

AVALIAÇÃO DA DEGRADAÇÃO DE COMBUSTÍVEL PWR POR EXAMES PÓS-IRRADIAÇÃO E MODELAGEM NO CÓDIGO DEGRAD-1

**Myrthes Castanheira, Georgi Lucki, José Eduardo Rosa da Silva, Luís A. A. Terremoto,
Antonio Teixeira e Silva, Celso A. Teodoro e Margaret de A. Damy**

Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN / CNEN - SP)
Centro de Engenharia Nuclear (CEN)
Av. Professor Lineu Prestes 2242
05508-000 São Paulo, SP
myrthes@ipen.br

RESUMO

Na maioria dos casos, as investigações sobre falhas primárias e secundárias em varetas combustíveis de PWR são baseadas em resultados de exames de pós-irradiação não-destrutivos (atividade do refrigerante, testes de *sipping* e inspeção visual). A metodologia complementar de análise proposta neste trabalho inclui o desenvolvimento de modelagem matemática para caracterização dos efeitos físicos dos mecanismos químicos individuais que constituem a fase de incubação do processo de degradação da vareta combustível após falha primária, integrada ao comportamento do combustível dentro do histórico de operação no reator durante regime estacionário e em transientes normais de potência. Com base em tal modelagem foi elaborado o programa computacional DEGRAD-1. O objetivo prático deste programa é prever as regiões do revestimento susceptíveis a hidratação massiva. As aplicações apresentadas demonstram a validade da metodologia e dos modelos propostos, através da simulação de casos reais, cuja posição dos defeitos era conhecida e os tempos de formação estimados. Através da modelagem, uma relação entre a concentração de hidrogênio no *gap* e a espessura de óxido depositada na parede interna do revestimento é identificada, a qual quando satisfeita, induzirá a hidratação massiva. A novidade neste trabalho é a metodologia que complementa os métodos tradicionais com modelos matemáticos para a evolução do hidrogênio, oxidação e hidratação que incluem refinamentos e critérios aplicáveis a combustíveis PWR e utilizando o código FRAPCON-3 como ferramenta básica.

1. INTRODUÇÃO

A operação contínua de combustíveis falhados pode levar à sua degradação e induzir a liberação de quantidades adicionais de produtos radioativos para o refrigerante. No instante em que se desenvolve um defeito primário penetrante no revestimento de *zircaloy* de uma vareta combustível em operação, o refrigerante flui através da perfuração ocupando os vazios internos da vareta e desencadeia complexos processos de transporte e reações químicas, o que exerce um importante papel no subsequente desempenho termomecânico da vareta. O revestimento se torna fragilizado pelo hidrogênio gerado nas reações químicas e se formam regiões hidretadas. A extensão da degradação física varia em função do tipo, localização e tempo em que o defeito primário foi formado, do projeto da vareta combustível e do histórico operacional de potência. Sob certas condições, a vareta combustível pode se deteriorar gravemente, possibilitando o escape de partículas do combustível para o refrigerante e o resultante elevado nível de atividade pode ser suficiente para impedir a operação do reator.

O impacto prejudicial das falhas em varetas combustíveis sobre os custos operacionais e a disponibilidade das plantas nucleares, a exposição de pessoal à radiação, o envolvimento com a regulamentação de análise de segurança e a aceitação pública da energia nuclear, tem levado a indústria nuclear a devotar considerável esforço na tarefa de identificar o número e a natureza dos defeitos que se apresentam no combustível, de modo que as plantas nucleares possam instituir um programa de medidas para mitigar o impacto das falhas [1]. Por este motivo, foi recomendado pela IAEA que experimentalistas e teóricos devem ser encorajados a desenvolver modelos e códigos de simulação da degradação de varetas combustíveis falhadas [2].

