



INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**Análise Neutrônica e do Comportamento sob Irradiação de Combustíveis
Tolerantes à Falha**

ALFREDO YUUITIRO ABE

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Reatores**

**Orientador:
Prof. Dr. Antonio Teixeira e Silva**

**São Paulo
2023**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**Análise Neutrônica e do Comportamento sob Irradiação de Combustíveis
Tolerantes a Falha**

Versão Corrigida

Versão Original disponível no IPEN

ALFREDO YUUITIRO ABE

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear- Reatores**

**Orientador:
Prof. Dr. Antonio Teixeira e Silva**

**São Paulo
2023**

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho, para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte.

Como citar:

ABE, A. Y. **Análise Neutrônica e do Comportamento sob Irradiação de Combustíveis Tolerantes a Falha**. 2023. 213 f. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN, São Paulo. Disponível em: <<http://repositorio.ipen.br/>> (data de consulta no formato: dd/mm/aaaa)

Ficha catalográfica elaborada pelo Sistema de geração automática da Biblioteca IPEN,
com os dados fornecidos pelo(a) autor(a).

Abe, Alfredo Yuuitiro

Análise Neutrônica e do Comportamento sob Irradiação de Combustíveis Tolerantes a Falha / Alfredo Yuuitiro Abe; orientador Antonio Teixeira Silva. -- São Paulo, 2023. 213 f.

Tese (Doutorado) - Programa de Pós-Graduação em Tecnologia Nuclear (Reatores) -- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2023.

1. Combustível tolerante a acidente. 2. Accident tolerant fuel. 3. ATF. 4. Combustível. 5. Neutrônica. I. Silva, Antonio Teixeira, orient. II. Título.

Agradecimentos

Ao IPEN-CNEN (Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares da Comissão Nacional de Energia Nuclear).

Ao Professor Antonio Teixeira e Silva pela amizade, orientação e a confiança depositada neste trabalho.

Aos colegas do Centro Tecnológico da Marinha em São Paulo e da Superintendência Técnica (DDNM-20) da Diretoria de Desenvolvimento Nuclear da Marinha. Especialmente aos colegas da Divisão de Física de Reatores (Dr. Thiago Carluccio, Dr. Gregorio Souza e MSc. Priscila Sanchez).

À Chefe de Departamento de Licenciamento Nuclear, Dra. Cláudia Giovedi, da Diretoria de Desenvolvimento Nuclear da Marinha, pela amizade, incentivo e a contribuição valerosa para o desenvolvimento autônomo de combustível no âmbito do Programa Nuclear da Marinha.

Aos colegas do LADICON da Diretoria de Desenvolvimento Nuclear da Marinha, especialmente ao matemático Caio Mello pelas suas contribuições no programa computacional TRANSURANUS.

Aos colegas do Centro de Engenharia Nuclear do IPEN. Especialmente o Dr. Adimir dos Santos pela amizade e o convívio de anos desde a sua orientação no meu Mestrado. Aos demais colegas e aposentados da Instituição que contribuíram com a minha formação dividindo os seus conhecimentos e as experiências.

A todos e todas a minha gratidão pela oportunidade do convívio ao longo dos vários anos de trabalho, das oportunidades, das experiências e dos aprendizados dentro de um programa de desenvolvimento tecnológico com imensos desafios.

“The important thing is not to stop questioning. Curiosity has its own reason for existing. One cannot help but be in awe when he contemplates the mysteries of eternity, of life, of the marvelous structure of reality. It is enough if one tries merely to comprehend a little of this mystery every day”

Albert Einstein

RESUMO

ABE, Alfredo Y. ***Análise neutrônica e do comportamento sob irradiação de combustíveis tolerantes a falha.*** 2023, 214 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN-CNEN/SP. São Paulo.

O presente trabalho apresenta uma avaliação e análise quanto aos aspectos neutrônicos e de desempenho de combustível para os potenciais candidatos a combustíveis tolerantes a falha (ATF). Na fase inicial do trabalho para o levantamento bibliográfico utilizou-se a metodologia baseada na técnica de maturidade tecnológica (TRL) para avaliar as diversas opções e tecnologias desses combustíveis. Esta fase inicial permitiu identificar nos desenvolvimentos dos combustíveis tolerantes a falha as principais lacunas e as atividades necessárias para a obtenção e utilização comercial em reatores de potência.

As avaliações e as análises neutrônica e de desempenho do combustível dos principais candidatos à combustíveis tolerantes a falha foram realizadas por meio de simulações computacionais utilizando programas de desempenho do combustível (TRANSURANUS) e neutrônica (SERPENT).

As atividades consistiram na avaliação e verificação de um projeto de núcleo de reator constituído de combustíveis tolerantes a falha (combustíveis: UO_2 , U_3Si_2 , UN, $\text{UO}_2\text{-BeO}$) e os revestimentos: ZIRLO, SiC, FeCrAl, AISI-348). Para tanto, foram obtidos e avaliados os principais parâmetros associados ao projeto do núcleo do reator. Além disso, o trabalho envolveu a avaliação de desempenho de um dos revestimentos (FeCrAl) do combustível tolerantes a falha mais promissores considerando as condições de operação normal e em cenário de acidente.

Como conclusão preliminar das atividades desenvolvidas neste trabalho destaca-se a viabilidade neutrônica dos diferentes combustíveis ATF, no entanto em termos de desempenho do combustível nem todas as opções disponíveis ainda possuem grau de maturidade suficiente para aplicação na indústria nuclear em curto e médio prazo.

Destaca-se que este trabalho aborda e busca contribuir com um tema bastante atual e relevante na comunidade nuclear, principalmente os grandes desafios envolvidos no desenvolvimento, fabricação e o licenciamento dos combustíveis tolerantes a falha junto aos órgãos regulatórios.

Palavras-chave: combustível tolerante a falha, ATF, revestimento, neutrônica.

ABSTRACT

ABE, Alfredo Y. *Neutronic analysis and fuel performance behavior of accident tolerant fuel*. 2023, 214 p. Tese (Doutorado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN-CNEN/SP. São Paulo.

This work presents a neutronic and fuel performance assessment and analysis of potential candidates for accident tolerant fuels (ATF). In the initial phase of the work for the bibliographic survey, a methodology based on the Technology Readiness Level (TRL) was considered to evaluate the different existing options and technologies of accident tolerant fuel. This initial phase identified possible gaps and the necessary activities to develop accident tolerant fuels at the readiness level of commercial use in nuclear power reactors.

The neutronic and fuel performance evaluations and analysis of the accident tolerant fuel candidates were performed by means of computer simulations using fuel performance (TRANSURANUS) and neutronics (SERPENT) codes.

Those activities aimed to verify a design of reactor core design with accident tolerant fuels (fuels: UO_2 , U_3Si_2 , UN, $\text{UO}_2\text{-BeO}$ and cladding: ZIRLO, SiC, FeCrAl, AISI-348) taking to account the main parameters related to the reactor core. In addition, this work addresses the fuel performance under normal operating conditions and under accident scenario for one of the most promising fuel cladding candidate (FeCrAl).

As a preliminary conclusion of the activities developed in this work, the design of a reactor with different ATF fuels is feasible and viable, but from the fuel performance point of view, not all available options have a sufficient level of readiness for application in the nuclear industry in the short and medium term.

It is noteworthy that this work addresses and seeks to contribute to a very current and relevant topic in the nuclear community, mainly the major challenges involved in the development, manufacture and licensing processes of accident tolerant fuels for regulatory bodies.

Keyword: accident tolerant fuel, ATF, cladding, neutronic.

LISTA DE TABELAS

	página
Tabela 2.1 - Divisão do sistema combustível para os principais combustíveis tolerantes a falha.....	41
Tabela 2.2 - Sub-divisão do combustível para os principais combustíveis tolerantes a falha.....	41
Tabela 2.3 - Propriedades e os atributos desejáveis para o revestimento de reatores tipo LWR nas condições de operação normal (ON), Rampa de Potência (RP), Acidente de perda de refrigerante (LOCA), Acidente de Inserção de Reatividade (RIA) e Perda de Energia Externa (<i>Station Blackout</i> – SOB).....	42
Tabela 2.4 - Propriedades e os atributos desejáveis para o combustível de reatores tipo LWR nas condições de operação normal (ON), Rampa de Potência (RP), Acidente de perda de refrigerante (LOCA), Acidente de Inserção de Reatividade (RIA) e Perda de Energia Externa (<i>Station Blackout</i> – SOB).....	42
Tabela 2.5 - Principais propriedades dos elementos que podem ser utilizados como camada protetiva.....	45
Tabela 2.6 - Principais propriedades dos óxidos formados na camada protetiva.....	45
Tabela 2.7 - Composição em percentual de massa dos principais elementos constituintes da liga de FeCrAl, onde o percentual de massa de Ferro é o balanço... ..	57
Tabela 2.8 – Possíveis elementos aditivos no combustível para melhoria da condutividade térmica.	77
Tabela 2.9 – Condutividade térmica em função da concentração do óxido de berílio.	77
Tabela 3.1 - Dados do experimento PUZRY.....	101
Tabela 3.2 – Resultados experimentais do experimento PUZRY.....	102
Tabela 3.3 - Dados do <i>benchmark</i> numérico do CRP-ACTOF.....	105

Tabela 3.4 – Módulos do programa TRANSURANUS versão 2017 (v1m1j17) alteradas para a inclusão da liga de FeCrAl como opção de revestimento.....	109
Tabela 3.5 – Resultados das simulações do experimento PUZRY com diferentes versões do programa TRANSURANUS.....	114
Tabela 3.6 - Principais dados de projeto do reator AP-1000.....	134
Tabela 3.7 – Fatores de multiplicação infinito de nêutrons (K_{inf}) para diferentes sistemas combustíveis (combustível e revestimento) candidatos a ATF.....	136
Tabela 3.8 – Fatores de multiplicação infinito de nêutrons em ordem decrescente para os diferentes sistemas combustíveis (combustível e revestimento)candidatos a ATF.....	138
Tabela 3.9 – Coeficiente de reatividade do moderador para o intervalo de temperatura de 498 até 573 Kelvin.....	192
Tabela 3.10 – Reatividade do sistema combustível (ZIRLO™ + UO ₂) em função da espessura da camada de cromo.....	196
Tabela 3.11 – Reatividade em função da mudança da espessura do revestimento.....	197
Tabela 3.12 – Fatores de multiplicação infinito de nêutrons em função da mudança da espessura do revestimento de FeCrAl, o espaçamento centro a centro entre as varetas e o teor de ²³⁵ U no combustível.....	201
Tabela 3.13 – Desempenho mecânico do revestimento FeCrAl com diferentes espessuras.....	204

LISTA DE FIGURAS

página

Figura 1.1 - Resumo das características e requisitos desejáveis para combustíveis tolerantes a falha em acidentes.	27
Figura 1.2 - Planejamento estratégico e cronograma para a pesquisa e desenvolvimento de combustíveis tolerantes a falha de acordo com DOE-EUA	29
Figura 2.1 - Distribuição da idade dos reatores em operação (total de 443 reatores) baseado no banco de dados PRIS (<i>Power Reactor Information System</i>) da AIEA.....	35
Figura 2.2 – As fases e os respectivos níveis de maturidade (TRL).....	36
Figura 2.3 - Avaliação de maturidade para os combustíveis tolerantes a falha....	39
Figura 2.4 - Desempenho da amostra com o cromo como camada protetiva para condição normal de operação (temperatura: 360 °C), o triângulo representa o método de deposição CVD, círculo representa o método de arco voltaico e o quadrado representa o método PVD.	50
Figura 2.5 - Desempenho do cromo como camada protetiva para condição de acidente (temperatura : 1200 °C), o triângulo representa o método de deposição CVD e o quadrado representa o método PVD.....	50
Figura 2.6 - Cápsulas contendo amostras utilizadas para a irradiação de amostras no reator ATR durante a fase ATF-1.....	51
Figura 2.7 – Representação esquemática da formação da camada de óxidos em função do aumento da temperatura para a liga de FeCrAl.....	58
Figura 2.8 – Permeabilidade do hidrogênio em função da temperatura para diversas ligas de revestimento, incluindo ligas de FeCrAl.....	61
Figura 2.9 – Ilustração de um combustível de reator HTGR constituído de uma micro-esfera denominada de TRISO.....	63
Figura 2.10 - Processo de fabricação de um tubo com fibras de SiC.....	64
Figura 2.11 - Comportamento da degradação da condutividade térmica com a irradiação.....	67
Figura 2.12 - Comportamento da liberação de gases do combustível ADOPT comparado com combustível padrão.....	72
Figura 2.13 – Formato dos poros para um combustível padrão e com a presença de dopante.....	72

Figura 2.14 - Microestrutura de uma pastilha padrão de UO_2 e UO_2 dopado com Cr_2O_3	74
Figura 2.15 - Condutividade térmica do U_3Si_2 em função da temperatura	81
Figura 3.1 – Diagrama esquemático da seção de teste de tubos.....	101
Figura 3.2 – Fotografia do tubo após o ensaio de pressurização do caso 10 do experimento PUZRY.....	103
Figura 3.3 – Perfil de potência adotada no <i>benchmark</i> numérico do CRP-ACTOF.....	104
Figura 3.4 – Resultados obtidos com o programa TRANSURANUS versão 2019 (v1m3j19) para o revestimento de Zircaloy-4.....	112
Figura 3.5 – Comparação entre os resultados obtidos com as versões 2017 (v1m1j17) e 2019 (v1m3j19).....	115
Figura 3.6 – Comparação entre os tempos de ruptura obtidos com os revestimentos Zircaloy-4 e FeCrAl juntamente com o resultados obtidos no projeto ACTOF com o programa BISON.....	116
Figura 3.7 – Comparação entre os resultados obtidos para os revestimentos de Zircaloy-4 e FeCrAl com a versão 2019 (v1m3j19) e 2017 (v1m1j17) do programa TRANSURANUS e os valores experimentais.....	117
Figura 3.8 – Dependência da corrosão em alta temperatura (1200 °C em 4 horas) com as concentrações dos elementos Al e Cr na liga de FeCrAl.....	120
Figura 3.9 – Comportamento das temperaturas centrais dos combustíveis para diferentes revestimentos obtidos com o programa TRANSURANUS.....	121
Figura 3.10 – Comportamento das pressões interna das varetas combustíveis para diferentes revestimentos obtidos com o programa TRANSURANUS.....	122
Figura 3.11 - Comportamento das folgas (<i>gap</i>) entre a pastilha combustível e parede interna de diferentes revestimentos obtidos com o programa TRANSURANUS.....	124

Figura 3.12 - Comportamento das camadas de óxido de diferentes revestimentos obtidos com o programa TRANSURANUS.....	125
Figura 3.13 – Comparação entre os resultados obtidos dos programas FRAPCON e TRANSURANUS para a camada de óxido de diferentes revestimentos.....	127
Figura 3.14 - Seção de choque de total dos isótopos ^{14}N e ^{15}N (base dados ENDF/B-VIII versão 0).....	138
Figura 3.15 - Seção de choque de captura radioativa dos isótopos ^{14}N e ^{15}N (base dados ENDF/B-VIII versão 0).....	139
Figura 3.16 – Reatividade do sistema UN + ZIRLO TM em função abundância (%) isotópica do ^{15}N	140
Figura 3.17 - Seção de choque total dos diversos componentes dos combustíveis ($\text{UO}_2\text{-BeO}$, UN, U_3Si_2): Berílio, Oxigênio, ^{14}N , ^{15}N , ^{28}Si , ^{29}Si e ^{30}Si (base dados ENDF/B-VIII versão 0).....	141
Figura 3.18 - Seção de choque de captura radioativa dos diversos componentes dos combustíveis ($\text{UO}_2\text{-BeO}$, UN, U_3Si_2): Berílio, Oxigênio, ^{14}N , ^{15}N , ^{28}Si , ^{29}Si e ^{30}Si (base dados ENDF/B-VIII versão 0).....	141
Figura 3.19 - Seção de choque de captura radioativa dos nuclídeos componentes do revestimento de SiC: ^{12}C , ^{13}C , ^{28}Si , ^{29}Si e ^{30}Si (base dados ENDF/B-VIII versão 0).....	142
Figura 3.20 - Seção de choque de captura radioativa dos principais nuclídeos componentes do revestimento FeCrAl: ^{56}Fe , ^{52}Cr , e ^{27}Al (base dados ENDF/B-VIII versão 0).....	142
Figura 3.21 - Seção de choque de captura radioativa dos principais nuclídeos componentes do AISI-348: ^{56}Fe , ^{52}Cr , e ^{58}Ni (base dados ENDF/B-VIII versão 0).....	143
Figura 3.22 - Seção de choque de captura radioativa dos principais nuclídeos componentes do ZIRLO TM : ^{90}Zr , ^{93}Nb , e ^{120}Sn (base dados ENDF/B-VIII versão 0).....	143

Figura 3.23 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e UO_2-BeO) com o revestimento de ZIRLO™	145
Figura 3.24 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e UO_2-BeO) com o revestimento de FeCrAl	146
Figura 3.25 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e UO_2-BeO) com o revestimento de SiC ..	147
Figura 3.26 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e UO_2-BeO) com o revestimento de aço inoxidável AISI-348	148
Figura 3.27 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, SiC e aço inoxidável AISI-348) com o combustível UO_2	149
Figura 3.28 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, SiC e aço inoxidável AISI-348) com o combustível U_3Si_2	150
Figura 3.29 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, SiC e aço inoxidável AISI-348) com o combustível UO_2-BeO	151
Figura 3.30 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, SiC e aço inoxidável AISI-348) com o combustível UN.....	152
Figura 3.31 – Elemento de combustível com varetas combustível, varetas de veneno queimável, tubo guias e tubo de instrumentação.....	154
Figura 3.32 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível sem a presença de varetas de veneno queimável, e com varetas combustíveis com o revestimento de ZIRLO™ e diferentes tipos de combustível (UO_2 , UN, U_3Si_2 e UO_2-BeO).....	155

