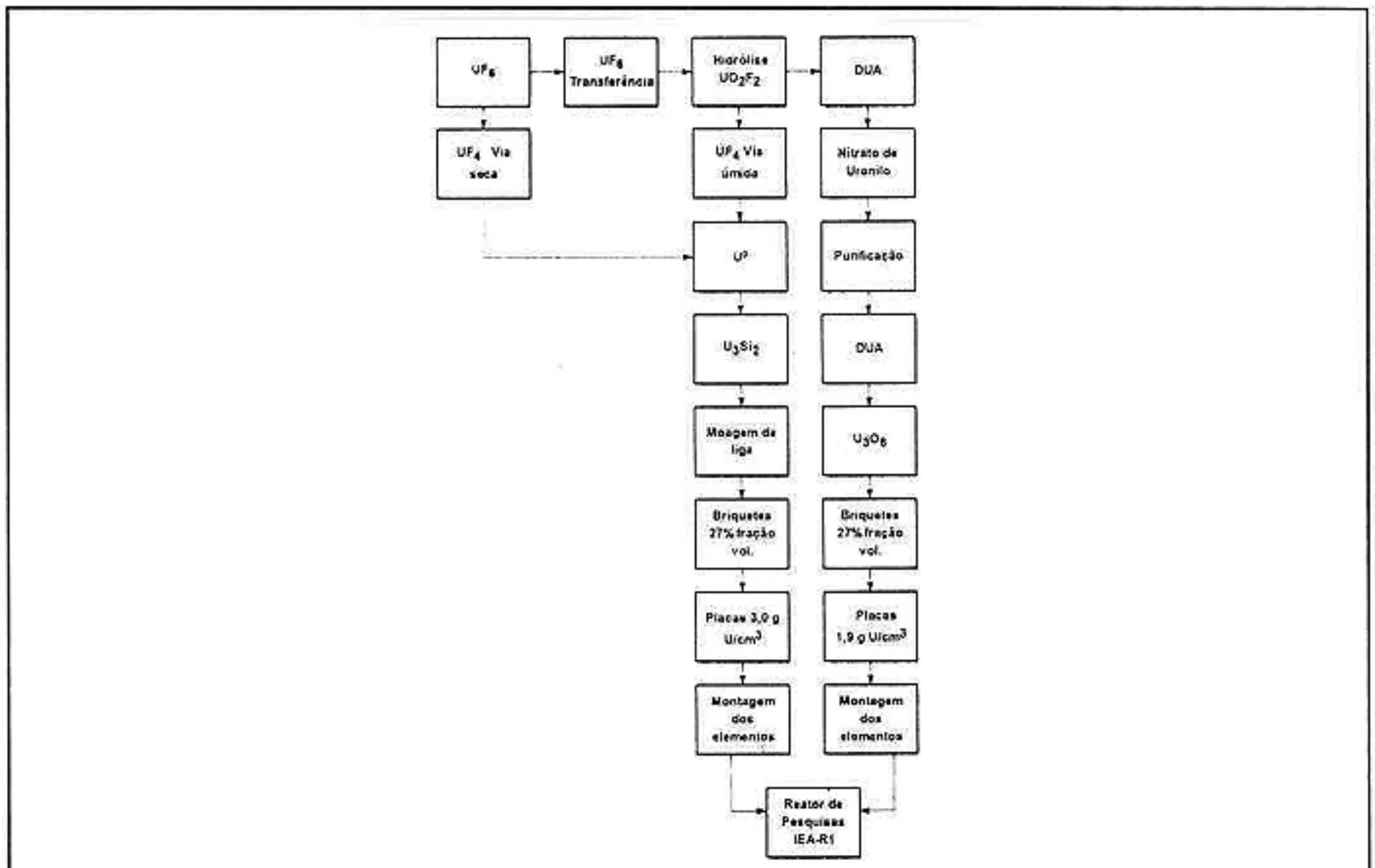


Figura 4: Comparação entre as rotas de fabricação de combustíveis a base de  $U_3O_8$  e  $U_3Si_2$ .