A limitação do método convencional de análise recai no fato de que interpretações mais precisas e detalhadas somente são possíveis de serem confirmadas com a realização de exames destrutivos, o que nem sempre está disponível devido ao custo e logística envolvidos, principalmente em combustíveis irradiados em reatores comerciais. Visando complementar o leque de informações deste método convencional de análise, foi estabelecida uma metodologia complementar de análise para caracterizar os efeitos dos mecanismos individuais que ocorrem na fase de incubação do processo de degradação de uma vareta combustível após falha primária, integrada ao seu comportamento ao longo do ciclo de operação no reator [3].

A aplicação deste método possibilita a simulação e caracterização do desempenho da vareta combustível sob irradiação (antes e após a ocorrência da falha primária), a determinação das

regiões do revestimento susceptíveis à formação de defeitos ou falhas secundárias e a estimativa do momento desta eventual ocorrência.

Com este objetivo, foi desenvolvida uma modelagem para a cinética de transporte da mistura gasosa dentro da vareta falhada, integrada aos processos de radiólise do vapor, oxidação do combustível, oxidação e hidretação do revestimento e às variações térmicas e dimensionais. O código de desempenho do combustível FRAPCON-3 [4], que modela o comportamento termomecânico de uma vareta combustível íntegra (isenta de falha) em ambiente LWR, como foi utilizado como ferramenta básica para o estabelecimento de parâmetros de desempenho da vareta combustível durante a operação nas condições pré e pós-falha primária. A modelagem proposta gerou um novo código computacional específico denominado DEGRAD-1.

2. PROCESSOS ATUANTES NA FASE DE INCUBAÇÃO DA DEGRADAÇÃO DA VARETA COMBUSTÍVEL COM FALHA PRIMÁRIA

O comportamento de uma vareta combustível falhada é de difícil previsão por causa da cinética dos processos envolvidos e da ação de diferentes fatores. O evento da falha primária pode ocorrer em diferentes momentos no ciclo de operação em função da causa geradora. A vareta combustível falhada pode desenvolver defeitos localizados de hidreto que podem ou não se romper, podendo ou não desenvolver trinca. Defeitos secundários em múltiplas posições em uma única vareta combustível foram observados.

Os processos envolvidos na degradação por hidretação secundária estão representados na figura 1. Muitos dos parâmetros mostrados neste fluxograma apresentam relações complexas e interdependentes. Existe ainda uma série de variáveis independentes: estado químico e metalúrgico (micro-estrutural) inicial do revestimento, localização do defeito primário, tempo de operação na condição com defeito, grau de queima do combustível, nível de potência da vareta combustível e mudanças na potência.

O ingresso de água dentro da vareta combustível eleva a temperatura no *gap* devido à redução da condutividade térmica no meio (a condutividade da mistura gasosa que se forma com o ingresso de água numa vareta combustível falhada é menor que a condutividade dos gases presentes no *gap* de uma vareta combustível íntegra). Este regime térmico tem importantes consequências, não apenas para o combustível, mas também nas reações químicas que se desenvolvem no *gap* e no revestimento da vareta combustível.