Figura 3.33 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível sem a presença de varetas de veneno queimável, e considerando varetas combustíveis com o revestimento de FeCrAl e diferentes tipos de combustível (UO ₂ , UN, U ₃ Si ₂ e UO ₂ -BeO).....	156
Figura 3.34 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível sem a presença de varetas de veneno queimável, e varetas combustíveis com o revestimento de SiC e diferentes tipos de combustível (UO ₂ , UN, U ₃ Si ₂ e UO ₂ -BeO).....	157
Figura 3.35 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível sem a presença de varetas de veneno queimável, e com varetas combustíveis com diferentes tipos de combustível (UO ₂ , UN, U ₃ Si ₂ e UO ₂ -BeO) e o revestimento de aço inoxidável AISI-348.....	158
Figura 3.36 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível com a presença de varetas de veneno queimável e varetas combustíveis com o revestimento de ZIRLO™ e diferentes combustíveis (UO ₂ , UN, U ₃ Si ₂ e UO ₂ -BeO).....	159
Figura 3.37 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível com a presença de varetas de veneno queimável e varetas combustíveis com o revestimento de FeCrAl e diferentes combustíveis (UO ₂ , UN, U ₃ Si ₂ e UO ₂ -BeO).....	160
Figura 3.38 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível com a presença de varetas de veneno queimável considerando varetas combustíveis com o revestimento de SiC e diferentes tipos de combustível (UO ₂ , UN, U ₃ Si ₂ e UO ₂ -BeO).....	161
Figura 3.39 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível com a presença de varetas de veneno queimável e varetas combustíveis com o revestimento de aço inoxidável AISI-348 e diferentes combustíveis (UO ₂ , UN, U ₃ Si ₂ e UO ₂ -BeO).....	161

Figura 3.40 – Penalidade na reatividade em função da queima do elemento de combustível devido a presença de veneno queimável considerando varetas combustíveis com os revestimentos ZIRLO™ e FeCrAl com combustível UO ₂ .	162
Figura 3.41 – Reatividade em função da razão de moderação.....	163
Figura 3.42 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons para diferentes combustíveis (UO ₂ , UO ₂ -BeO, U ₃ Si ₂ e UN) com o revestimento de FeCrAl em função do grau de moderação.....	165
Figura 3.43 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons para diferentes combustíveis (UO ₂ , UO ₂ -BeO, U ₃ Si ₂ e UN) com o revestimento de AISI-348 em função do grau de moderação.....	166
Figura 3.44 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons para diferentes combustíveis (UO ₂ , UO ₂ -BeO, U ₃ Si ₂ e UN) com o revestimento de ZIRLO™ em função do grau de moderação.....	166
Figura 3.45 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons para diferentes combustíveis (UO ₂ , UO ₂ -BeO, U ₃ Si ₂ e UN) com o revestimento de SiC em função do grau de moderação.....	167
Figura 3.46 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons do combustível UO ₂ com diferentes tipos de revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do grau de moderação.....	168
Figura 3.47 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons do combustível UO ₂ -BeO com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do grau de moderação.....	169
Figura 3.48 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons do combustível U ₃ Si ₂ com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do grau de moderação.....	170
Figura 3.49 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons do combustível UN com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do grau de moderação.....	170

Figura 3.50 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o combustível UO_2 com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl e SiC) em função da energia.....	173
Figura 3.51 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o combustível UN com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl e SiC) em função da energia..	174
Figura 3.52 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o combustível U_3Si_2 com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl e SiC) em função da energia..	175
Figura 3.53 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o combustível UO_2 -BeO com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl e SiC) em função da energia.....	176
Figura 3.54 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o revestimento ZIRLO™ e diferentes tipos de combustíveis(UO_2 , UN, U_3Si_2 , UO_2 -BeO) em função da energia.....	177
Figura 3.55 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o revestimento FeCrAl e diferentes tipos de combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 , UO_2 -BeO) em função da energia.....	178
Figura 3.56 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o revestimento SiC e diferentes tipos de combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 , UO_2 -BeO) em função da energia.....	179
Figura 3.57 – Cadeia de transmutação do nuclídeo ^{238}U com formação de nuclídeos físseis.....	180
Figura 3.58 – Razão de conversão do combustível UO_2 com diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do tempo de queima.....	182
Figura 3.59 – Razão de conversão do combustível UN com diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do tempo de queima.....	182

Figura 3.60 – Razão de conversão do combustível U_3Si_2 com diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do tempo de queima.....	183
Figura 3.61 – Razão de conversão do combustível UO_2 -BeO com diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do tempo de queima.....	183
Figura 3.62 – Razão de conversão com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e UO_2 -BeO) com o revestimento ZIRLO™ em função do tempo de queima.....	184
Figura 3.63 – Razão de conversão com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e UO_2 -BeO) com o revestimento FeCrAl em função do tempo de queima.....	185
Figura 3.64 – Razão de conversão com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e UO_2 -BeO) com o revestimento SiC em função do tempo de queima.....	185
Figura 3.65 – Coeficiente de reatividade do moderador com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e UO_2 -BeO) com o revestimento ZIRLO™.....	189
Figura 3.66 – Coeficiente de reatividade do moderador com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e UO_2 -BeO) com o revestimento AISI-348.....	190
Figura 3.67 – Coeficiente de reatividade do moderador com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e UO_2 -BeO) com o revestimento FeCrAl.....	191
Figura 3.68 – Coeficiente de reatividade do moderador com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e UO_2 -BeO) com o revestimento SiC.....	192

ABREVIações E NOMENCLATURA

ACCR - *Annular Core Research Reactor*

ACTOF - *Analysis of Options and Experimental Examination of Accident Tolerant Fuels for Water Cooled Reactors*

ADOPT - *Advanced Doped Pellet Technology*

ADS - *Accelerator Driven Systems*

AIEA - *Agência Internacional de Energia Atômica*

AISI - *American Iron and Steel Institute*

ARMOR[®] - *Abrasion Resistant More Oxidation Resistant*

ASME - *American Society of Mechanical Engineers*

ASTM - *American Society for Testing and Material*

ATF - *Accident Tolerant Fuel*

ATR - *Advanced Test Reactor*

BCC - *Body Centered Cubic*

BNL - *Brookhaven National Laboratory*

BWR - *Boling Water Reactor*

CERMET – *Ceramic Metallic*

CFR – *Code Federation Regulation*

CRP - *Coordinated Research Project*

CRUD - *Chalk River Unidentified Deposits*

CVI - *Chemical Vapour Infiltration*

CVD - *Chemical Vapour Deposition*

DBA - *Design Basis Accident*

DFR - *Dounrey Fast Reactor*

DOE- *Department of Energy*

DPA - *Displacement Per Atom*

DT - *Densidade Teórica*

E-ATF - *Enhanced ATF*

EBC - *Environmental Barrier Coating*

EBOR - *Experimental Beryllium Oxide Reactor Program*

EBR - *Experimental Breeder Reactor*

ECCS - *Emergency Core Cooling System*

EDF - *Électricité de France*

ENDF - *Evaluated Nuclear Data File*

EPRI - *Electric Power Research Institute*

EUA - *Estados Unidos da América*

FLEX - *Diverse and Flexible Coping Strategies*

FUMAC - *Fuel Modelling in Accident Condition*

GE - *General Electric*

GDC - *General Design Criteria*

GNF - *Global Nuclear Fuel*

HEU - *High Enrichment Uranium*

HTGCR - *High Temperature Gas Cooled Reactor*

IAEA - *International Atomic Energy Agency*

IFE - *Institute for Energy Technology*

IFPE - *International Fuel Performance Experiments*

IFR - *Integral Fast Reactor*

IMAGO - *Irradiation of Materials for Accident-tolerant fuels in the GOsgen*

IMF - *Inert Matrix Fuel*

INL - *Idaho National Laboratory*

ITU - *Institute for Transuranium Elements*

LEU - *Low Enrichment Uranium*

LOCA - *Loss of Coolant Accident*

LWR - *Light Water Reactor*

MIT - *Massachusetts Institute of Technology*

MITR - *Massachusetts Institute of Technology Reactor*

NEA - *Nuclear Energy Agency*

NITE - *Nano Infiltration Transient Eutectic Phase*

NRC - *Nuclear Regulatory Commission*

ODS - *Oxide Dispersion Strengthening*

OECD - *Organisation for Economic Co-operation and Development*

ON - *Operação Normal*

ORNL - *Oak Ridge National Laboratory*

PCI - *Pellet Clad Interaction*

PCM - *Parte por Cem Mil*

PCMI - *Pellet Cladding Mechanical Interaction*

pH - *Potencial Hidrogeniônico*

PNNL - *Pacific Northwest National Laboratory*

PPM - *Parte por Milhão*

PRW - *Pressure Resistance Welding*

PVD - *Physical Vapour Deposition*

PWR - *Pressurized Water Reactor*

RERTR - *Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*

RIA - *Reactivity Initiated Accident*

RP - *Rampa de Potência*

RT - *Room Temperature*

SBO - *Station Blackout*

SMR - *Small Modular Reactor*

SNAP - *Systems for Nuclear Auxiliary Power*

TIG - *Tungsten Inert Gas*

TRISO - *TRistructural ISOtropic*

TRL - *Technology Readiness Level*

TWGFPT - *Technical Working Group on Fuel Performance and Technology*

US - *United States*

UZr - *Liga metálica de Urânio e Zircônio*

VVER - *Vodo-Vodyanoi Energetichesky Reaktor*

LISTA DE SIMBOLOS

AlOOH - Boemita

AISI 304 - Aço inoxidável austenítico da série 300

AISI 347 - Aço inoxidável austenítico da série 300

AISI 348 - Aço inoxidável austenítico da série 300

Al₂O₃ - Óxido de alumínio

B_{avg} - Queima média do combustível

BeO - Óxido de berílio

CrN - Nitreto de cromo

Cr₂O₃ - Óxido de cromo

C_p(T) - Calor específico

E(T) - Módulo de elasticidade

FeCrAl - Liga de ferro formada de ferro, cromo e alumínio

Gd₂O₃ - Óxido de gadolínio

K - Kelvin, unidade de temperatura

K_{inf} - Fator de multiplicação infinito de nêutrons

SiC - Carbetto de Silício

SiO₂ - Óxido de Silício

TM - *Trademark*

TiAlN - Nitreto de Titânio e Alumina

TiN - Nitreto de Titânio

UC - Carbetto de urânio

UMo - Liga metálica de urânio e molibdênio

UN - Nitreto de Urânio

U₃Si₂ - Siliceto de urânio

UO₂ - Dióxido de Urânio

ZrO₂ - Óxido de zircônio

W - Watt

© - *Copyrighth* (direito autoral)

SUMÁRIO

	página
1. INTRODUÇÃO	24
1.1 Objetivo.....	30
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	32
2. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA E ABORDAGEM TRL (<i>Technology Readiness Level</i>)	34
2.1 - Nível de maturidade da tecnologia (<i>TRL - Technology Readiness Level</i>) no contexto dos combustíveis ATF (<i>Accident Tolerant Fuel</i>).....	34
2.2 - Combustíveis tolerantes a falha	40
2.3 – Opções de revestimento de combustíveis tolerantes a falha.....	43
2.3.1 – Revestimento baseado na liga de zircônio com camada protetiva.....	43
2.3.2 – Revestimento baseado na liga de ferro	55
2.3.3 – Revestimento baseado em material não metálico.....	62
2.4 – Opções de combustível para os combustíveis tolerantes a falha.....	69
2.4.1 – Combustível UO_2 aperfeiçoado	69
2.4.2 – Combustível de alta densidade.....	78
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	85
3. METODOLOGIA DE AVALIAÇÃO DO DESEMPENHO DE COMBUSTÍVEIS ATF.....	96
3.1 – Experimentos e casos selecionados para análise de desempenho dos combustíveis ATF.....	98
3.1.1 - Experimento PUZRY.....	100

3.1.2 – Experimento Teórico do INL (<i>Idaho National Laboratory</i>).....	104
3.2 – Avaliação do desempenho dos combustíveis ATF.....	106
3.2.1 – Modificações no programa TRANSURANUS para combustível ATF.....	107
3.2.2 – Simulações de desempenho dos combustíveis ATF.....	110
3.2.2.1 – Simulação e avaliação do experimento PUZRY	110
3.2.2.2– Simulação e avaliação do experimento teórico – <i>Benchmark</i> INL (Caso estacionário).....	120
3.3 – Avaliação neutrônica dos combustíveis ATF.....	128
3.3.1 – Método de Monte Carlo	129
3.3.2 – Reatividade dos combustíveis tolerantes a falha (ATF).....	132
3.3.2.1 – Avaliação e análise da reatividade no início de vida dos candidatos ao combustível ATF.....	132
3.3.2.2 – Avaliação e análise da reatividade com a queima dos combustíveis ATF.....	144
3.3.2.3 – Reatividade dos elementos de combustível com a queima.....	153
3.3.3 – Razão de moderação dos combustíveis tolerantes a falha (ATF).....	163
3.3.4 – Espectro de energia dos nêutrons dos combustíveis candidatos a ATF.....	172
3.3.5 – Razão de conversão dos combustíveis candidatos a ATF.....	180
3.3.6 – Coeficiente de reatividade do moderador dos combustíveis candidatos a ATF.....	187
3.3.7 – Avaliação neutrônica quanto a espessura do revestimento	195

3.3.7.1 – Influência da camada de cromo no revestimento de ZIRLO™.....	195
3.3.7.2 – Espessura do revestimento de FeCrAl.....	196
3.4 – Espessura do revestimento de FeCrAl e a integridade estrutural.....	202
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	206
4. CONCLUSÕES e TRABALHOS FUTUROS	211
4.1 - Trabalhos Futuros.....	213

1 INTRODUÇÃO

O combustível nuclear projetado e utilizado em reatores refrigerados a água leve (*LWR – Light Water Reactor*) é um sistema complexo constituído de diversos materiais selecionados para atuar de forma segura e confiável em condições de alta temperatura, pressão, radiação e submetidos às diversas condições operacionais do reator [1]. O combustível nuclear encontra-se em desenvolvimento contínuo nos últimos 50 anos devido demandas de desempenho e de segurança relacionadas com novos requisitos de licenciamento. No entanto, o projeto básico do sistema combustível constituído de tubos de revestimento à base da liga de zircônio e pastilhas de dióxido de urânio tem permanecido igual desde o início da década de 70. As principais mudanças estavam diretamente associadas à melhoria de desempenho (alta queima, extensão do ciclo) e confiabilidade (baixa taxa de falhas) em condições de operação.

As ocorrências dos acidentes nas usinas nucleares de *Three Mile Island* (EUA) [2] e Fukushima Daiichi (Japão) [3] evidenciaram as deficiências e as vulnerabilidades do sistema combustível com revestimentos à base da liga de zircônio, principalmente na condição de perda de refrigeração contínua do reator. Os acidentes da base de projeto (*DBA – Design Base Accident*) [4], de perda de refrigeração (*LOCA – Loss of Coolant Accident*), ou a excursão de reatividade e potência (*RIA – Reactivity Initiated Accident*), ou a perda total das fontes de energia elétrica (*SBO - Station Blackout*) [5, 6], são considerados os mais limitantes e desafiadores para a integridade do combustível nuclear. Do ponto de vista de projeto de reatores, estes acidentes são mitigados pela atuação do sistema de refrigeração de emergência (*ECCS - Emergency Core Cooling System*) [7], que assegura o resfriamento contínuo e adequado ou com a atuação de um grupo de geradores diesel, que fornece uma fonte de energia elétrica alternativa e redundante para garantir e preservar a condição de resfriamento do combustível e do núcleo do reator a longo prazo.

Nas condições extremas e improváveis denominadas de cenários além da base de projeto (*BDBA – Beyond Design Base Accident*) [4] ou acidentes severos,

conforme observado no acidente na central nuclear de Fukushima Daiichi (Japão, em março de 2011), os sistemas voltados para atuação em emergência estavam comprometidos e indisponíveis, assim o acidente evoluiu ocasionando o aumento descontrolado da temperatura do combustível com o comprometimento da integridade do mesmo e a subsequente fusão do combustível.

Nos combustíveis nucleares com o revestimento à base da liga de zircônio, quando submetidos às altas temperaturas devido à perda de resfriamento, como as encontradas em cenários de um acidente severo, os mecanismos de transferência e remoção de calor do combustível são degradados e favorecem o aumento da taxa de reação de oxidação no revestimento com o vapor de água (reação metal vapor/água) produzindo o gás hidrogênio, conforme reação exotérmica [8]:



A reação química exotérmica gera calor superior ao do decaimento radioativo do combustível nuclear, além de gerar uma quantidade de gás hidrogênio suficiente para atingir a concentração de inflamabilidade e ocasionar explosões de grandes proporções comprometendo a integridade estrutural da contenção nuclear. Por exemplo, aproximadamente 125 kg de zircônio metálico de um elemento de combustível de um reator típico PWR (*Pressurized Water Reactor*) produz aproximadamente 820 MJ de energia e 2700 mol de gás. Considerando que os reatores da linha PWR possuem aproximadamente de 20 a 40 toneladas da liga de zircônio no núcleo, dependendo do projeto, a quantidade de gás hidrogênio liberado poderá atingir até duas toneladas. O acidente nuclear de Fukushima Daiichi, por exemplo, gerou aproximadamente 890 kg, 460 kg e 810 kg de hidrogênio nas unidades 1, 2 e 3, respectivamente.