## REFERÊNCIAS

- [1] Stahl, D. "Fuels for Research and Test Reactors, Status Review: July 1982", ANL-83-5 Argonne National Laboratory, Dezembro 1982.
- [2] Travelli, A. "Using Low-Enriched Uranium in Research Reactors: The RERTR Program", presented at the Conference on Peaceful Uses of Nuclear Energy and Non-proliferation, San Carlos de Bariloche, Argentina, 19-21 Abril 1994.
- [3] Schaal, H. and Frajndlich, R. "Theoretical Studies for the Conversion from High Enrichment Fuel to Low Enrichment Fuel for the Research Reactor IEA-R1, S. Paulo, Brazil" KFA-IREIB5/82, Institut für Reaktorentwicklung - Kernforschungsanlage Jülich GmbH, Fevereiro 1982.
- [4] Souza Santos, T.D., Haydt, H.M., Freitas, C.T. - "Experimental Studies for Argonauta Fuel Plates Fabrication" Transactions no.37, Study Group Meeting on the Utilization of Research Reactors, São Paulo 1963, V.1, p. 279-297, AIEA, Viena, 1965.
- [5] Souza Santos, T.D., Haydt, H.M. & Freitas, C.T. "Developments in Fuel Fabrication for Research Reactors in Brazil" Proceedings Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, V.10, p. 26-29, ONU, New York, 1965.
- [6] Souza Santos, T.D., Haydt, H.M. & Freitas, C.T. - "Experimental Studies on the Fabrication of Thin Fuel Plates with  $U_3O_8$ -Al Cermets" Proceedings Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy", V.10, p.26-29, ONU, New York, 1965.
- [7] Souza Santos, T.D., Haydt, H.M., Freitas, C.T. "Fabricação de Elementos Combustíveis para o Reator Argonauta, do Instituto de Engenharia Nuclear" IEA publicação n°.95, São Paulo, maio 1965.
- [8] Cintra, S.H.L., Gentile, E.F., Haydt, H.M., Capocchi, J.D.T. "Desenvolvimento de Placas Combustíveis Contendo Núcleo de Ligas Al-U (20 %) e Al-U (20 %)-Si (0,8%)" IEA publicação n°. 173, São Paulo, novembro.
- [9] Capocchi, J.D.T., Cintra, S.H.L., Gentile, E.F. "Estudo de Fabricação de Combustíveis Planos com de Núcleos de Cermets de 65%  $U_3O_8$  - 35% Al, Revestidos com Liga Alumínio" IEA publicação n°.178, São Paulo, dezembro de 1968.
- [10]. Cintra, S.H.L., Gentile, E.F., Nishioka, I. Abrão, M.A.S., Ambrósio Filho, F. "Análise de Varáveis do Processo de Fabricação de Placas Combustíveis com Núcleos de Dispersões de Al- $U_3O_8$ " IEA publicação n°. 203, São Paulo, janeiro de 1970.
- [11] Cintra, S.H.L., Gentile, E.F., Santos, T.D.S. "Um Ensaio de Alternância Térmica para Placas Contendo Dispersões", IEA publ. n°. 218, São Paulo, junho de 1970.
- [12] Gentile, E.F., Cintra, S.H.L., Tracanella, R.B. "Estudo da Reatividade de Dispersões  $U_3O_8$ -Al" IEA publication n°. 222, São Paulo, setembro de 1970.
- [13] Freitas, C.T., Santos, T.D.S., Gentile, E.F. Ambrozio Filho, F. "Emprego de Co-Lingotagem para Fabricação de Elementos Combustíveis" IEA publication n°. 261, fevereiro de 1972.
- [14] Frajndlich, R., Souza, J.A., Koshimizu, S. "Irradiação e Avaliação de Elementos Combustíveis Fabricados no IPEN/CNEN-SP", Annals of the VI ENFIR, S.J. Campos, dezembro de 1986.
- [15] Perrota, J.A., Mattos, J.R.L., Hayashi, C.S., Silva, A.T., Riella, H.G. "Qualificação sob Irradiação dos Combustíveis Tipo MTR de  $U_3O_8$ -Al de Fabricação IPEN/CNEN-SP no Reator IEA-R1", Anais do 3º Congresso Geral de Energia Nuclear V.6, R. de Janeiro, julho de 1990.
- [16] Dieguez, J.A.D., Souza, J.A., Silva, C.P.G., Lima, W. "Viabilidade de Produção dos Radionuclídeos  $^{32}P$ ,  $^{51}Cr$ ,  $^{131}I$ ,  $^{99}Mo$ ,  $^{92}Ir$  e  $^{125}I$  no IPEN/CNEN-SP para Atender a Demanda Nacional", Internal Report - IPEN/CNEN-SP, São Paulo, janeiro de 1987.
- [17] Silva, C.P.G. "Produção de Radioisótopos para Uso em Medicina Nuclear no IPEN/CNEN-SP" in Academia de Ciências do Estado de S.Paulo - 11º Simpósio Anual Realizado em S.Paulo, 3-7 novembro, 1986, v.1, p.358-61, ACIESP publication, vol.51, São Paulo, 1986.
- [18] Lainetti, P., Souza, J.A., Julio Jr., O. "Desenvolvimento do Processo de Fabricação de Miniplacas com Alta Concentração de Urânio Contendo  $U_3Si_2$ ", Anais do V CGEN, Vol.III, R. Janeiro, Ago/set 1994.

## ABSTRACT

The IEA-R1 is a 2 MW power pool type research reactor. This reactor is used for the production of short life radioisotopes, radiochemistry, neutron activation analysis, nuclear physics, personnel training and as an irradiation facility. The reactor core consists of 30 fuel elements. The fuel production program started in 1984 with the fabrication of two incomplete fuel elements, with 2 and 10 fuel plates, respectively. Up to now 22 complete fuel elements have been produced since 1988, replacing imported fuel elements constituted by 93 % enriched  $UAlx-Al$ . In this paper is described the IPEN preview experience and some ongoing development activities in the fabrication of dispersed fuel elements for IEA-R1 and Argonauta research reactors. A small review of the activities since 1962 up to now and the results of fuel elements production are briefly presented.