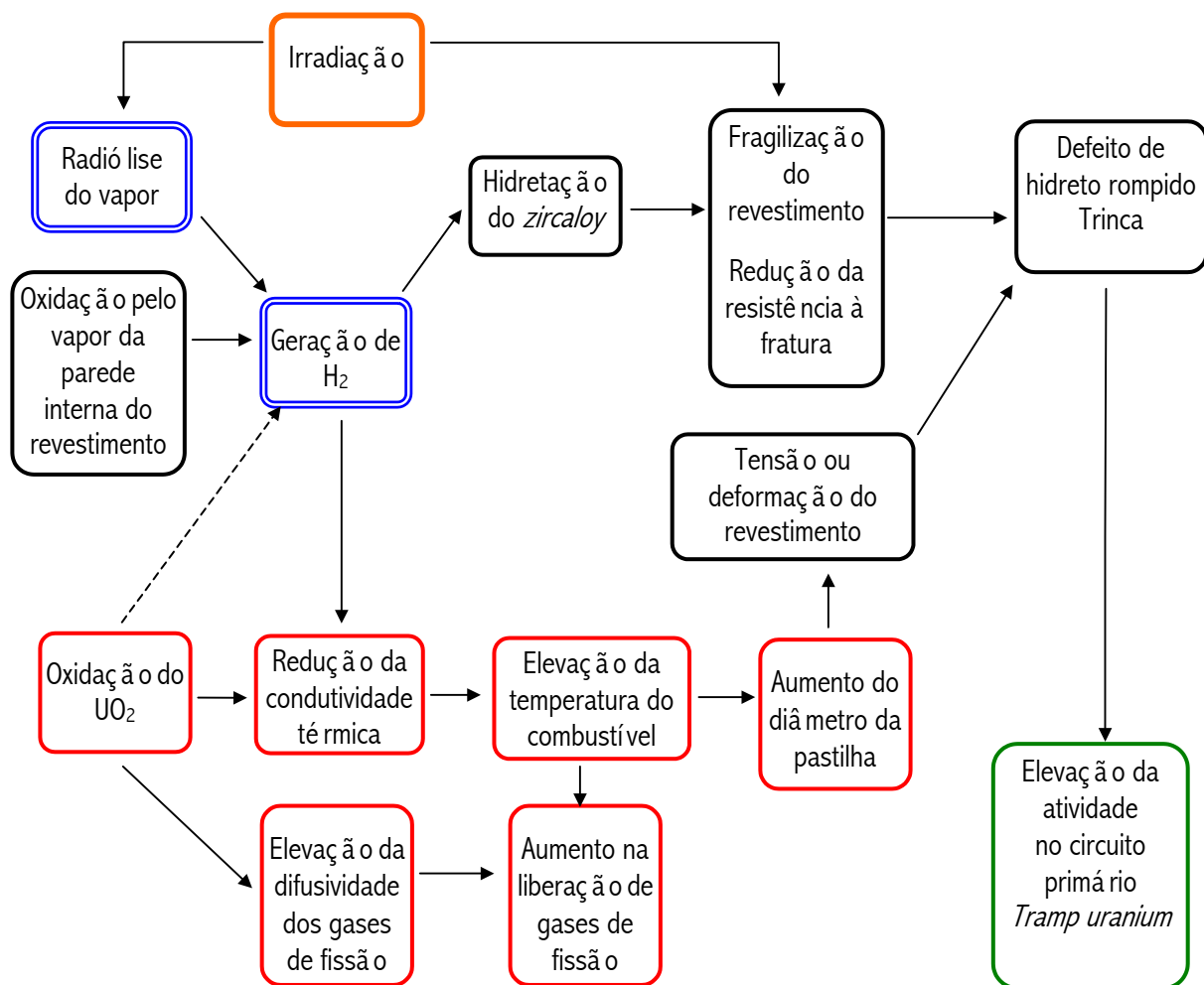


Figura 1 - Fluxograma dos fenômenos envolvidos na degradação do revestimento da vareta combustível

A concorrência entre a cinética de produção de hidrogênio estabelecida pelos processos de radiólise do vapor e oxidação do revestimento é mostrada na figura 2. Substanciais concentrações de H_2 são disponibilizadas no *gap* pela oxidação da superfície interna do revestimento de *zircaloy*. A radiólise do vapor deve efetivamente terminar num curto período de tempo, até que novamente se estabeleça condição propícia para o ingresso de vapor para dentro da vareta combustível. Através da comparação entre as respostas desses dois processos é possível identificar os períodos de predominância de um e outro processo ao longo do tempo de irradiação.