Após o acidente na central nuclear de Fukushima Daiichi, as principais atividades de pesquisa e desenvolvimento de combustíveis nucleares estão diretamente voltadas para a obtenção de combustíveis denominados de combustíveis tolerantes a falha. Estes novos combustíveis visam eliminar ou minimizar as vulnerabilidades existentes nos atuais combustíveis em uso nos reatores LWR.

Conceitualmente, o combustível nuclear tolerante a falha é definido como um combustível que apresenta um desempenho igual ou superior aos combustíveis LWR atuais para as condições de operação normal, em cenários de acidentes da base de projeto (*DBA – Design Base Accident*) e além da base de projeto (*BDBA – Beyond Design Base Accident*).

O combustível tolerante a falha deve atender a todos os atuais requisitos e critérios associados à segurança e ao licenciamento. Além disso, deve apresentar propriedades aperfeiçoadas ou superiores como: baixa ou reduzida taxa de reação química com vapor de água em altas temperaturas, baixa ou reduzida taxa de produção de hidrogênio decorrente da reação metal vapor, baixa ou reduzida taxa de corrosão em condição de operação e de altas temperaturas, propriedades materiais (térmica, mecânica, química) superiores às ligas de zircônio, maior retenção dos produtos de fissão na matriz do combustível incluindo-se os produtos de fissão gasosos (xenônio, kriptonio), baixa temperatura de operação, maior estabilidade e resistência aos choques térmicos, alta temperatura de fusão, maior resistência à fragilização associada à reação de hidretação, menor taxa de fluência térmica e sob radiação, melhores propriedades térmicas (condutividade, dilatação, capacidade térmica) e mecânicas (tenacidade, ductibilidade).

Além disso, deve apresentar alta compatibilidade termo-química e mecânica com os demais componentes do elemento de combustível (por exemplo: grades espaçadoras, bocais, luvas e tubos guias) e com as condições ambientais do refrigerante (alta pressão, temperatura, pH) do núcleo do reator [9].

O diagrama da Figura 1.1 ilustra esquematicamente as características e requisitos gerais desejados para os combustíveis tolerantes a falha.

As propriedades e os requisitos dos combustíveis tolerantes a falha devem além de preservar a integridade garantir um intervalo de tempo maior (*coping time*) para a condução e a execução de ações mitigadoras (Plano de Emergência) em um acidente severo.

Adicionalmente, os combustíveis tolerantes a falha podem contribuir na simplificação e na melhoria dos projetos e sistemas dedicados à mitigação do acidente severo do reator, por exemplo: o sistema de recombinadores

autocatalíticos de hidrogênio passivos, o sistema voltado para pré ou pós-inertização da contenção, os sistemas de ar condicionado e ventilação e os sistemas de tratamentos de rejeitos.

Figura 1.1 - Resumo das características e requisitos desejáveis para combustíveis tolerantes a falha.



Fonte: Autor da Tese.

O projeto dos combustíveis tolerantes a falha deve também considerar os aspectos econômicos e os impactos nos processos de fabricação existentes, assim como para o ciclo do combustível completo. Nos processos de fabricação, podem ser citados: homogeneização, prensagem, sinterização, tratamento

térmico, soldas, selagens, usinagem entre outros e, também, a infra-estrutura industrial existente com os diversos equipamentos de fabricação.

Do ciclo do combustível, incluem-se também os aspectos relacionados com o processo de transporte, armazenamento temporário nas piscinas de combustível irradiado, depósito intermediário e permanente dos combustíveis irradiados, reprocessamento e as respectivas licenças de operação.

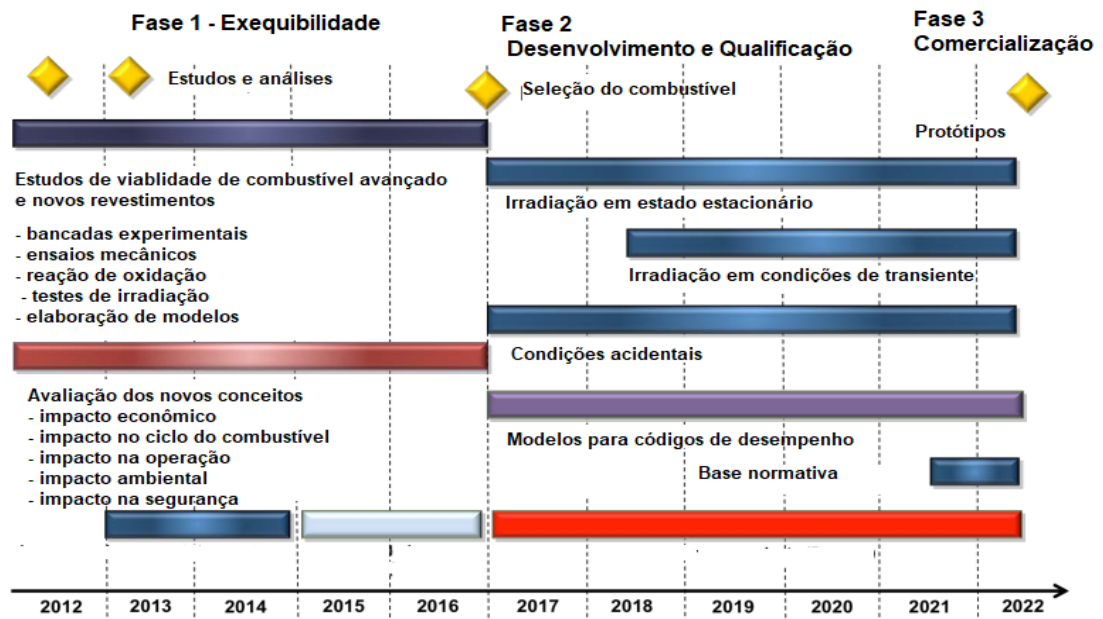
Neste contexto, o grande incentivo e a motivação ao desenvolvimento de combustíveis tolerantes a falha é promovido e patrocinado principalmente pelo DOE (Departamento de Energia Americano) [9], com forte apoio financeiro para os diversos projetos conduzidos por diversas instituições de pesquisas (laboratórios nacionais americanos como: INL (*Idaho National Laboratory*), ORNL (*Oak Ridge National Laboratory*), BNL (*Brookhaven National Laboratory*), PNNL (*Pacific Northwest National Laboratory*), LANL (*Los Alamos National Laboratory*) em parcerias com instituições privadas EPRI (*Electric Power Research Institute*), universidades americanas (MIT, Michigan, Florida, Illinois, Tennessee, Penn State etc) e, também, com participação compartilhada de recursos financeiros com os fabricantes de combustível nuclear (GE – *General Electric*, AREVA/FRAMATOME, WESTINGHOUSE) no âmbito dos Estados Unidos [10].

Posteriormente, por meio do OECD-NEA com a formação do grupo EGATFL (*Expert Group on Accident Tolerant Fuel for Light Water Reactor*) [11], outras instituições internacionais, laboratórios e fabricantes de combustível nuclear também colaboram com as atividades de pesquisa e desenvolvimento dos combustíveis tolerantes a falha.

Atualmente, diversos países como França, Japão, China, Alemanha, Suécia, Rússia, e Coreia do Sul em parceria com instituições (empresas, universidades, laboratórios) nacionais e internacionais conduzem diversas pesquisas no âmbito do desenvolvimento de combustíveis tolerantes a falha.

O planejamento estratégico elaborado pelo DOE consiste basicamente em três grandes fases distintas: verificação da exequibilidade, desenvolvimento e qualificação, e a última etapa envolvendo atividades voltadas para a comercialização, conforme a Figura 1.2.

Figura 1.2 - Planejamento estratégico e cronograma para a pesquisa e desenvolvimento de combustíveis tolerantes a falha patrocinado pelo DOE-EUA [12].



Fonte: Adaptado da referência [12].

Este planejamento e o cronograma são considerados muito ambiciosos (2012 a 2022), uma vez que, normalmente um programa de desenvolvimento de combustível pode demandar pelo menos 20 anos para obtenção de um combustível nuclear aprovado pelos órgãos licenciadores [13].

1.1 Objetivo

Os objetivos deste trabalho consistem na avaliação e na análise dos potenciais candidatos a combustíveis tolerantes a falha considerando os aspectos neutrônicos e de desempenho do combustível nas condições de operação e de acidentes.

Inicialmente, o levantamento bibliográfico do trabalho para os combustíveis tolerantes a falha a ser desenvolvido será baseado na abordagem da maturidade tecnológica, normalmente denominada de metodologia TRL (*Technology Readiness Level*) [14,15].

A metodologia TRL permite mapear, avaliar e verificar o nível de maturidade atual das diversas opções e tecnologias existentes no âmbito do desenvolvimento dos combustíveis tolerantes a falha. Por meio do desenvolvimento da TRL voltada para os combustíveis ATF (*Accident Tolerant Fuel*) podem ser identificados os diferentes graus de maturidade.

As avaliações e as análises neutrônicas consistirão na obtenção e comparação dos principais parâmetros relacionados com o projeto neutrônico de um núcleo de reator com diferentes combinações de revestimentos e combustíveis. Os parâmetros neutrônicos serão obtidos por meio de simulações utilizando o programa computacional de Monte Carlo SERPENT [16].

Os principais parâmetros neutrônicos a serem obtidos e avaliados para os diferentes combustíveis tolerantes a falha são: reatividade nuclear, teor de enriquecimento, grau de moderação, fator de conversão, coeficiente de reatividade do moderador e influência do espectro de nêutrons.

As avaliações de desempenho dos combustíveis tolerantes a falha serão efetuadas para uma das opções de revestimento diferente da liga de zircônio e, identificada como uma das mais maduras tecnologicamente pela metodologia TRL.

As análises de desempenho serão realizadas para as condições de operação estacionária, transiente e de acidente de perda de refrigerante do reator

(LOCA) por meio de simulações computacionais utilizando o programa TRANSURANUS [17] de desempenho do combustível.

Destacam-se como originalidade deste trabalho as avaliações e análises dos aspectos neutrônicos de um projeto de reator com a utilização de diferentes combinações de combustíveis e revestimentos tolerantes a falha, juntamente com a avaliação e análise do desempenho do combustível tolerante a acidente.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] OLANDER, D. R.; ***Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements***, Technical Information Center, Office of Public Affairs Energy Research and Development Administration, 1976, ISBN 0-87079-031-5 (v.1).
- [2] U. S. DEPARTMENT OF ENERGY OFFICE OF SCIENTIFIC AND TECHNICAL INFORMATION. ROGOVIN, M. e FRAMPTON, G. T. ***Three Mile Island; A Report to the Commissioners and to the Public***, 1980. (NUREG/CR-1250).
- [3] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. ***The Fukushima Daiichi Accident, Technical Volume 1/5 Description and Context of the Accident***, Disponível em: <<https://www-pub.iaea.org/books/iaeabooks/10962/the-fukushima-daiichi-accident>>, Acesso em: 05 dez. 2018.
- [4] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. ***Safety of Nuclear Power Plants: Design***, 2000, (Safety Standards Series No. NS-R-1).
- [5] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. ***Safety Aspects of Station Blackout at Nuclear Power Plants***, 1985, (IAEA-TECDOC-332).
- [6] UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION, ***10CFR50.63, Loss of all alternating current power***, Disponível em: <https://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/cfr/part050/part050-0063.html>, Acesso em: 05 dez. 2018.
- [7] UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION, ***10CFR50.46, Acceptance criteria for emergency core cooling systems for light-water nuclear power reactors***, Disponível em: < <https://www.nrc.gov/reading-rm/doc.../cfr.../part050-0046.html>>, Acesso em: 05 dez. 2018.
- [8] NATURAL RESOURCES DEFENSE COUNCIL. LEYSE, M. ***Preventing Hydrogen Explosions in Severe Nuclear Accidents: Unresolved Safety Issues Involving Hydrogen Generation and Mitigation***, 2014, (R:14-02-B).

[9] UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION. **Update on U.S. accident tolerant fuel program nuclear regulatory commission briefing.** Disponível em: <<https://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/commission/slides/2016/20160620/carmack-20160620.pdf>>, Acesso em 09 Nov. 2018.

[10] U.S. DEPARTMENT OF ENERGY OFFICE OF SCIENTIFIC AND TECHNICAL INFORMATION. GOLDNER, F. **Development strategy for advanced LWR fuels with enhanced accident tolerance, advanced fuels program (DOE),** Disponível em: <<https://www.energy.gov/.../061212%20Goldner%20-%20NEAC%20>>, Acesso em: 12 Nov. 2018.

[11] NUCLEAR ENERGY AGENCY - ORGANISATION FOR ECONOMIC CO-OPERATION AND DEVELOPMENT (OECD). **EGATFL: Expert group on accident-tolerant fuels for LWRs,** Disponível em: <<https://www.oecd-nea.org/science/egatfl/>>, Acesso em: 09 Nov. 2018.

[12] CARMACK, J.; GOLDNER, F. S.; BRAGG-SITTON, M. e SNEAD, L. L. Overview of the U.S. DOE Accident Tolerant Fuel Development Program, 2013, Charlotte, Estados Unidos, **Proceeding of Top Fuel 2013.**

[5] IDAHO NATIONAL ENGINEERING LABORATORY. KRISTINE B.; SHANNON B. S. e DANIEL G. **Advanced LWR Nuclear Fuel Cladding System Development Trade-off Study,** 2012, (INL/EXT-12-27090).

[14] NATIONAL AERONAUTICS AND SPACE ADMINISTRATION. MANKINS, J. **Technology Readiness Levels,** A White Paper, 1995.

[15] MANKINS, J. C. Technology readiness assessments: A retrospective, **Acta Astronautica,** 65, p. 1216–1223, 2009.

[16] LEPPÄNEN, J. et al. The Serpent Monte Carlo code: Status, development and applications in 2013, **Annals of Nuclear Energy,** 82, p. 142-150, 2015.

[17] Lassmann, K. TRANSURANUS: a fuel rod analysis code ready for use, **Journal of Nuclear Materials,** 188, p. 295, 1992.

2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA E ABORDAGEM TRL (*Technology Readiness Level*)

Apresenta-se neste Capítulo, uma revisão bibliográfica dos combustíveis tolerantes a falha (*ATF – Accident Tolerant Fuel*) com uma abordagem TRL (*Technology Readiness Level*) [1] para apresentar o atual estado das pesquisas e do desenvolvimento de cada um deles.

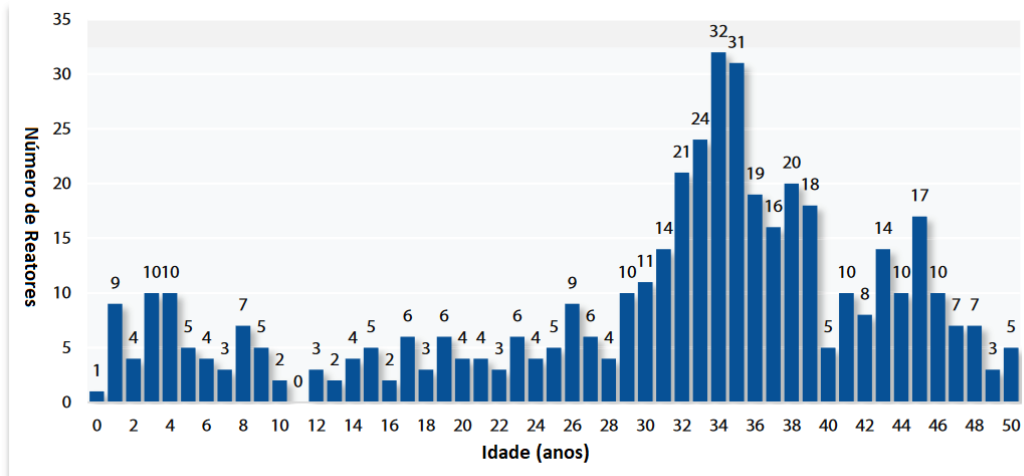
2.1 Nível de maturidade da tecnologia (*TRL - Technology Readiness Level*) no contexto dos combustíveis ATF (*Accident Tolerant Fuel*)

No cenário atual da geração nucleoeletrica aproximadamente 50% dos reatores encontram-se na faixa de 30 a 40 anos de operação, conforme a Figura 2.1.

A grande maioria destes reatores obtiveram licenças de operação para períodos de 30 a 40 anos e muitos destes ainda pretendem obter extensão da licença de operação para mais 20 anos. Nesse contexto, o desenvolvimento de um novo combustível deve ser executado no prazo inferior a 10 anos. Portanto esta é uma das condições de contorno relevante no programa de desenvolvimento de combustíveis ATF.

É importante destacar que as últimas gerações de combustível (revestimento e/ou pastilha de urânio) para reatores de potência representam apenas um aperfeiçoamento da tecnologia já existente e desenvolvida nas décadas de 1960 e 1970 e até a presente data não houve desenvolvimento disruptivo da tecnologia dos combustíveis nucleares.

Figura 2.1 - Distribuição da idade dos reatores em operação (total de 443 reatores) baseado no banco de dados PRIS (*Power Reactor Information System*) da AIEA .



Fonte : Banco de dados da AIEA (Agência Internacional de Energia Atômica) acessado em 2020

Fonte: Adaptado da referência [2].

Neste cenário, a utilização da abordagem TRL pode auxiliar o desenvolvimento de combustíveis tolerantes a falha em: melhor gerenciamento de projeto, identificar os elementos críticos e os riscos potenciais, estabelecer uma uniformidade de critério e métrica para avaliação, auxiliar na tomada de decisão quanto à priorização na alocação de recursos, entre outros.