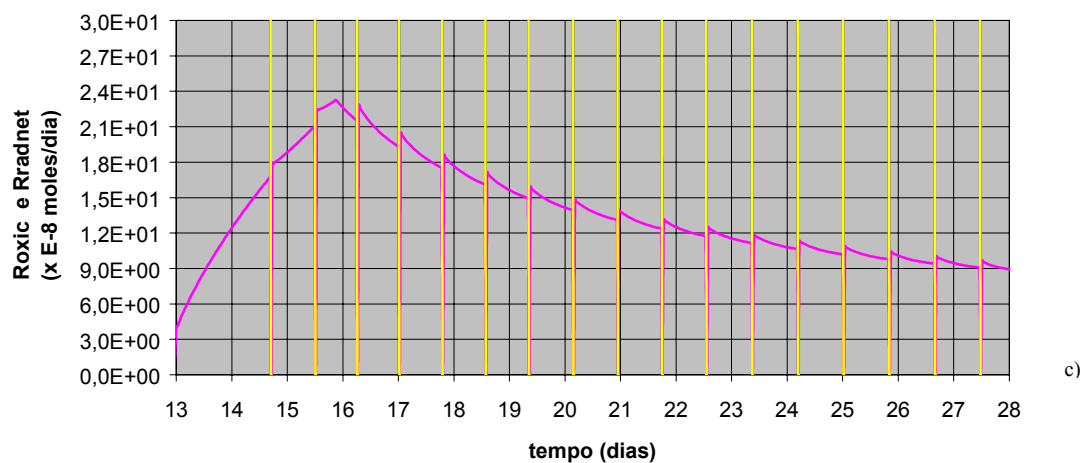
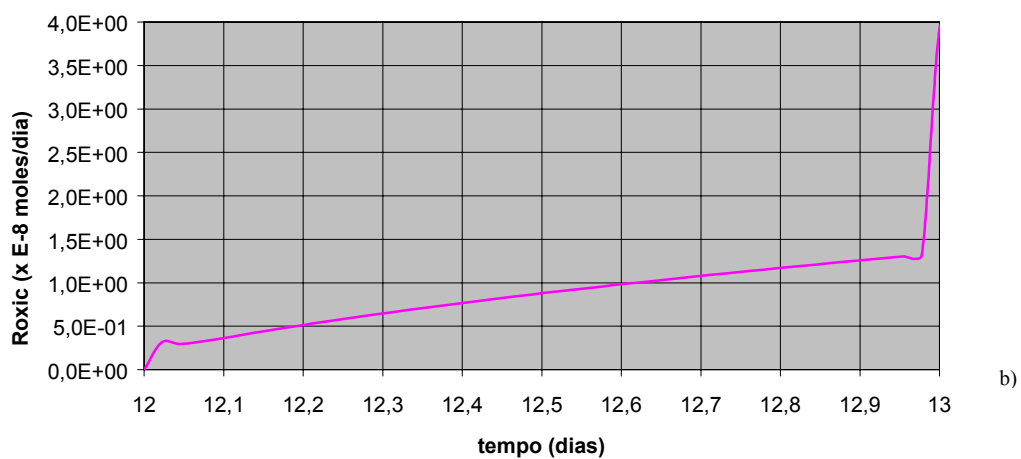
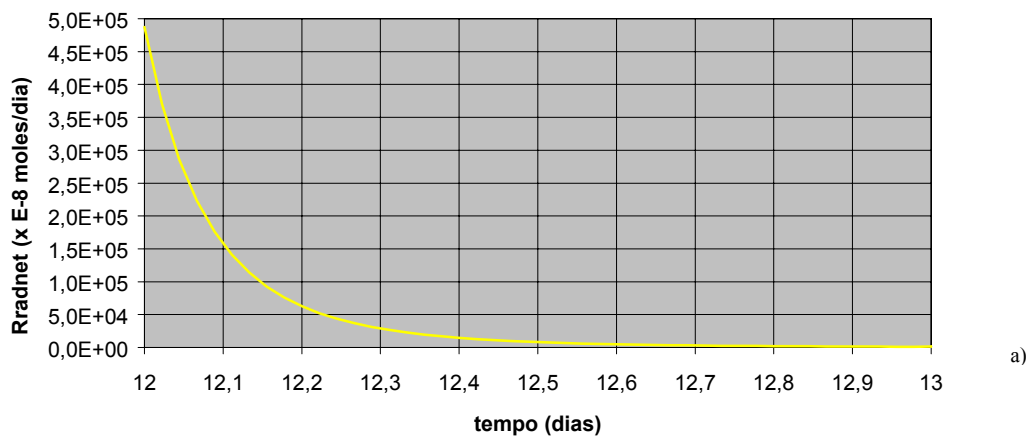