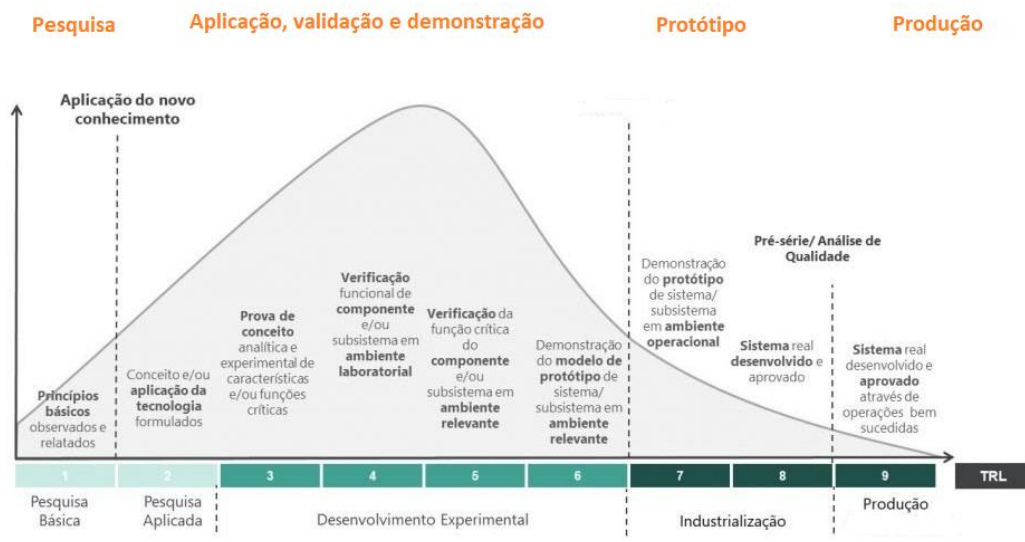
A abordagem TRL utiliza o conceito de níveis de maturidade da tecnologia (*Technology Readiness Level – TRL*) [1,3], que consiste em uma métrica para avaliar o nível de desenvolvimento de uma tecnologia. Existem basicamente nove níveis na escala de preparação e prontificação de uma tecnologia.

De forma mais geral e simplificada, pode-se agregar os níveis de TRL 1 a TRL 3 quando relacionados à pesquisa básica e aplicada voltada para a prova de conceito (***proof of concept***), os níveis de TRL 4 a TRL 6 para a fase de prova de princípio (***proof of principle***) por meio do desenvolvimento experimental de protótipo, e para os últimos níveis de TRL 7 a TRL 9, a etapa de prova de

desempenho (***proof of performance***) visando à industrialização e comercialização.

A Figura 2.2 ilustra as principais fases de desenvolvimento de projeto com os respectivos níveis de TRL.

Figura 2.2 – As fases e os respectivos níveis de maturidade (TRL).



Fonte: Adaptado da referência [4].

A abordagem TRL no desenvolvimento dos combustíveis tolerantes a falha (ATF) pode ser destacada no programa AFC (*Advanced Fuel Campaign*) do DOE-US [5,6], onde o planejamento e cronograma macro foram divididos em três fases com duração total de 10 anos para obtenção de combustíveis ATF. A primeira fase é denominada de análise de exequibilidade e priorização, a segunda fase de desenvolvimento e qualificação, e a fase final de comercialização.

A fase inicial é voltada para as atividades de: definição de critérios para seleção de materiais, levantamento de dados baseado em revisão de literatura e experiência prévia acumulada na área de materiais, prospecção de dados confiáveis e relevantes existentes nas diversas disciplinas e aplicações.

Os principais critérios de seleção podem ser baseados nas experiências prévias existentes dos atuais combustíveis em uso. Nesta fase, são definidos e executados: os testes laboratoriais em escala reduzida, desenvolvimento de dispositivos e bancadas de testes, execução dos testes experimentais, desenvolvimentos associados aos processos de fabricação de amostras experimentais, fabricação de amostras de materiais em escala reduzida, ensaios laboratoriais de caracterização voltados para a obtenção das propriedades fundamentais (mecânicas e térmicas) em condições operação normal e de acidentes, avaliação do potencial de aproveitamento dos atuais programas computacionais de desempenho de combustível, identificação das propriedades e correlações necessárias para a simulação de novos combustíveis, avaliação preliminar dos impactos na cadeia de produção do combustível incluindo análise econômica, avaliação e definição dos critérios de desempenho e de segurança, avaliação preliminar de desempenho em condições anormais e acidentais, e a análise de possíveis impactos ambientais. Ainda nesta fase executam-se ensaios de irradiação de pequenas amostras em condições mais limitadas para avaliar e verificar o comportamento sob irradiação.

A segunda fase consiste em ações voltadas para o desenvolvimento e qualificação dos potenciais candidatos a combustíveis ATF identificados na fase anterior. Nesta fase compreendem as atividades de avaliação e validação dos dados obtidos, elaboração de modelos e correlações a partir dos dados validados. As análises e estudos já realizados na fase inicial serão detalhados e mais específicos para os candidatos pré-selecionados com estudos e avaliações comparativas de desempenho e de segurança, incluindo a validação dos programas computacionais de desempenho e a avaliação econômica.

Além disso, análises mais detalhadas do ciclo do combustível envolvendo o desenvolvimento e a validação dos processos de fabricação, avaliação dos processos em escala industrial, estudos e análises neutrônicas para definição do

teor de enriquecimento do combustível e a duração do ciclo de operação, as restrições e limitações relacionados com o transporte, o armazenamento e a deposição dos combustíveis irradiados.

Na parte experimental, os experimentos de irradiação já executadas na primeira fase devem orientar a escolha e a definição de outras condições de irradiações das amostras, incluindo as condições de acidentes de LOCA (*Loss of Coolant Accident*) e de RIA (*Reactivity Initiated Accident*). Complementa-se as análises com os ensaios de pós-irradiados (PIE – *Post Irradiation Examination*).

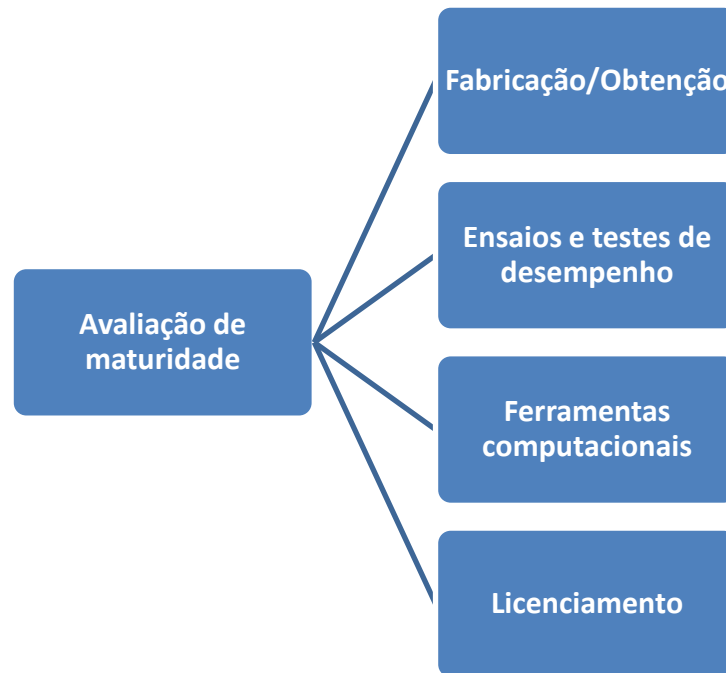
As irradiações e análises subsidiam o processo de licenciamento e são estabelecidos os limites operacionais esperados durante a condição de operação normal. Os programas de irradiação podem contemplar a irradiação de um elemento de combustível protótipo completo com um ou mais ciclos de operação dependendo da disponibilidade de um reator de potência comercial e a licença para execução da campanha de irradiação.

Quanto aos aspectos de fabricação, nesta fase são desenvolvidos e validados os diversos parâmetros dos processos de produção em escala piloto, assim como os equipamentos e ferramentas voltadas para a fabricação de um protótipo e a demonstração da eficiência da fabricação e possibilidades quanto as otimizações dos parâmetros de fabricação.

A fase final envolve ações e estratégias voltadas para o licenciamento, fabricação em escala comercial e a posterior utilização em reatores comerciais. Nesta fase, realiza-se a transferência dos desenvolvimentos executados em laboratórios de pesquisa e/ou universidades para as empresas comerciais de fabricação de combustíveis.

A Figura 2.3 apresenta de forma resumida e simplificada as etapas e ações que normalmente são realizadas nos processos voltados para o desenvolvimento de combustíveis tolerantes a falha.

Figura 2.3 - Avaliação de maturidade para os combustíveis tolerantes a falha.



Fonte: Autor da Tese.

2.2 Combustíveis Tolerantes a Falha

A partir dos conhecimentos básicos existentes dos diversos combustíveis já desenvolvidos e em utilização, os principais fabricantes de combustíveis adotaram uma classificação geral para os combustíveis tolerantes a falha baseado no tempo necessário para desenvolvimento, obtenção, licenciamento e utilização em: conceito evolucionário, voltado à aplicação em um curto ou médio prazo, e o conceito revolucionário, voltado para um prazo mais longo.

Neste trabalho será adotada as seguintes definições:

- a) **Evolucionário:** qualquer solução tecnológica voltada para melhorar ou substituir o revestimento e/ou combustível, que conjuntamente ou isoladamente atenda aos critérios e requisitos de um combustível tolerante a falha que possa ser fabricado sem grandes modificações na atual infraestrutura fabril existente, introduz pouco impacto nos atuais projetos de núcleos de reatores, poucas mudanças nas ferramentas computacionais de desempenho do combustível, e conseqüentemente um processo de licenciamento mais ágil.

- b) **Revolucionário:** qualquer solução tecnológica voltada para melhorar ou substituir o revestimento e/ou combustível, que conjuntamente ou isoladamente atenda aos critérios e requisitos de um combustível tolerante a falha que ainda demande mais pesquisas básicas, desenvolvimento dos processos de fabricação, ensaios e testes de verificação e validação mais extensos e completos, introduz razoável impacto na atual infraestrutura de fabricação, necessita de desenvolvimento de novas ferramentas computacionais ou requer modificações significativas nas ferramentas computacionais já existentes, e requer desenvolvimento de novas metodologias, novos limites operacionais e critérios para o licenciamento.

A partir destas definições de abordagem de desenvolvimento, atualmente a maioria dos desenvolvedores e fabricantes tem direcionado as pesquisas dividindo o sistema combustível em duas partes: o revestimento e o combustível, conforme a Tabela 2.1 e a sub-divisão do combustível apresentado na Tabela 2.2.

Tabela 2.1 - Divisão do sistema combustível para os principais combustíveis tolerantes a falha.

Revestimento			Combustível	
SiC	Liga à base de zircônio com	Ligas à base de Ferro	UO ₂ aperfeiçoado	Alta densidade

Fonte: Autor da Tese.

Tabela 2.2 - Sub-divisão do combustível para os principais combustíveis tolerantes a falha.

Combustível						
UO ₂ aperfeiçoado			Alta densidade			
Dopado	Alta condutividade térmica		Siliceto	Nitreto	Carbeto	Metálico
	Aditivo cerâmico	Aditivo metálico				

Fonte: Autor da Tese.

As Tabelas 2.3 e 2.4 apresentam uma compilação das propriedades e atributos desejáveis dos revestimentos e dos combustíveis tolerantes a falha para condições operacionais e acidentais, respectivamente.

Tabela 2.3 - Propriedades e atributos desejáveis para o revestimento de reatores tipo LWR nas condições de Operação Normal (ON), Rampa de Potência (RP), Acidente de Perda de Refrigerante (LOCA), Acidente de Inserção de Reatividade (RIA) e Perda de Energia Externa (*Station Blackout* – SOB).

Propriedades	Revestimento				
	ON	RP	LOCA	RIA	SOB
Condutividade térmica	alto	alto	alto	alto	alto
Capacidade térmica	-----	----	alto	----	alto
Coefficiente de expansão térmica	-----	----	---	---	---
Taxa de fluência	alto	alto	baixo	----	baixo
Taxa de oxidação	baixo	baixo	baixo	baixo	baixo
Resistência mecânica	alta	alta	alta	alta	alta
Resistência a radiação	alta	alta	alta	alta	alta
Fluxo de calor crítico	alto	alto	----	alto	-----
Absorção de nêutrons	baixo	baixo	baixo	baixo	baixo

Fonte: Autor da Tese.

Tabela 2.4 - Propriedades e atributos desejáveis para o combustível de reatores tipo LWR nas condições de Operação Normal (ON), Rampa de Potência (RP), Acidente de Perda de Refrigerante (LOCA), Acidente de Inserção de Reatividade (RIA) e Perda de Energia Externa (*Station Blackout* – SOB).

Propriedades	Combustível				
	ON	RP	LOCA	RIA	SOB
Condutividade térmica	alto	alto	alto	alto	alto
Capacidade térmica	-----	----	alto	baixo	alto
Coefficiente de expansão térmica	baixo	baixo	baixo	baixo	baixo
Taxa de fluência	alto	alto	----	----	----
Taxa de oxidação	-----	-----	baixo		baixo
Resistência mecânica	alta	alta	alta	alta	alta
Resistência à radiação	alta	alta	alta	alta	alta
Fluxo de calor crítico	-----	----	----	----	-----
Absorção de nêutrons	baixo	baixo	baixo	baixo	baixo

Fonte: Autor da Tese.

As informações quanto às principais propriedades e os respectivos atributos desejáveis listados nas Tabelas 2.3 e 2.4 são baseadas no conhecimento e informações já existentes e acumuladas dos combustíveis em utilização. As propriedades desejáveis do revestimento e do combustível auxiliam a escolha inicial dos potenciais materiais para o desenvolvimento de combustíveis tolerantes a falha.

2.3 Opções de Revestimento de Combustíveis Tolerantes a Falha

Nesta subseção são apresentadas e abordadas as principais opções tecnológicas considerando as abordagens evolucionárias e revolucionárias dos revestimentos de combustíveis tolerantes a falha.

Atualmente, o revestimento à base de liga de zircônio com a incorporação de camada protetiva ou a substituição por outra liga metálica apresenta-se entre as opções mais promissoras na abordagem evolucionária, enquanto para uma abordagem revolucionária existem opções de novos revestimentos com materiais compósitos baseados em materiais cerâmicos.

2.3.1 Revestimento baseado na liga de zircônio com camada protetiva

A utilização de uma camada protetiva no atual revestimento constitui-se a opção natural na transição entre o atual combustível com o revestimento à base da liga de zircônio e o novo combustível tolerante a falha [7]. A camada protetiva sobre a superfície do metal base (revestimento à base da liga de zircônio) proporciona uma prevenção maior no processo de oxidação com a formação de óxidos na camada protetiva durante a reação com o vapor e uma taxa menor de corrosão protegendo o metal base. Dentre as diversas vantagens na adoção da camada protetiva observadas pelos principais fabricantes de combustível [8, 9,

10] destacam-se: poucas modificações na atual tecnologia de fabricação, pouco impacto no desempenho do ciclo, desempenho similar em relação aos combustíveis atuais, impacto reduzido no processo de licenciamento e custo relativamente baixo.

A camada protetiva deve apresentar propriedades como: capacidade de adesão, resistência mecânica (fricção), ductibilidade compatível, resistência e estabilidade sob irradiação, estabilidade térmica, boa resistência às condições termo-hidráulicas, compatibilidade com a química da água do circuito primário, estabilidade ou pouca influência na formação do *CRUD*, boa condutividade térmica, baixa seção de choque de absorção de nêutrons, resistência a corrosão em condição de operação, resistência mecânica e química ao ambiente de vapor, favorecer a formação de óxido, baixa taxa de corrosão em condição de acidente na presença de vapor. Além disso, não deve apresentar reações adversas ou mudanças das propriedades do revestimento durante a deposição da camada protetiva na fase de fabricação.

Os potenciais candidatos para a camada protetiva são os materiais metálicos ou cerâmicos [11,12], que apresentam a presença de elementos como: cromo, alumínio ou silício, uma vez que, notadamente estes elementos favorecem a formação de camadas de óxidos como Cr_2O_3 , SiO_2 e Al_2O_3 , atuantes como camada protetiva durante o processo de oxidação e corrosão.

Além destes elementos, foram identificados diversos outros materiais, incluindo: CrAl , AlTiCr , FeCrAl , AISI-310; os Carbetos: Cr_2AlC , Zr_2AlC , Ti_2AlC e Ti_3SiC_2 denominados de *Max-Phase*; os materiais cerâmicos com a presença de nitrogênio (Nitretos): CrN , AlCrN , TiAlN , TiAlCrN e TiAlSiN e os materiais denominados de multi-camadas (*multilayer*) : Cr-Zr/Cr/CrN , CrN/Cr , Cr/CrAl , Cr/FeCrAl , Mo/FeCrAl e TiN/TiAlN .

As Tabelas 2.5 e 2.6 ilustram algumas propriedades dos principais elementos e os óxidos que podem compor a camada protetiva.

Tabela 2.5 - Principais propriedades dos elementos que podem ser utilizados como camada protetiva.

Elemento	σ_a (barns)	Densidade (g/cm ³)	Temperatura de fusão (°C)	Expansão térmica (x10 ⁻⁶ K ⁻¹)	Condutividade térmica (W/mK)
C	0,003	2,26	3650	0,6-4.3	129
N	1,88	---	---	--	--
O	0,0001	---	---	--	--
Al	0,22	2,7	660	23,2	237
Si	0,13	2,33	1410	2,6	148
Ti	5,6	4,51	1670	7,1	22
Fe	2,4	7,87	1539	11,5	80
Cr	2,9	7,14	1850	6,7	94
Zr	0,18	6,51	1845	5,8	23
Mo	2,48	10,28	2617	6,0	138

*Seção de choque de absorção térmica (E < 0,625 eV)

Fonte: Baseado na referência [7]

Tabela 2.6 - Principais propriedades dos óxidos formados pelos diferentes elementos que podem ser utilizados como camada protetiva.

Óxido	Densidade (g/cm ³)	Ponto de fusão (°C)	Expansão Térmica (x10 ⁻⁶ K ⁻¹ , RT)	Condutividade Térmica W/(m K), RT
ZrO ₂	5,68	2715	12,0	1,67
SiO ₂	2,20	1715	0,54	1,46
Al ₂ O ₃	3,96	2044	8,11	8,0 – 30,0
TiO ₂	4,23	1855	7,4	7,40
Cr ₂ O ₃	5,22	2435	7,1	0,0 – 32,9
Fe ₂ O ₃	5,24	1565	~9,2	~ 15,0
NiO	6,67	1955	8,57	~ 20,2
Nb ₂ O ₅	4,60	1512	~5,9	–
Y ₂ O ₃	5,01	2425	~8,1	8–12

Fonte: Baseado na referência [7]

As técnicas de deposição da camada protetiva envolvem processos físicos ou químicos. Dentre os processos físicos, deposição a vapor conhecida como PVD (*Physical Vapour Deposition*) é mais utilizada atualmente. Trata-se de deposição de átomos envolvendo processos puramente físicos tais como vaporização de um elemento da sua forma sólida ou líquida em altas temperaturas e transporte na forma de vapor no vácuo para o substrato, condensando na superfície. Dentre as técnicas de PVD destacam-se a evaporação a vácuo, ablação ou vaporização com laser e a pulverização (*sputtering*) [13].

A evaporação a vácuo consiste no aquecimento do material a ser depositado acima do ponto de ebulição a baixa pressão ($< 10^{-3}$ Pa) e os átomos são transportados para o material do substrato, onde condensa em forma de filme fino. Esta técnica pode produzir uma deposição com espessura irregular. Além disso, apresenta dificuldades com geometrias mais complexas, porém produz alta taxa de deposição com boa adesão no substrato. Existem variedades diferentes de técnicas de evaporação como: evaporação reativa, evaporação assistida por plasma e evaporação reativa ativada.

Dentre os processos químicos de deposição, destaca-se a técnica denominada CVD (*Chemical Vapour Deposition*) [14,15], que consiste na formação de um filme fino sólido pela deposição atômica ou molecular, em uma superfície aquecida. O sólido em questão é oriundo de uma reação química onde os precursores estão na fase de vapor. Este processo permite fazer deposição de metais, elementos não metálicos, materiais compostos como carbonetos, nitretos, óxidos e compostos intermetálicos.

No processo CVD, as espécies a serem depositados são átomos ou moléculas ou a combinação destes. Neste processo, ocorre uma reação química durante a deposição, enquanto no processo de PVD ocorre a adsorção dos átomos e moléculas na superfície. As duas técnicas são amplamente conhecidas e utilizadas principalmente na indústria de semicondutores.

A técnica PVD apresenta as seguintes vantagens: baixa temperatura na deposição, maior flexibilidade e controle dos parâmetros de processo garantindo

melhor qualidade da camada, possibilidade de obter camadas mais densas, superfícies mais finas, melhor qualidade mecânica e boa adesão no substrato.

Similarmente, a técnica CVD também apresenta suas vantagens como: menor custo em relação ao PVD, alta taxa de deposição, deposição com camada mais espessa e flexibilidade permitindo diferentes composições.

As desvantagens do método PVD residem na baixa taxa de deposição, requer baixas pressões, alto custo comparado ao CVD, enquanto as desvantagens do método CVD são as altas temperaturas envolvidas nas quais muitos substratos são instáveis para estas temperaturas e alta pressão de vapor envolvendo maiores riscos ao processo.

Dentre alguns elementos em fase de testes e avaliações preliminares encontram-se a deposição de CrN como camada protetiva para liga do revestimento (Zr-1%Nb) típico de reatores russos da linha VVER utilizando o método PVC. Um conjunto de ensaios já foi realizado, destacando-se: ensaios de corrosão em autoclave para as condições operacionais, ensaios de oxidação para altas temperaturas (aproximadamente 1200°C). Após os testes, foram realizadas caracterizações das amostras (metalografia, concentração de oxigênio e hidrogênio). Adicionalmente, foram realizados ensaios mecânicos (micro-dureza e teste de compressão circular – *ring compression test*).

Os ensaios demonstraram a formação de rachaduras e trincas na camada protetiva mesmo em condições de temperaturas não muito elevadas (~ 600 °C) devido a baixa ductibilidade da camada protetiva de CrN. Portanto, o CrN até o presente momento não se apresentou como uma opção promissora e viável para o uso como camada protetiva [12].

Outros materiais como o TiAlN (Nitreto de Titânio e Alumina) e TiN (Nitreto de Titânio) foram avaliados como potenciais candidatos a camada protetiva, pois, estes materiais eram utilizados na indústria convencional para processos de alta temperatura e com excelentes características tribológicas para uso em ferramentas de corte e usinagem [16-19]. Além disso, quando o TiAlN é submetido a altas temperaturas, o alumínio difunde para a superfície favorecendo a reação com o oxigênio e formando uma fina camada de Al₂O₃ como proteção.

Deposições em forma de multicamadas de TiAlN e TiN pelo método PVD em amostras do revestimento de ZIRLO™ foram submetidas aos ensaios de corrosão em autoclave para condições operacionais (temperaturas da ordem de 360 °C). Os trabalhos anteriores [12] demonstraram que a camada de TiAlN favorecia a formação da boemita (AlOOH), que resultava no consumo do alumínio, baixa adesão e baixo desempenho na corrosão. Dessa forma, foi explorada também a utilização da camada externa ou conceito de multi-camadas com o TiN, evitando-se a formação da boemita [12].

Os ensaios demonstraram que a camada de TiN evita a formação da boemita. No entanto, estudos ainda encontram-se em andamento para verificação do desempenho quanto a oxidação, uma vez que os testes de autoclave limitaram-se somente a temperaturas relativamente baixas (aproximadamente 360 °C) e tempos curtos (aproximadamente horas).

Portanto, ainda devem ser investigados os testes de corrosão em altas temperaturas similares ao cenário de acidente. Dentre os diferentes materiais avaliados para a camada protetiva como os cerâmicos, nitretos, carbonetos e os mistos denominados *Max-phase*, destaca-se que a maioria destes não apresentou resultados promissores até o presente momento, seja na condição de testes laboratoriais denominados de *out of pile* ou mesmo sob condição de irradiação (*in-pile*) como os experimentos realizados (IFA-774) no reator de **HALDEN** da Noruega [20] para amostras do revestimento de zircaloy com camada protetiva de TiAlN e CrN.

Conforme já observado, o revestimento de zircaloy com camada de CrN mostrou melhor resultado em condições operacionais. No entanto, em condições de aquecimento e resfriamento as amostras sofreram dilatações e deformações que ocasionaram delaminações e o aparecimento de trincas na camada protetiva [12, 20].

Muitas destas opções de camada protetiva não deverão ter continuidade nos testes de irradiação em reatores de teste de materiais, principalmente no reator de **HALDEN** (Noruega) que foi recentemente desligado para descomissionamento e, também na série de programa de irradiações conduzidos

no reator **ATR** de testes (**ATR** – *Advanced Test Reactor*) dos Estados Unidos pelo Departamento de Energia [21].

Sobre as técnicas de deposição, até a presente data, o método PVD mostrou-se o mais maduro industrialmente e o mais promissor para a deposição de camada protetiva, uma vez que a temperatura envolvida é menor que o método CVD. Além disso, pode-se obter uma camada fina, mais densa com baixa rugosidade, alta aderência e boa qualidade.

Considerando os resultados poucos promissores dos elementos cerâmicos e os mistos (*Max-Phase*), a melhor opção recaiu sobre os elementos metálicos como a mais viável e promissora. Neste sentido, desponta a utilização do cromo metálico como camada protetiva.

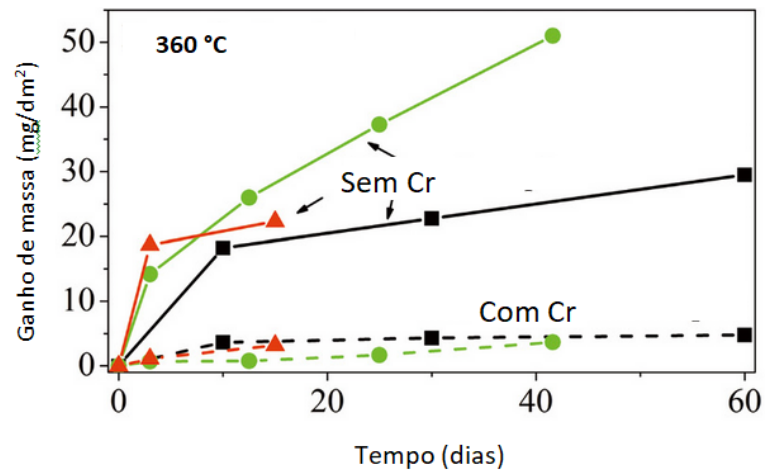
Atualmente, esta é a principal linha de pesquisa e desenvolvimento para o revestimento à base da liga de zircônio conduzida pelas principais instituições envolvidas no programa de desenvolvimento de combustíveis tolerantes a falha.

O cromo metálico com suas características como alto ponto de fusão, resistência a oxidação em altas temperaturas, coeficiente de expansão térmica similar ao zircônio, conforme apresentado nas Tabelas 2.5 e 2.6, é o mais promissor entre os metálicos, confirmando também com o bom desempenho nos testes laboratoriais e nas análises já realizadas [22-28].

Desta forma, apresenta-se atualmente como a camada protetiva com grande possibilidade de uso em menor tempo, quando comparada com os demais materiais até então sugeridos no início das pesquisas dos principais laboratórios.

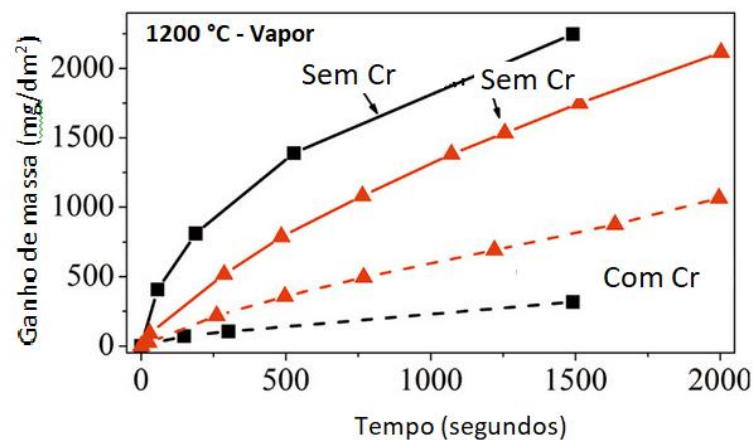
As Figuras 2.4. e 2.5 ilustram o comportamento do revestimento de zircaloy com e sem a camada de cromo obtidos por diferentes métodos de deposição e para condição de operação normal (temperatura de 360 °C) e cenário de acidente (temperatura de 1200 °C).

Figura 2.4 - Desempenho da amostra com o cromo como camada protetiva para condição normal de operação (temperatura: 360 °C). O símbolo triângulo representa o método de deposição CVD, o símbolo círculo representa o método de arco voltaico e o símbolo quadrado representa o método PVD.



Fonte: Adaptado da referência [7].

Figura 2.5 - Desempenho da amostra com o cromo como camada protetiva para condição de acidente (temperatura: 1200 °C). O símbolo triângulo representa o método de deposição CVD e o símbolo quadrado representa o método PVD.



Fonte: Adaptado da referência [7].

Do ponto de vista dos principais fabricantes de combustível, o cromo foi adotado inicialmente como camada protetiva pelas empresas AREVA/FRAMATOME na liga M5[®] [8], Westinghouse [9] na liga ZIRLO[™], enquanto a empresa GNF [28] utiliza o material proprietário denominado de ARMOR[®] (*Abrasion Resistant More Oxidation Resistant*) para o revestimento da liga Zircaloy-2, comumente utilizado para reatores da linha BWR (*Boling Water Reactor*).

A empresa Westinghouse já realizou diversos testes laboratoriais (sem irradiação) e verificou bom desempenho da camada protetiva quanto à deposição do *CRUD* e nos testes mecânicos em condições de operação e altas temperaturas.

Quanto à irradiação em reatores de teste de materiais, já foram executadas diversas irradiações nos reatores: **HALDEN**/Noruega, **MITR**/Universidade de Massachusetts (EUA) e **ATR**/INL (EUA). Neste último, as irradiações foram feitas nas fases denominadas de ATF-1 e ATF-2 do programa do DOE.

A fase denominada de ATF-1 compreende na irradiação denominada de *drop in* onde as amostras são inseridas em cápsulas hermeticamente seladas sem a presença da água em contato com a amostra, conforme a Figura 2.6 [29].

Figura 2.6 - Cápsulas contendo amostras utilizadas para a irradiação no reator ATR durante a fase ATF-1.



Fonte: Extraído da referência [29].

Recentemente, a Westinghouse recebeu a licença do órgão regulador americano (NRC – *Nuclear Regulatory Commission*) para o início da irradiação das varetas teste em setembro de 2019 no reator comercial de potência **Byron** unidade 2. Estas varetas utilizam o revestimento de ZIRLO™ com camada protetiva de cromo. A irradiação das varetas deverá estender até 2022.

A empresa FRAMATOME/AREVA desenvolveu o revestimento com a camada protetiva de cromo na liga de zircônio M5[®] [8] com uma espessura aproximada de 15 micrometros depositada pelo método PVD.

As amostras foram submetidas inicialmente aos testes laboratoriais de corrosão em altas temperaturas, resistência ao desgaste por fricção na condição de operação normal, inchamento (*ballooning*), ensaios mecânicos e corrosão na condição de operação (360 °C) em autoclaves de corrosão.

Quanto a irradiação das amostras, de forma similar a empresa Westinghouse, foram realizadas irradiações nos reatores de **HALDEN**/Noruega, **OSIRIS**/França, **ATR**/INL (EUA) e **Gosgen**/Suíça (projeto IMAGO – *Irradiation of Materials for Accident-tolerant fuels in the GOsgen reactor*). Recentemente, abril de 2019, foram inseridas no reator comercial de potência **Vogtle2** (localizado em Waynesboro, Estado da Geórgia, Estados Unidos da América), um conjunto de varetas testes.

A empresa GNF (*Global Nuclear Fuel*) também adotou o uso da camada protetiva proprietária denominada de ARMOR[®] [30] e, até a presente data não foram divulgadas informações acerca do método de deposição, a composição e a espessura da camada. De acordo com a referência [28] foram executados testes laboratoriais envolvendo a corrosão na condição de operação e de acidentes, resistência à fricção e ciclagem térmica.

No início de 2018, foram colocadas somente varetas com o material do revestimento no reator de potência americano **Edwin I. Hatch** (reator tipo BWR, localizado em Baxley, Estado da Geórgia). Posteriormente, em 2019, também foram inseridas varetas teste contendo o material combustível no reator comercial americano **Clinton** (reator tipo BWR, localizado na cidade de Clinton, Estado de Illinois).

Dentre os três principais fabricantes de combustíveis, somente a empresa GNF não apresentou os dados da camada protetiva utilizada.

Na grande maioria dos experimentos de oxidação em altas temperaturas, observou-se de forma inequívoca a formação da camada do óxido (Cr_2O_3) como uma barreira física que evita a corrosão acelerada. No entanto, observou-se a formação de inter-metalúico ZrCr_2 nas camadas inferiores. O intermetalúico é menos dúctil do que o Cr e Zr na sua forma separada.

A presença do intermetalúico, ZrCr_2 pode impactar na fase de remolhamento (*quenching*) após a atuação do sistema de refrigeração de emergência no acidente de perda de refrigerante (LOCA). O intermetalúico ZrCr_2 é formado pelo processo de difusão do átomo de zircônio (Zr) do revestimento e o cromo (Cr) da camada protetiva e, encontra-se presente nas três fases: alfa, beta e gama do zircônio. A espessura do intermetalúico poderá comprometer a integridade do revestimento devido à perda da ductibilidade. Dessa forma, deve-se evitar a formação do intermetalúico desde a deposição da camada evitando os processos que requerem altas temperaturas.

De acordo com as diversas informações disponíveis relacionadas com a pesquisa e o desenvolvimento realizados, conclui-se que o cromo efetivamente atua como barreira física protegendo o revestimento (liga de zircônio) da oxidação acelerada em condições de acidente.

Os diversos ensaios de irradiação encontram-se ainda em fase de execução, especialmente aqueles conduzidos em reatores comerciais e os resultados ainda não foram divulgados ou disponibilizados.

Quanto às propriedades físicas, os diversos testes realizados indicam que as propriedades como condutividade térmica, coeficiente de expansão térmica, emissividade são pouco afetadas em relação às propriedades do substrato (liga de zircônio) sem a presença da camada protetiva, uma vez que a espessura da camada protetiva deve ser bastante reduzida (aproximadamente dezenas de micrômetros).

No módulo de elasticidade e no limite da tensão de escoamento de acordo com trabalhos recentes [13, 23], não foram observadas alterações significativas

nestas propriedades entre o revestimento à base da liga de zircônio sem e com a camada protetiva de cromo.

As fluências térmica e sob irradiação também sofreram poucas alterações comparadas com o revestimento à base da liga zircônio sem a camada protetiva de cromo. No entanto, os dados são incompletos, principalmente a fluência sob irradiação, uma vez que, ainda muitas amostras encontram-se em irradiações nos reatores de teste de materiais e/ou reatores de potência comercial. Para o crescimento na direção axial por irradiação, ainda não existem dados suficientes para verificar a influência na camada protetiva.

Para a corrosão sob condição de operação e a hidretação, os experimentos também demonstraram a efetividade da camada protetiva. No entanto, ainda não existem dados e resultados conclusivos quanto ao desempenho sob irradiação.