Figura 2 – Simulação no DEGRAD-1 das cinéticas da produção de hidrogênio decorrentes da radiólise do vapor no *gap* (R_{radnet}) e da oxidação do revestimento (R_{oxic}) da vareta combustível falhada

3. ANÁLISE QUALITATIVA DE CAUSA E EFEITO DE FALHAS EM COMBUSTÍVEIS

Os aspectos fundamentais a serem considerados são: a avaliação da liberação de produtos de fissão e particulados do combustível nuclear no refrigerante e a identificação e caracterização das falhas primárias em varetas combustíveis o que auxilia no entendimento das causas e fatores contribuintes.

Para isto, utilizou-se a experiência passada de falhas em combustíveis irradiados no reator Angra-1, com base nos resultados da atividade do refrigerante durante operação, testes de *sipping* e exame visual [5] e [6]: todos os defeitos que resultaram em liberação de atividade ou não, e mesmo aqueles que potencialmente poderiam vir a liberar atividade para o refrigerante (se continuassem sob irradiação no núcleo do reator), ocorridos até a parada do ciclo 10 de operação em junho de 2002, foram sistematicamente discriminados e descritos. A análise de causa-efeito das falhas primárias e secundárias identificadas foi amplamente desenvolvida, o que também incluiu análise qualitativa de degradação das varetas combustíveis falhadas e, complementarmente, uma abordagem dos aspectos referentes à atividade liberada resultante da falha de combustível.

4. METODOLOGIA DE ANÁLISE DO DESEMPENHO DE UMA VARETA COMBUSTÍVEL DURANTE A OPERAÇÃO NAS CONDIÇÕES PRÉ E PÓS-FALHA PRIMÁRIA

A análise de uma vareta combustível falhada deve considerar toda sua vida operacional, incluindo o histórico de irradiação antes e após a ocorrência da falha primária, pois os efeitos físico-químicos que ocorrem durante a degradação são influenciados pelo papel exercido pela potência sobre o estado termomecânico do revestimento. Apenas desta maneira o comportamento de uma vareta combustível falhada pode ser modelado, de modo a determinar as condições que podem resultar na sua degradação.

4.1. Simulação do desempenho no período pré-falha primária

Nesta etapa é simulado o comportamento da vareta combustível nas condições operacionais que antecedem a ocorrência da falha primária. Para isto, faz-se necessário consolidar o histórico real de potência a que a vareta foi submetida nesse período de tempo, já que o desempenho do combustível é influenciado pelas condições operacionais que antecedem o ingresso de vapor dentro da vareta.

Para a realização da simulação de desempenho pré-falha primária, o FRAPCON-3 é utilizado. O objetivo desta etapa é determinar a espessura do *gap* e os parâmetros térmicos decorrentes do histórico de potência e do grau de queima da vareta combustível em análise, usando esses valores como dados de entrada no DEGRAD-1. O histórico real de potência de um ciclo operacional do reator deve ser consolidado numa história representativa que reproduza uma história de queima do combustível consistente e captura as importantes mudanças de potência que possam influenciar no desempenho da vareta combustível. A redução consiste em selecionar os pontos da história de potência que contornem a potência real.

4.2. Simulação do desempenho da vareta combustível no período pós-falha primária

Nesta etapa, é simulado o comportamento da vareta combustível nas condições operacionais após ocorrência da falha primária, utilizando-se para isto o código DEGRAD-1, elaborado tendo por base uma modelagem que descreve a fase de incubação da degradação de uma vareta combustível irradiada após ocorrência de falha primária falhada.

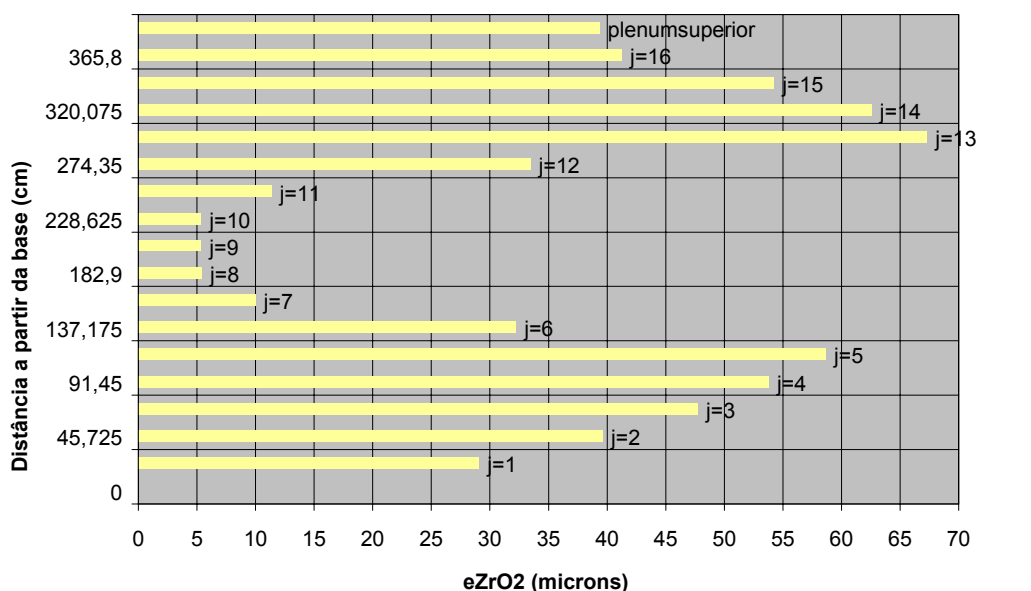
Dentre as premissas e hipóteses estabelecidas na modelagem utilizada ressaltam-se [3]: os perfis de potência axial reproduzem condições de regime estacionário e de transientes de potência mais representativas no ciclo operacional, simulados segundo modelos validados do FRAPCON-3 e o desempenho térmico e a variação dimensional da coluna de pastilhas, *gap* e revestimento da vareta (em função da condutividade térmica da camada de óxido, da mistura gasosa no *gap* e do *zircaloy-4*) são calculados utilizando-se modelos estabelecidos no MATPRO [7].