Os fenômenos associados à condição de acidente de LOCA como o inchamento, a ruptura e a taxa de corrosão em ambiente de vapor apresentaram melhor desempenho para o revestimento com a camada protetiva, especialmente a proteção obtida em ambiente de vapor com altas temperaturas. Quanto ao inchamento (*ballooning*), a presença do cromo como camada protetiva foi benéfica na redução do tamanho do inchamento [8,30], fato que pode contribuir para a manutenção da condição de resfriamento do núcleo em condição de acidente de perda de refrigerante.

Nos experimentos de ruptura ou arrebentamento de tubos (*burst*), os resultados preliminares [31] ainda sem irradiação apresentaram tamanhos e aberturas das rupturas menores quando comparados com os tubos sem a camada protetiva. Para o acidente RIA (*Reactivity Initiated Accident*) da base de projeto, ainda não foram realizados ensaios, no entanto espera-se um desempenho melhor, uma vez que, o fator que contribui para a falha do revestimento é o grau de hidretação e a presença da camada protetiva reduz a hidretação. Conclui-se que atualmente a camada protetiva de cromo é a opção com maior grau de maturidade (TRL 7 a TRL 8) em relação a outros elementos.

2.3.2 Revestimento de liga à base de ferro

No início do desenvolvimento de reatores para geração de potência, nas décadas de 1950 e 1960, as primeiras gerações de reatores nucleares comerciais utilizavam combustíveis nucleares constituídos de varetas com revestimento de ligas de ferro, como por exemplo, os aços austeníticos da série 300: 304, 316, 347 e 348 [32], principalmente devido ao custo inferior quando comparado com a liga de zircônio.

As ligas à base de ferro, principalmente o aço austenítico, apresentam propriedades mecânicas e algumas térmicas superiores quando comparadas com a liga de zircônio, como: maior resistência à deformação ou falhas devido ao efeito PCMI (*Pellet Clad Mechanical Interaction*), menor fluência térmica reduzindo a possibilidade de fechamento do vazio entre a pastilha e o revestimento, ocasionando poucas restrições e melhor desempenho em regime de operação com seguimento de carga.

Além disso, em condições de acidente de perda de refrigerante, especificamente para a reação metal com vapor, a energia liberada da reação (aproximadamente 250 kcal/kg) no aço inoxidável é muito menor quando comparada à energia liberada (aproximadamente 1500 kcal/kg) para a mesma reação com a liga de zircônio [33].

O comportamento do revestimento nas diversas fases do acidente de perda de refrigerante apresentou vantagens quando comparado com aquele da liga de zircônio, nas fases desde inchamento, rompimento, oxidação, taxa de produção de hidrogênio, a resistência mecânica (ductibilidade) e após atuação do sistema de refrigeração de emergência durante a fase de remolhamento (*quenching*).

A presença de cromo na liga de aço inoxidável (aproximadamente 18% em peso) permite a formação da camada protetiva do óxido de cromo (Cr_2O_3), conforme já mencionado na opção do combustível tolerantes a falha com camada protetiva de cromo no revestimento de liga à base de zircônio.

Ao longo da operação dos reatores com os combustíveis de revestimento à base da liga de ferro (aço austenítico), foram observadas algumas falhas. No entanto, estas não foram atribuídas as deficiências do material.

Algumas falhas tiveram origem em uma combinação de fatores, incluindo-se a falta de qualidade e controle na fabricação do combustível quando comparada com os atuais processos de fabricação, possíveis violações das condições operacionais, falhas de projeto e outras que não foram devidamente investigadas para definir as causas.

O acidente nuclear de Fukushima evidenciou a necessidade de soluções e alternativas tecnológicas diferentes da utilizadas na liga à base de zircônio atual. Neste contexto, as ligas de ferro foram revisitadas como uma opção interessante [34] para a substituição.

Os trabalhos envolvendo a verificação da resistência a corrosão em altas temperaturas das ligas de ferro na área nuclear tiveram início na década de 60 pela empresa General Electric (GE) [35-37] com diversas pesquisas envolvendo a liga de Fe-Cr-Al-Y, nas quais verificou-se e comprovou-se melhor resistência a corrosão desta liga quando comparada com o aço austenítico. A liga ternária de FeCrAl com adição de molibdênio também já era conhecida e utilizada em muitas aplicações industriais fora da área nuclear, envolvendo ambiente de altas temperaturas (fornos e termopares) e comercialmente disponível como APMT/KHANTAL[®].

As ligas de FeCrAl com adição de outros elementos (*microalloys*) em concentrações menores, como ítrio (Y), molibdênio (Mo), titânio (Ti) apresentaram propriedades mecânicas superiores, maior resistência a corrosão, quando comparadas com a liga à base de zircônio.

A necessidade de substituição do material de revestimento (liga à base de zircônio) por outro material com melhor desempenho, especialmente para as condições de acidente, comprovada pelas pesquisas da GE (General Electric) juntamente com a facilidade de fabricação constituíram-se nos principais motivadores para pesquisa da liga de FeCrAl como revestimento de combustíveis tolerantes a falha.

A liga de FeCrAl é um aço ferrítico com estrutura cúbica de face centrada (BCC) sem mudança de fase. Foi desenvolvida na Suécia, comercializada no início da década de 1930 pelo Hans Von Hallstahammar, com o nome comercial de KHANTAL, sendo utilizada em elementos aquecedores de fornos e conversores catalíticos devido à resistência a altas temperaturas ($> 1000\text{ }^{\circ}\text{C}$) [38].

A composição básica da liga tem aproximadamente 10 a 30% em massa de cromo, entre 4,0% a 7,5% em massa de alumínio e o ferro como o balanço. A Tabela 2.7 apresenta algumas variações de composição das ligas de FeCrAl em estudos para utilização como revestimento de combustíveis tolerantes a falha. Alguns dos elementos como ítrio, cério, zircônio e manganês conferem resistência, estabilidade e melhores propriedades promovendo a adesão dos óxidos e melhor estabilidade micro-estrutural [39,40].

Tabela 2.7 - Composição percentual dos principais elementos constituintes da liga de FeCrAl, onde o ferro é o balanço [41, 42].

Nome da liga	Percentual em massa		
	Cromo	Alumínio	Outros elementos
Kanthal-APM ⁽¹⁾	22,0	5,80	-----
Kanthal-APMT ⁽²⁾	21,0	5,00	Mo (3%)
C26M	12,0	6,00	Mo(2%), Y(0,03%) e Si(0,2%)
C35M	13,0	5,00	Mo(2%), Y(0,05%) e Si(0,2%)
T35Y2(ORNL)	13,1	4,40	Y(0,1%)
T54Y2 (ORNL)	15,1	3,9	Y(0,1%)
FeCrAl (ODS)	12,0	6,00	Ti + Zr + Y ₃ O ₂ + Fe ₂ O ₃ (0,5%)
MA956 ⁽³⁾	21,5	5,75	Y (0,7%), Mn (0,3%), Ni (0,5%) e Ti (0,6%)
Aluchrom YHf	21,0	5,50	Y (0,05%), Si (0,3%) e Hf (0,03%)

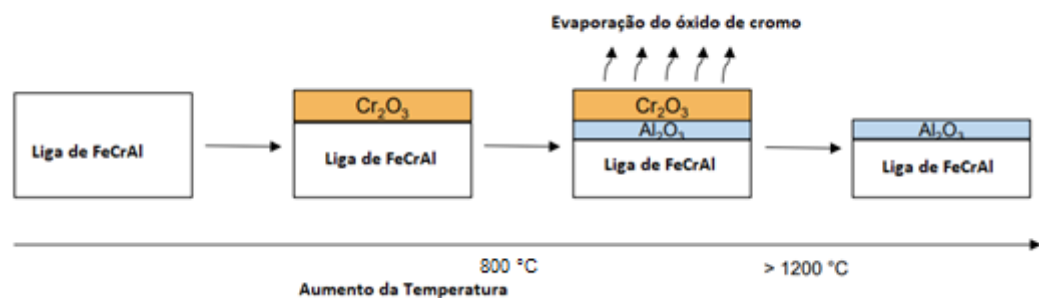
(1), (2) e (3) são ligas comercialmente disponíveis.

A busca da melhor composição dos elementos que satisfazem os diversos requisitos desejados para o revestimento de combustíveis tolerantes a falha ainda

encontra-se em fase de pesquisa e desenvolvimento. Baseado no conhecimento e na compreensão atual acerca das concentrações dos principais elementos, observou-se que a presença do cromo contribui para a resistência à corrosão devido a formação da camada de óxido de cromo em condição de operação normal ($T < 800^{\circ}\text{C}$). A presença do alumínio favorece a formação do óxido de alumina atuando como uma camada protetiva para as condições de acidente ($T > 800^{\circ}\text{C}$) envolvendo altas temperaturas, conforme a ilustração da Figura 2.7. Dessa forma, a presença dos elementos cromo e alumínio, a atuação sinérgica entre estes representa uma característica muito importante e vantajosa da liga FeCrAl como revestimento de combustíveis tolerantes a falha.

As quantidades de alumínio e cromo devem ser definidas não somente considerando a formação da camada protetiva de óxido, mas também as propriedades como ductibilidade, uma vez que, a presença excessiva do cromo torna a liga menos dúctil.

Figura 2.7 – Representação esquemática da formação das camadas de óxidos em função do aumento da temperatura para a liga de FeCrAl.



Fonte: Autor da Tese.

Além dos estudos voltados para busca da composição ótima dos elementos da liga, os ensaios de caracterização e desempenho encontram-se em fase de ensaios [41], incluindo a verificação da influência do tamanho de grãos e poros, e também a compatibilidade química [42] com outros componentes do elemento de combustível.

Os processos de fabricação e obtenção da liga FeCrAl encontram-se em estágio relativamente maduro, uma vez que já existem ligas de FeCrAl disponíveis comercialmente (KANTHAL fabricado pela empresa SANDVIK e MA956 fabricado pela empresa Special Metals) para aplicações industriais não nucleares.

No entanto, considerando especificamente a aplicação na indústria nuclear, atualmente encontram-se também em fase de pesquisas e análises a verificação da influência do processo fabril na resistência à corrosão, no processo de oxidação, mudanças nas propriedades mecânicas, principalmente os processos metalúrgicos, como: tratamentos térmicos e mecânicos (recozimento, forjamento, extrusão, mandrilagem, laminação, usinagem e outros processos de conformação e tratamento térmico), que podem modificar a estrutura e o tamanho dos grãos. Além disso, as verificações quanto à influência e o impacto das diferentes técnicas de soldagem (TIG, Laser, PRW – *Pressure Resistance Welding*) dos tampões no tubo [43].

Estas pesquisas podem produzir ligas de FeCrAl mais otimizadas e adequadas para a aplicação nuclear, normalmente denominadas de grau nuclear (*nuclear grade*).

A liga de FeCrAl apresenta algumas vantagens em relação à liga à base de zircônio identificadas até o presente momento [44], tais como:

- aumento da resistência à fricção [45];
- aumento das margens termo-hidráulicas;
- maior resistência aos danos de radiação;
- maior expansão térmica;
- menor taxa de fluência térmica e radiação;
- manutenção da geometria para auxiliar o resfriamento em caso de acidente severo;
- menor taxa de oxidação em condições de operação normal e de acidente devido à formação das camadas de óxido de cromo e alumina;

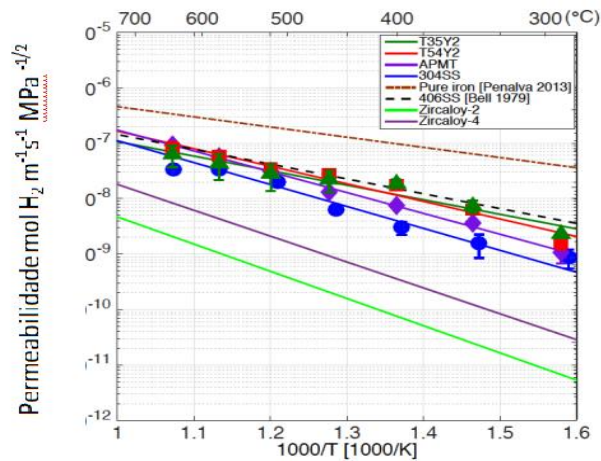
- menor taxa de geração de hidrogênio pela reação metal-água em condições de acidente;
- menor volume ou área superficial de inchamento (*ballooning*) do revestimento em condições de acidente [46]; e
- aumento do tempo para a mitigação do acidente (*coping time*).

Dentre as desvantagens [44] da liga de FeCrAl, destacam-se:

- a maior absorção de nêutrons devido à presença de elementos absorvedores de nêutrons (Fe e Cr);
- a permeabilidade do elemento trítio na forma de produto de fissão (aproximadamente 10 vezes maior quando comparado com a liga à base de zircônio) [47];
- ductibilidade dependente da concentração do cromo devido à precipitação na fase alfa; e
- menor temperatura de fusão (aproximadamente 1500 °C) comparada com a liga de zircônio (aproximadamente 1800 °C). No entanto esta diferença possui importância relativa, uma vez que a liga de zircônio antes de atingir a temperatura de fusão possui uma alta taxa de oxidação.

A permeabilidade do revestimento ao hidrogênio (trítio proveniente da fissão ternária) [48] nas ligas de FeCrAl é uma ordem de grandeza maior quando comparado com as ligas à base de zircônio, conforme a Figura 2.8. Essa condição pode ser minimizada com a introdução de uma cobertura fina de alumina na parte interna do revestimento. O aumento de inventário de trítio pode representar um aumento da taxa de dose operacional, principalmente para reatores tipo BWR.

Figura 2.8 – Permeabilidade do hidrogênio em função da temperatura para diversas ligas de revestimento, incluindo ligas de FeCrAl [49].



Fonte: Adaptado da referência [49].

Do ponto de vista de fabricantes de combustível, no programa do Departamento de Energia dos Estados Unidos somente a empresa GNF (Global Nuclear Fuel) juntamente com a empresa GE (General Electric) tem como estratégia de médio prazo a utilização de revestimento baseado na liga de FeCrAl denominado IronClad [28]. O desenvolvimento inicial contempla as ligas conhecidas como APMT-KHANTAL[®], MA956 e C26M, sendo as duas primeiras ligas disponíveis comercialmente e a última desenvolvida no Laboratório Nacional de Oak Ridge (ORNL).

Quanto ao desempenho da liga em condições de irradiação, até o presente momento, existem poucos dados disponíveis [50-52]. Alguns experimentos foram executados ou estão em fase de execução considerando apenas número limitado de amostras com intuito de gerar as informações básicas quanto ao comportamento sob irradiação. As irradiações foram ou estão em execução em reatores de teste de materiais (**HALDEN, ATR, HFIR, MITR**), reatores de potência (**Hatch e Clinton**) tipo BWR para avaliação inicial da influência dos elementos constituintes da liga na ductibilidade, danos de radiação em função da dose, inchamento, propriedades mecânicas e fluência.

Desta forma, do ponto de vista do grau de maturidade da liga de FeCrAl para aplicação nuclear (*nuclear grade*) considerando os aspectos de fabricação da liga, as principais atividades de caracterização, os testes e ensaios já realizados, os resultados obtidos pelos principais desenvolvedores nos diversos laboratórios quanto ao desempenho sob corrosão [38, 41, 44-45], propriedades mecânicas [41,44-48], propriedades térmicas [41, 45], o comportamento em condições de acidentes [44] e o desempenho preliminar em condição de irradiação [50-57], indicam o grau da maturidade entre o nível TRL 6 e TRL 7, isto é, entre uma escala de produção laboratorial e industrial.

2.3.3 Revestimento baseado em material não metálico

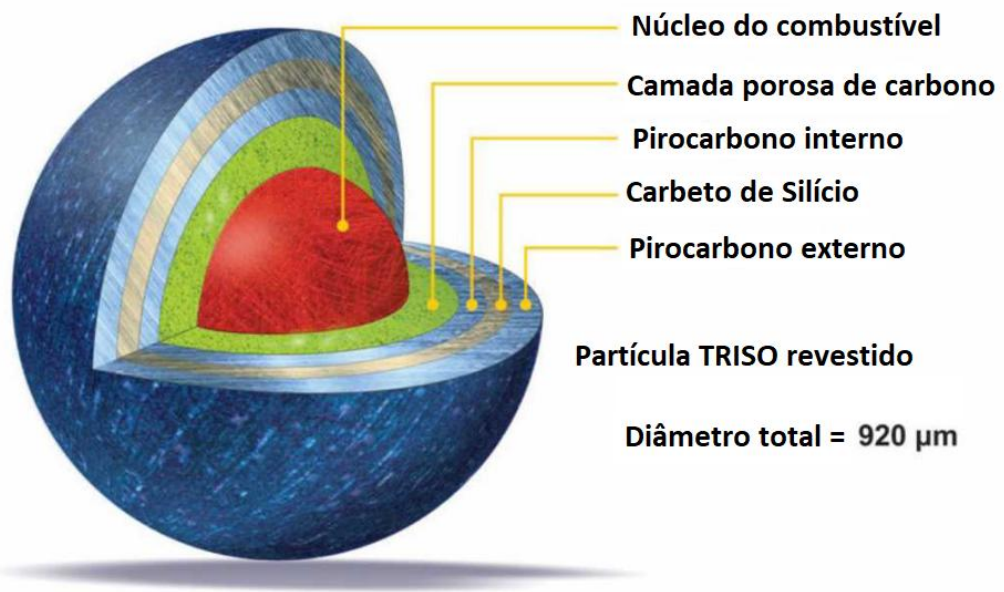
Dentre os materiais que receberam uma atenção especial para possível aplicação como revestimento para combustível ATF está a fibra cerâmica de Carbetto de Silício (SiC) reforçada na matriz de compósito. O material possui excelentes propriedades mecânicas e resistência para ambientes com altas temperaturas, oxidante, corrosivo, abrasivo, e relativamente baixa inércia química. O material é utilizado comercialmente em várias aplicações, como: aletas de turbina de jato, tubeira de foguete, nariz de míssil, elementos de aquecedores, componentes de queimadores de forno industrial, rolamentos, blindagem balística etc.

A aplicação na área nuclear tem origem como cobertura dos combustíveis TRISO (*TRISTRUCTURAL-ISOTROPIC*) desenvolvidos para os reatores HTGR. Estes são constituídos de micro esferas de UO_2 com diversas camadas de cobertura e dentre estas, uma camada de SiC [58,59]. O SiC foi escolhido devido as suas características de resistência a alta temperatura, baixa seção de choque de absorção de nêutrons térmicos (aproximadamente 0,087 barn) e a baixa permeabilidade dos produtos de fissão [60].

A utilização como cobertura de combustível nuclear TRISO e o conhecimento prévio sobre o seu desempenho tornou o SiC um candidato

bastante promissor para o revestimento de combustíveis ATF. A Figura 2.9 apresenta uma ilustração esquemática do combustível TRISO.

Figura 2.9 – Ilustração de um combustível de reator HTGCR constituído de uma micro-esfera denominada de TRISO [61].



Fonte: Adaptado da referência [61].

Atualmente, existem disponíveis métodos industriais de produção de fibra de carbeto de silício e a matriz de compósito com grau nuclear (*nuclear grade*). As fibras patenteadas são: NicalonTM, Hi-NicalonTM, Hi-NicalonTM tipo S da empresa Nippon Carbon Co. Ltda, Tyranno AS da empresa UBE Industries Ltda e Sylramic da empresa COI Ceramics.

A fabricação do revestimento de SiC na forma tubular consiste basicamente em trançar, tricotar e costurar as fibras de SiC para uma geometria tridimensional de um tubo (Figura 2.10), adicionar uma camada intermediária (*interphase*) de carbono pirolítico (PyC) pelo método de deposição química em fase de vapor (CVD – *Chemical Vapour Deposition*), posteriormente agregado a

uma matriz de compósito cerâmico de SiC utilizando a técnica de infiltração química em fase de vapor (*CVI- Chemical Vapour Infiltration*). Esta tecnologia atualmente é considerada uma das mais maduras para produzir uma matriz de SiC pura e perfeitamente cristalizada; ou alternativamente a sinterização sob pressão e alta temperatura denominada de NITE (*Nano-Infiltration Transient Eutectic Phase*) e, por fim, adição de camadas protetivas denominada de EBC (*Environmental Barrier Coating*) nas partes interna e externa para garantir a hermeticidade e evitar a corrosão acelerada do SiC no ambiente da água do circuito primário do reator em condições operacionais.

O fechamento dos tubos por meio dos tampões (*plugs*) nas extremidades para garantir a estanqueidade da vareta de combustível ainda é objeto de diversas pesquisas, uma vez que o tubo de SiC não pode ser soldado como os materiais metálicos. Dessa forma, ainda necessita-se de muita pesquisa e seleção de materiais mais aderentes ao SiC juntamente com o processo de adesão, como a difusão em estado sólido ou fusão de material cerâmico ou sinterização ou brasagem.

Figura 2.10 - Processo de fabricação de um tubo com fibras de SiC.



Fonte: Extraído da referência [62].

Do ponto de vista de fabricação em escala industrial ainda existem grandes desafios tecnológicos para a produção de um tubo longo com comprimento da ordem de 4 metros (comprimento típico de uma vareta de combustível) com requisitos de retinidade, homogeneidade e uniformidade na espessura, a

circunfericidade e controle dos parâmetros de processo como pressão e temperatura.

Até o presente momento, a empresa GE conseguiu fabricar um tubo de apenas um metro de comprimento com adequada retilinidade e uniformidade na espessura. Alternativamente, considera-se a junção de tubos com comprimentos menores para obter um tubo mais longo ou empilhamento de elementos de combustível mais curtos e espaçados até a altura desejada.

A selagem ou inclusão dos tampões de fechamento do tubo encontra-se também em fase preliminar de pesquisa e desenvolvimento. Até o presente momento não existe uma técnica mais promissora dentre as opções em desenvolvimento. A cobertura da camada protetiva externa e/ou interna encontra-se em fase de pesquisa para avaliação das diversas opções incluindo a viabilidade do conceito de um tubo híbrido com a parte interna cerâmica e com a cobertura de material metálico garantindo maior estanqueidade dos produtos de fissão, maior resistência à corrosão e estabilidade estrutural.

Diversas propriedades térmicas (calor específico, condutividade térmica, coeficiente de expansão térmica e fluência), mecânicas (tenacidade, dureza, razão de Poisson, módulo de Young, módulo de cisalhamento, características de tensão e deformação), comportamento sob irradiação (fluência, inchamento, crescimento e outros) e em atmosfera de corrosão e oxidação são conhecidas e disponíveis na literatura aberta [63-65] devido ao programa de desenvolvimento dos combustíveis tipo TRISO dos reatores HTGR [62].

A validade e a aplicabilidade destes dados não podem ser simplesmente replicadas para a aplicação atual, uma vez que as condições de operação do combustível tipo TRISO diferem significativamente dos atuais reatores tipo LWR, principalmente a temperatura.

Neste sentido, observou-se a degradação substancial do SiC por corrosão (*hydrothermal corrosion*) [66] com a formação do óxido de silício (Sílica - SiO₂) nas condições típicas (pH, concentração de oxigênio, temperatura) da água de resfriamento dos reatores LWR. O comportamento é ainda exacerbado no campo

intenso de radiação [67, 68], devido ao aparecimento do oxigênio livre proveniente da reação de radiólise da água.

O óxido de silício é bastante solúvel nas condições de pH e temperatura da química da água dos reatores LWR. Além disso, observou-se o inchamento [69, 70] devido à irradiação, induzindo degradação, e a baixa condutividade térmica, que por sua vez ocasionam gradientes de tensões de origem termo-mecânica entre a parte interna e externa. Estes contribuem para a formação de múltiplas micro trincas, que são caminhos preferenciais para a liberação dos produtos de fissão.

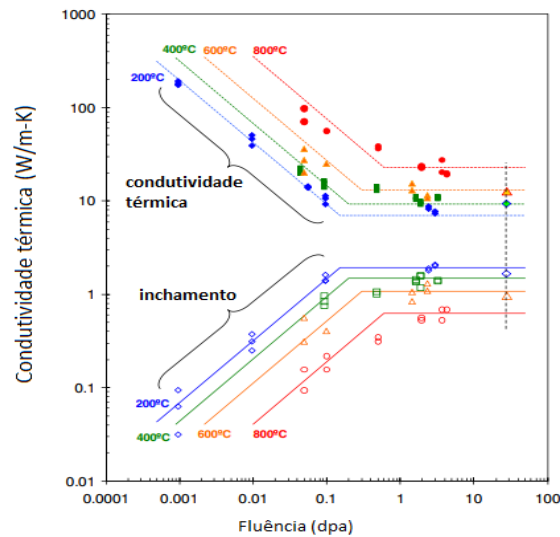
O inchamento contribui para aumento da região de vazio entre o combustível e a superfície interna do revestimento (*gap*) de SiC e juntamente com a degradação da condutividade térmica, ocasionam o aumento da temperatura do combustível contribuindo para uma liberação maior dos gases de produtos de fissão, o aumento da pressão interna da vareta e a liberação destes pelas micro trincas.

A Figura 2.11 apresenta o comportamento da degradação expressiva da condutividade térmica em função da irradiação expressa em termos de fluência (*dpa – displacement per atom*) para amostras formados por fios de SiC reforçada em uma matriz de SiC pelo método CVI em quatro temperaturas (200 °C, 400 °C, 600 °C e 800 °C).

A irradiação dos cupons foi realizada no reator de teste de materiais HFIR do Laboratório Nacional de Oak Ridge (ORNL), onde o fluxo de nêutrons rápidos é da ordem 1×10^{15} (n/cm².s). As medidas da condutividade térmica foram feitas em temperatura ambiente.

Outros experimentos realizados [71] demonstraram a dependência da condutividade térmica com o processo de fabricação, uma vez que as diversas camadas de fibras e o método de deposição da matriz podem contribuir para formação de poros e interfaces que reduzem a condutividade térmica na direção radial.

Figura 2.11 - Comportamento da degradação da condutividade térmica com a irradiação.



Fonte: Adaptado da referência [71].

As possíveis alternativas para redução da corrosão do SiC em condição de operação podem ser a inclusão de camada protetiva de material metálico (por exemplo cromo) ou composto (TiN) ou mudança na química da água dos reatores. A inclusão da camada protetiva contribui na estanqueidade evitando a liberação dos produtos de fissão através das múltiplas micro trincas.

Os problemas relacionados com a corrosão na condição de operação, inchamento sob irradiação e degradação da condutividade térmica afetam diretamente o desenvolvimento dos métodos de fechamento do tubo (tampões terminais). Portanto, as vantagens identificadas no revestimento de SiC como a transparência à nêutrons, inércia química, pouca ativação dos materiais constituintes, reduzida produção de hidrogênio em condição de acidente severo, alto ponto de fusão (aproximadamente 2700 °C), alta rigidez e resistência à corrosão em altas temperaturas ainda não o assegura como potencial candidato a combustível tolerantes a falha.

Do ponto de vista de participação de empresas fabricantes de combustível, somente a Westinghouse em parceria com a empresa GA (General Atomic) e Massachusetts Institute of Technology (MIT) possuem um programa específico de desenvolvimento e pesquisa [72] visando a obtenção do revestimento de SiC denominado de SiGA [73-75] para futura utilização em reatores tipo LWR. No entanto, cabe destacar que dentro do programa de desenvolvimento de combustíveis ATF da Westinghouse, o revestimento de SiC é considerado um produto a ser obtido a longo prazo. Dessa forma, dentro da segmentação estratégica de desenvolvimento de combustíveis ATF em evolucionário e revolucionário, o revestimento de SiC é considerado um produto revolucionário. Outros participantes do desenvolvimento estão basicamente concentrados em Institutos de Pesquisas, Laboratórios e Universidades, principalmente no Japão e na Coreia do Sul.

O desenvolvimento do SiC como revestimento ainda encontra-se no estágio de levantamento e verificação de propriedades básicas e comportamento sob condições similares ao ambiente de reatores LWR. Quanto a fabricação também existem diversos obstáculos que precisam ser contornados para atingir o nível de maturidade relativo à prova de conceito (nível TRL 3). Portanto, dentre as opções de combustíveis tolerantes a falha, comparado relação à liga de FeCrAl e à liga à base de zircônio com camada protetiva de cromo

Alternativamente ao uso como revestimento de varetas de combustível, alguns grupos de pesquisas [76-79] sugerem que a primeira etapa de utilização do SiC em reatores seja para a substituição dos canais dos combustíveis BWR. Este representa aproximadamente 40% da massa da liga de zircônio de um elemento de combustível, que servem como guias para as barras de controle com geometria cruciforme. Desta forma, a troca de material representaria menor quantidade de geração de hidrogênio em um acidente severo e forneceria novas informações e comportamento para subsidiar o desenvolvimento do SiC como revestimento.

2.4 Opções de combustível para os combustíveis tolerantes a falha

Nessa subseção serão apresentadas as principais opções tecnológicas consideradas nas abordagens evolucionária e revolucionária envolvendo o componente combustível como parte dos combustíveis tolerantes a falha. Basicamente, a parte do combustível subdivide-se em duas categorias: atual UO_2 aperfeiçoado e combustível com características de alta densidade.

O combustível UO_2 aperfeiçoado consiste na utilização da atual pastilha de UO_2 com adição de dopantes, objetivando melhor desempenho quanto à queima ou com a inserção de elementos que proporcionam o aumento da condutividade térmica.

2.4.1 Combustível UO_2 aperfeiçoado

Dentre os atributos desejáveis para o combustível tolerante a falha inclui-se a redução das interações mecânicas entre a pastilha de combustível e o revestimento, aumento da capacidade de retenção dos produtos de fissão gasosos na própria matriz e o aumento da condutividade térmica.

As pesquisas, os desenvolvimentos e a obtenção de pastilhas combustível com estas características antecedem o conceito do combustível ATF. O desenvolvimento do combustível denominado de avançado visava obter um combustível que apresentasse melhor resistência e maior taxa de queima comparados aos atuais valores praticados de forma segura [79-81].

A menor interação entre a pastilha e a face interna do revestimento mitiga os efeitos deletérios (tensão mecânica, deformação, corrosão assistida por irradiação do efeito PCI (*Pellet-Clad Interaction*)). A maior capacidade de retenção de produtos de fissão na matriz do próprio combustível permite manter a pressão interna da vareta abaixo dos limites de projeto, contribui para preservar a condutividade térmica do vazio entre o revestimento e pastilha (*gap*), reduz as

causas de falhas vinculadas ao inchamento e aumenta as margens de segurança em condições de operação e de acidentes. Diferentes composições de materiais combustíveis e abordagens tem sido objeto de estudos e pesquisas entre os principais fabricantes de combustível nuclear.

De forma geral, desde as pesquisas laboratoriais do final da década de 1960 para os combustíveis cerâmicos, a adição de dopantes em forma de óxido em pequenas quantidades (aproximadamente 1000 ppm) apresenta-se como uma solução técnica viável e prática [82,83].

A dopagem com pequenas quantidades de óxidos como o Cr_2O_3 ou Al_2O_3 - Cr_2O_3 contribuem para o aumento do tamanho dos grãos [84] durante a fase de sinterização na fabricação das pastilhas. O tamanho do grão final a ser obtido depende da temperatura e da sua taxa de crescimento durante o processo de densificação na fase de sinterização das pastilhas.

A inserção de aditivos (dopantes) influencia o mecanismo de sinterização alterando a difusão pela concentração de defeitos, inibindo a movimentação dos contornos de grãos, alterando a relação de energia de superfície e a energia dos contornos, influenciando na morfologia dos poros [85].

O objetivo inicial da adição de dopantes consistia em reduzir as tensões envolvidas durante o fenômeno de PCI com o aumento da viscoelasticidade das pastilhas. No entanto, verificou-se que houve também um aumento na retenção de gases de produtos de fissão [86], permitindo atingir maior taxa de queima sem violar os atuais limites de projeto e o critério de licenciamento relacionado com a pressão interna da vareta de combustível.

As pesquisas envolvendo a utilização de dopantes com o objetivo de obter melhor desempenho e maiores taxas de queimas sempre foram objeto de interesse dos principais fabricantes de combustível, em particular a empresa Westinghouse [87] com o desenvolvimento do combustível denominado de ADOPT (*Advanced Doped Pellet Technology*) e a empresa FRAMATOME/AREVA [88].

A pastilha combustível denominada de ADOPT com aditivos de Al_2O_3 - Cr_2O_3 facilita a densificação e difusão durante a etapa de sinterização, o que

resulta em cerca de 0,5% de aumento na densidade e um tempo menor de sinterização de grãos maiores (aproximadamente 5 vezes) do que o combustível UO_2 padrão. Os dados mostram que a presença do Al_2O_3 (aproximadamente 200 ppm) favorece o aumento do tamanho do grão amplificando o efeito do Cr_2O_3 (aproximadamente 1000 ppm).

A pastilha ADOPT foi submetida a diversas caracterizações para verificação das propriedades térmicas e mecânicas [89] e diversas irradiações foram realizadas desde 1999 em diferentes reatores (pesquisa e potência) para verificar o desempenho [90], incluindo em reatores de potência comercial (**Barsebäck-2** e **Oskarshamn-3**, na Suécia).

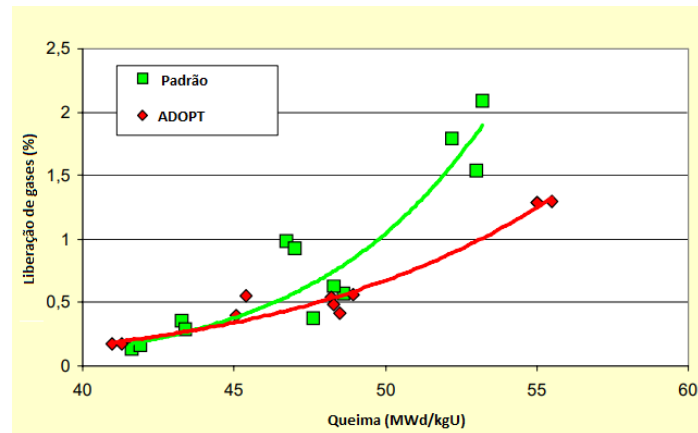
As propriedades térmicas como a capacidade térmica, o coeficiente de expansão térmica, a difusividade térmica e a temperatura de fusão não apresentaram diferenças apreciáveis em relação às propriedades do combustível padrão de UO_2 [91].

Quanto às propriedades mecânicas, o módulo de elasticidade praticamente não apresentou alteração, a fluência que está relacionada com visco-plasticidade apresentou um aumento, conforme desejado pela adição do dopante.

A liberação de gases dos produtos de fissão das varetas irradiadas em reator de potência com queima máxima de 55 MWd/kgU apresentou uma redução da ordem de 30% quando comparado com o combustível padrão, conforme ilustrado na Figura 2.12.

Outros resultados similares também foram obtidos de experimentos específicos realizados nos reatores de teste de materiais: HALDEN (IFA-677) e R2 (Studsvik-Suécia).