5. SIMULAÇÃO DE CASOS REAIS DE DEGRADAÇÃO DE VARETAS COMBUSTÍVEIS DO REATOR PWR

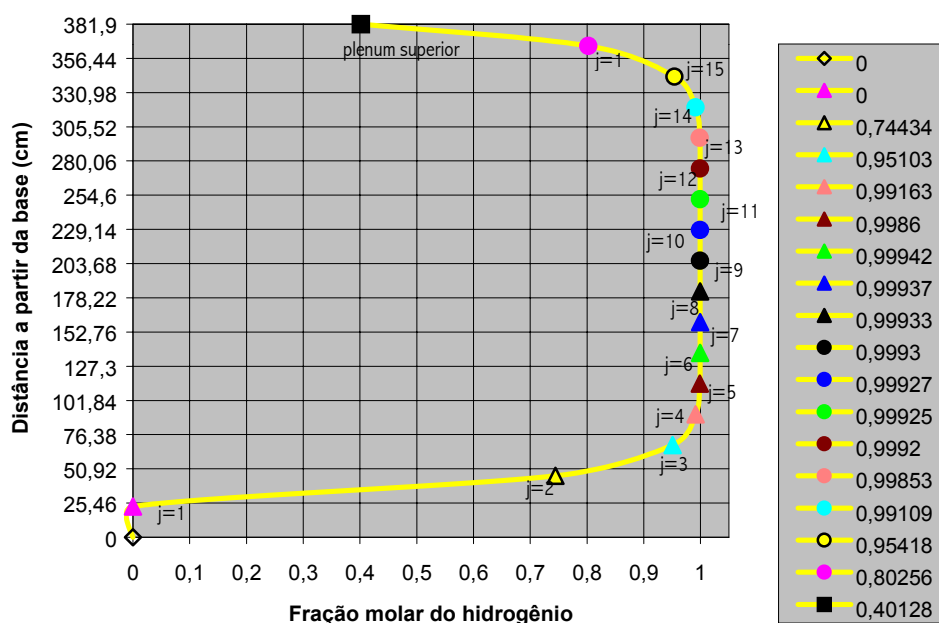
A validação da metodologia de análise e do programa DEGRAD-1 foi realizada através da simulação de casos reais de degradação de varetas combustíveis do reator PWR Angra-1, com falhas primárias secundárias desenvolvidas identificadas, cujas posições eram conhecidas e os tempos de formação estimados, conforme apresentado em [3].

A título de ilustração apresenta-se a seguir um estudo de caso da degradação de vareta falhada durante o ciclo 6. A peculiaridade deste caso é a presença de falha primária na vareta na posição abaixo da grade espaçadora GR8 (região axial $j=1$), tendo a falha secundária (*blister* e trinca axial) se desenvolvido na região entre as grades GR2 e GR3. O perfil axial da espessura da camada de óxido depositada na superfície interna do revestimento simulado através do DEGRAD-1 (para a seleção do tempo de irradiação nesta análise, foi considerado

que o tempo estimado para a abertura da trinca foi de 190 dias após o início da operação) é mostrado na figura 3a. O perfil axial da concentração de hidrogênio previsto no *gap* e *plenum* neste mesmo período é mostrado na figura 3b.



a)



b)

Figura 3 – Simulação no DEGRAD-1 da vareta combustível após 253 dias no ciclo 6: a) perfil axial da espessura de ZrO_2 na superfície interna do revestimento; b) fração molar axial do hidrogênio no *gap* e no *plenum*.

A análise conjunta dos resultados apresentados nas figuras 3a e 3b indica que as regiões axiais $j = 6$ a 12 eram as mais susceptíveis à absorção massiva de hidrogênio. Tais regiões correspondem àquelas entre as grades espaçadoras GR2 a GR6. Tal resultado apresenta razoável concordância com as observações da inspeção visual [6].

O nível da susceptibilidade a hidratação massiva pode ser delineado com os resultados obtidos na simulação através do DEGRAD-1, constando-se um nível crescente de intensidade da absorção massiva de hidrogênio na seguinte ordem de posições axiais: $j = 6$ (27,43%) – 7 (61,13%) – 10 (62,20%) – 11 (62,22%) – 9 (62,62%) – 8 (64,58%) – 12 (75,28%). Isto significa que a região axial posicionada na altura da grade espaçadora GR3 foi identificada como sujeita mais agressivamente a hidratação massiva. Tal dedução confirma a posição da trinca axial identificada durante a inspeção visual na parada do ciclo 6. A ponta da trinca deve ter se originado nesta região, crescendo axialmente em direção à grade espaçadora GR2. As demais áreas identificadas nesta análise se justificam como regiões onde os precipitados de hidreto ainda não estavam plenamente desenvolvidos no final do ciclo. Provavelmente por este motivo não foram identificados. A realização de exames destrutivos na vareta combustível poderia confirmar a previsão destas áreas como regiões de susceptibilidade.

Com base em tais resultados, considerações puderam ser feitas quanto ao tempo estimado para ocorrência da falha secundária (trinca axial), com base na leitura das atividades equivalentes do iodo apresentadas em [6].

6. CONCLUSÃO

Casos reais de varetas combustíveis falhadas em diferentes posições axiais, submetidas a diferentes níveis de potência em ambiente PWR, são satisfatoriamente reproduzidos através do programa DEGRAD-1, acoplado à metodologia complementar de análise. Através da modelagem desenvolvida, verificou-se a existência de uma relação entre a concentração de hidrogênio no *gap* e a espessura de óxido depositada na parede interna do revestimento, a qual quando satisfeita, induzirá a hidratação massiva. A metodologia proposta neste trabalho pode vir a ser uma eficiente ferramenta de análise com aplicação prática em reatores PWR, podendo ser utilizada na avaliação de procedimentos operacionais ou de novos projetos de combustíveis, visando a mitigação do impacto da operação com combustíveis falhados.

REFERÊNCIAS

1. International Atomic Energy Agency. *Review on fuel failures in water reactors*, TRS-388, Vienna: IAEA (1998).
2. International Atomic Energy Agency. *Fuel failure in water reactors: causes and mitigation*. TECDOC-1345, Vienna: IAEA (2003).
3. M. Castanheira, Análise dos mecanismos de degradação de varetas combustíveis falhadas em reatores PWR.. Tese (Doutorado) – IPEN/USP, São Paulo (2004).
4. G.A. Berna, C.E. Beyer, K.L. Davis, D.D. Lanning, FRAPCON-3: a computer code for the calculation of steady state, thermal-mechanic behavior of oxide fuel rods for high burnup, NUREG-6534 PNNL-11513, Pacific Northwest National Laboratory, (1997).
5. M. Castanheira, Mecanismos de degradação de combustível: análise de causa e efeito das falhas primárias e secundárias identificadas nos combustíveis irradiados até o ciclo 10 no reator Angra-1, P&D.CENC.CENC.013.00 RELT.01.00, IPEN-CNEN/SP (2002).
6. J.L.C. Chapot, R. Suano, N. Couto, J.A. Perrotta, J.E.R. da Silva, L.A.A. Terremoto, M. Castanheira, “Fuel failures at Angra-1: cause and mitigation”, *Technical Meeting on Fuel Failures in Water Reactors: Causes and Mitigation*, Bratislava, (June 2002) *Proceedings...* Vienna: IAEA, 2003. (TECDOC-1345).
7. D.L. Hagrman, G.A. Reyman, R.E. Mason (Ed.), *MATPRO – Version 11 (Revision 2), a handbook of materials properties for use in the analysis of light water reactor fuel rod behavior*, NUREG/CR-0479 TREE-1280, Washington D.C.: DOE (1981).

ABSTRACT

On the majority of the cases, the inquiries on primary failures and secondary in PWR fuel rods are based on results of analysis were made use of the non-destructive examination results (coolant activities monitoring, sipping tests, visual examination). The complementary analysis methodology proposed in this work includes a modeling approach to characterization of the physical effects of the individual chemistry mechanisms that constitute the incubation phase of degradation phenomenon after primary failure that are integrated in the reactor operational history under stationary operational regime, and normal power transients. The computational program called DEGRAD-1 was developed based on this modeling approach. The practical outcome of the program is to predict cladding regions susceptible to massive hydriding. The applications presented demonstrate the validity of proposed method and models by actual cases simulation, which (primary and secondary) defects positions were known and formation time was estimated. By using the modeling approach, a relationship between the hydrogen concentration in the gap and the inner cladding oxide thickness has been identified which, when satisfied, will induce massive hydriding. The novelty in this work is the integrated methodology, which supplements the traditional analysis methods (using data from non-destructive techniques) with mathematical models for the hydrogen evolution, oxidation and hydriding that include refined approaches and criteria for PWR fuel, and using the FRAPCON-3 fuel performance code as the basic tool.