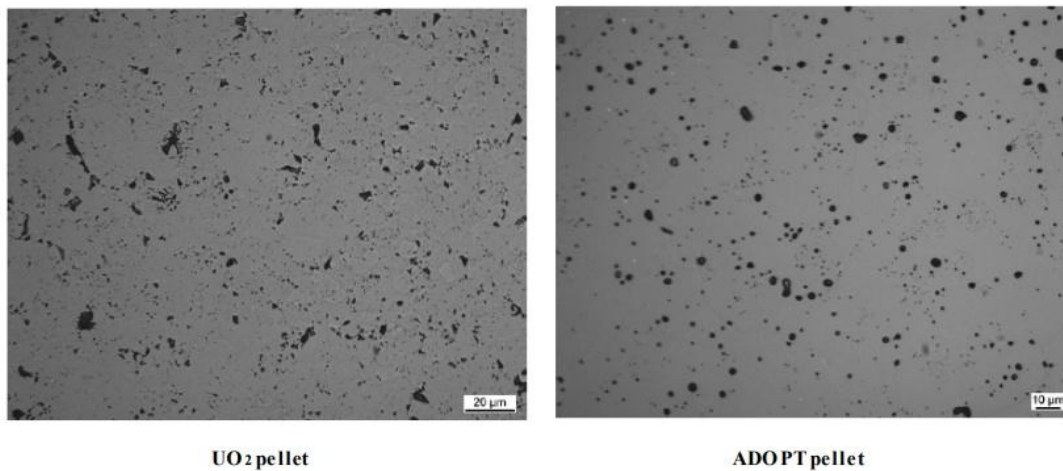
Figura 2.12 - Comportamento da liberação de gases de produtos de fissão do combustível ADOPT comparado com combustível padrão (UO_2).



Fonte: Adaptado da referência [90].

A presença do aditivo influencia também o formato dos poros, conforme observado na Figura 2.13. No combustível padrão os poros possuem um padrão irregular variando de elíptico a triangular, enquanto que no dopado a geometria dos poros apresenta-se de forma mais circular.

Figura 2.13 – Formato dos poros para um combustível padrão e com a presença de dopante.



Fonte: Extraído da Referência [90].

A empresa Westinghouse fornece o combustível ADOPT para os reatores comerciais europeu e baseado nesta experiência operacional, submeteu em maio de 2020 ao órgão regulador americano (NRC) a apreciação para obtenção de licença do uso do combustível ADOPT [89] como parte do combustível denominado de EnCORE do programa de combustível ATF patrocinado pelo DOE. No início de 2021, o órgão regulador americano emitiu um parecer favorável ao combustível ADOPT.

Paralelamente, encontra-se em irradiação no reator de potência comercial **Byron 2**, o combustível ATF formado com o revestimento ZIRLO™ com camada protetiva de cromo com as pastilhas ADOPT, conforme exposto anteriormente.

Neste mesmo contexto, isto é, a utilização de aditivos no combustível, a empresa AREVA (atual FRAMATOME) fabricante e fornecedora de combustíveis para a maioria dos reatores franceses da EDF procurava aumentar a margem de operação permitindo transientes de potência (rampas) ao longo da operação. No entanto, essas manobras de potência (rampas) estavam limitadas pelo critério estabelecido para evitar a ocorrência do fenômeno PCI [91].

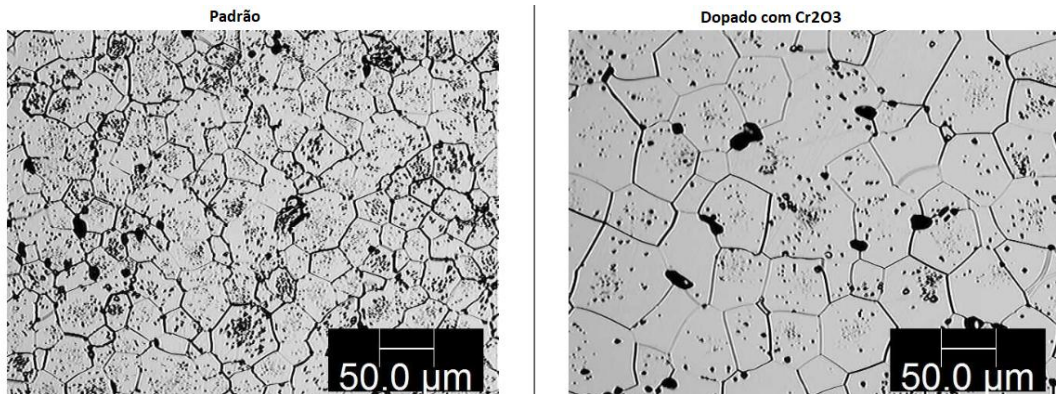
Com intuito de buscar uma solução para flexibilizar a operação dos reatores, foram realizadas pesquisas e desenvolvimento que culminaram na utilização do Cr_2O_3 como dopante para obter tamanho de grãos maiores e melhor propriedade visco-elástica. A quantidade de aditivo é da ordem de 0,16% em peso correspondente ao valor próximo do limite de solubilidade para uma dada condição de sinterização.

O tamanho de grão final obtido foi da ordem de 50 a 60 micrômetros na pastilha, conforme a Figura 2.14, este maior que o combustível padrão, que possui tamanho de grão da ordem de 10 micrômetros. Desta forma, obtém-se uma melhora na propriedade visco-elástica (*softer pellet*), conferindo maior estabilidade dimensional, conseqüentemente reduzindo o efeito PCI combinado com a corrosão sob tensão, e maior retenção de gases de produtos de fissão, principalmente em condições de acidente.

Além disso, proporcionou um aumento da densidade do combustível, ocasionando um aumento indireto da quantidade de urânio por elemento de

combustível e o aumento no ciclo de operação com a absorção residual mínima no final de vida do combustível.

Figura 2.14 - Microestrutura de uma pastilha padrão de UO_2 e UO_2 dopado com Cr_2O_3 .



Fonte: Extraído da referência [92].

Esta pastilha de UO_2 com dopante Cr_2O_3 , juntamente com o revestimento à base de liga de zircônio M5[®] com camada protetiva de cromo, faz parte da estratégia de desenvolvimento do elemento de combustível evolucionário denominado E-ATF (*Enhanced ATF*) da empresa AREVA/FRAMATOME [91].

Quanto ao processo fabril, a inserção de dopante não altera o atual processo de fabricação de pastilhas de UO_2 e tão pouco introduz custos adicionais significativos.

As propriedades térmicas como: temperatura de fusão, capacidade térmica, condutividade térmica e coeficiente de expansão térmica permanecem praticamente inalteradas em relação à pastilha sem o dopante. As variações observadas encontram-se no intervalo de incerteza das medidas [92, 93].

As propriedades mecânicas, especificamente a razão de Poisson, módulo de Young e as outras propriedades como tensão, deformação, fluência são alteradas com a inclusão de dopantes. No entanto, estas informações são proprietária do fabricante e não estão disponíveis em literatura aberta.

A AREVA apresentou em 2016 todas as informações e o processo de validação dos programas de desempenho para o órgão regulador americano (NRC), a fim obter a licença para a utilização do combustível protótipo nos Estados Unidos. A solicitação foi avaliada e recebeu o parecer favorável por parte do NRC em 2018 para a utilização em condições limitadas, segundo os critérios definidos na 10CFR50.59 (*Changes, Tests and Experiments*) [94].

O protótipo de elemento de combustível com varetas de combustível completo em tamanho real contendo pastilhas de UO_2 com Cr_2O_3 com o revestimento de liga à base de zircônio M5[®] e camada protetiva de cromo foram inseridos no reator de potência comercial **Vogtle2**, localizado no estado americano da Georgia em abril de 2019.

Recentemente, em fevereiro de 2021, a FRAMATOME (antiga empresa AREVA) divulgou que durante a parada para recarga do núcleo do reator inspecionou os elementos de combustíveis com as varetas de teste e, estas se encontravam integras demonstrando excelente desempenho até aquela data.

A FRAMATOME (antiga AREVA) já assinou outros contratos com operadores de reatores para executar os testes no combustível protótipo no âmbito do programa E-ATF. O mais recente contrato foi assinado em 21 de março de 2021 com o primeiro reator BWR (**Monticello**) localizado no estado americano de Minesotta.

Portanto, considerando a atual situação quanto a fabricação, ensaios, testes de desempenho e ferramentas computacionais, o grau de maturidade encontra-se no último nível (TRL 9), ou seja, disponível para uso comercial nos reatores atuais.

A inclusão de aditivos na atual pastilha combustível realizadas pelas empresas Westinghouse e AREVA/FRAMATOME visavam obter melhores propriedades mecânicas. No entanto, a inclusão de outros elementos no UO_2 também pode ser realizada visando especificamente a melhoria da condutividade térmica do combustível.

A melhora da condutividade térmica contribui na redução da energia armazenada, principalmente reduzindo o pico de temperatura, que é um dos critérios associados ao licenciamento e também na situação de acidentes, evitando a fusão do combustível.

Além disso, proporcionam: redução do gradiente térmico entre as regiões centrais e periféricas das pastilhas, redução das tensões térmicas, melhor uniformidade dos poros, distribuição espacial mais uniforme dos produtos de fissão, aumento da estabilidade geométrica e redução da liberação dos gases dos produtos de fissão.

A idéia de inclusão de outros elementos na pastilha de UO_2 objetivando a melhoria da condutividade térmica também precede o conceito e o desenvolvimento dos combustíveis ATF [95].

No início da década de 1960 e 1970, a General Electric e o Laboratório Nacional de Argonne explorou o conceito CERMET (*Ceramic–Metallic*) [96], mistura de material metálico tungstênio na matriz cerâmico de UO_2 ou UN (Nitreto de Urânio) para obter o aumento da condutividade térmica do combustível. Igualmente, outros programas da década de 60, como o programa denominado de EBOR (*Experimental Beryllium Oxide Reactor Program*) desenvolvido pela empresa General Atomic [97-98] demonstrou que a adição de óxido contribuía para o aumento da condutividade térmica. Além disso, o reator de pesquisa experimental **ACCR** (*Annular Core Research Reactor*) do Laboratório Nacional de Sandia [99] operou vários anos com o combustível de UO_2 -BeO [100].

A Tabela 2.8 apresenta diversos óxidos e elementos com as respectivas propriedades: a condutividade térmica, densidade e a seção de choque de absorção de nêutrons. Destaca-se nesta tabela o óxido de berílio (BeO) pela alta condutividade térmica em relação aos demais óxidos, alto ponto de fusão e baixa seção de choque de absorção de nêutrons [101].

Tabela 2.8 – Possíveis elementos aditivos no combustível para melhoria da condutividade térmica.

Óxido	Densidade [g/cm ³]	Condutividade Térmica [W/(mK)]	Temperatura de fusão [Kelvin]	Seção de choque de absorção térmica [barn]
BeO	3,01	265	2770	0,0086
UO ₂	10,97	10,3	3120	-
MgO	3,58	36,0	3100	0,0033
CaO	3,34	15,0	2613	0,182
Al ₂ O ₃	3,80	30,2	2327	0,01
ZrO ₂	5,70	1,7	2983	0,01
ThO ₂	10,0	8,2	3400	0,132
SiC	3,21	70	2730	-
Mo	10,28	139	2900	2,48
W	19,25	174	3700	18,0

Fonte: Adaptado da referência [101].

O óxido de berílio (BeO) quando associado com o UO₂ apresenta boa compatibilidade. Insolúvel, não apresenta reação com o UO₂ até a temperatura de 2200 °C.

A Tabela 2.9 apresenta o comportamento do aumento da condutividade térmica em função da quantidade em massa de óxido de berílio inserido no combustível e da temperatura [104].

Tabela 2.9 – Condutividade térmica em função da concentração do óxido de berílio.

Temperatura (K)	Condutividade Térmica [W/(mK)]			
	BeO (1,0 wt %)	BeO (1,3 wt %)	BeO (1,5 wt%)	BeO (5,0 wt%)
300	8,4	9,6	15,3	45,2
600	5,5	6,4	10,3	20,1
900	4,7	5,2	7,0	16,4
1200	4,3	4,9	5,5	8,5
1500	4,1	4,7	5,2	6,4

Fonte: Autor da Tese baseado na referência [104].

Algumas amostras de pastilhas de $\text{UO}_2\text{-BeO}$ foram irradiadas até a queima de 30.000 MWd/tU no reator de **HALDEN** inseridas em varetas instrumentadas com termopares e evidenciou a queda da temperatura central da pastilha comparativamente às amostras sem a presença do BeO, comprovando o desempenho em condições de irradiação [104].

O grau de maturidade do combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ quanto à fabricação pode ser considerado praticamente no nível TRL 7 a 9. Ressalta-se a existência da norma padrão ASTM com requisitos de qualidade nuclear (ASTM C708-16: *Standard Specification for Nuclear-Grade Beryllium Oxide Powder*) [105].

Nos trabalhos avaliados relacionados com utilização de óxido de berílio como combustíveis tolerantes as falhas não foram verificadas menções ou citações acerca do possível envenenamento do berílio, fenômeno já observado em reatores de pesquisa [106,107], que utilizam blocos de berílio como material refletor na periferia do núcleo do reator. As reações nucleares $(n, 2n)$ e (n,α) em uma faixa de alta energia ($E > 1,85 \text{ MeV}$) no berílio, especificamente ^9Be produz ^6Li e ^3H , respectivamente. Estes possuem altas seções de choque de absorção de nêutrons, que podem impactar na reatividade nuclear. O envenenamento foi observado após vários anos de irradiação com fluência da ordem de $1,0 \times 10^{+22} \text{ n/cm}^2$.

2.4.2 Combustível de alta densidade

Além da abordagem do combustível tradicional UO_2 com adição de óxidos para obter melhores propriedades termo-mecânicas, a possibilidade do uso de combustível de alta densidade é uma opção muito atraente para os combustíveis tolerantes a falha.

Os combustíveis de alta densidade oferecem vantagem pela quantidade maior de átomos de urânio disponível para um mesmo volume. Esta condição traduz-se na economia associada com o processo de enriquecimento de urânio, que representa uma parte significativa do custo final do combustível nuclear. O

aumento da densidade permite atingir ciclos operativos mais longos com o mesmo teor de enriquecimento que o dos atuais combustíveis, uma vez que o aumento da densidade equivale ao aumento do teor de enriquecimento em ^{235}U .

A opção de um combustível mais denso é atraente e desejável principalmente para os revestimentos que apresentam absorção parasítica de nêutrons maior em relação a atual liga à base de zircônio.

Os principais materiais candidatos a combustível tolerantes a falha que possuem alta densidade e alta condutividade térmica são principalmente: nitretos, carbetos, silicetos e as ligas metálicas de urânio.

As pesquisas iniciais voltadas para exploração e uso de combustível de alta densidade datam do início da década de 1960. O nitreto de urânio (UN) como combustível nuclear foi utilizado no programa SNAP (*Systems for Nuclear Auxiliary Power*) [108]. Especificamente, o combustível para o reator rápido SNAP-50 [109] era de nitreto de urânio e o refrigerante de lítio. Este programa foi descontinuado e também os programas de pesquisas sobre UN.

A utilização do combustível de alta densidade foi também uma alternativa encontrada para os reatores de pesquisa com alto teor de enriquecimento (> 90%) no programa internacional RERTR (*Reduced Enrichment for Research and Test Reactors*) [110]. Instituído em 1987 pelo governo americano com a colaboração internacional dos países que possuíam reatores de pesquisa, o principal objetivo deste programa consistia em substituir os combustíveis denominados de HEU (*High Enrichment Uranium*) para o LEU (*Low Enrichment Uranium*) visando reduzir os riscos de proliferação e desvio de material nuclear para fabricação de artefatos nucleares de destruição em massa.

A redução do teor de enriquecimento deveria ser compensada com o aumento da densidade dos combustíveis, sem causar prejuízos às aplicações nas quais os reatores com o combustível tipo HEU (*High Enrichment Uranium*) já eram utilizados.

Além do programa RERTR, no início da década 1990 retomou-se o interesse na utilização de nitreto de urânio [111] no desenvolvimento de combustível IMF (*Inert Matrix Fuel*), um combustível voltado para os reatores

queimadores de elementos transurânicos para a redução de rejeitos radioativos de alta atividade e meia vida longa.

Os objetivos nas aplicações do combustível de nitreto de urânio no passado não eram os mesmos do atual programa de desenvolvimento de combustíveis ATF. No entanto, a existência de informações sobre as diversas propriedades dos combustíveis de nitreto de urânio tornaram este combustível uma opção bastante atraente [112].

As pesquisas iniciais identificaram vantagens como: alta temperatura de fusão (aproximadamente, 3120 K), boa condutividade térmica (entre 19 a 25 W/mK), alta densidade (maior quantidade de urânio por volume ~ 14,31 g/cm³), baixo calor específico, boa compatibilidade com os revestimentos conhecidos, boa estabilidade à radiação e retenção dos produtos de fissão.

A boa condutividade térmica reduz a temperatura central, diminui a energia armazenada e reduz a liberação dos gases produtos de fissão.

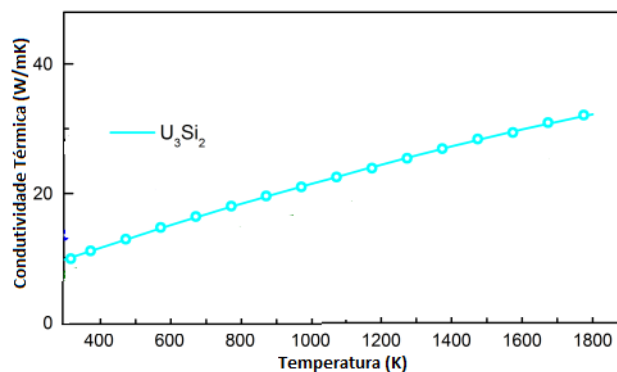
Dentre as possíveis desvantagens, destacam-se: a pirofosforicidade (ignição com temperatura acima de 280 °C) [113], a necessidade de atmosfera muito controlada com teor de oxigênio inferior a 20 ppm para evitar a corrosão [114], a presença predominante do isótopo ¹⁴N (abundância natural de 99,64%) em relação ao isótopo ¹⁵N (abundância natural de 0,36%), que contribui para a formação do ¹⁴C que apresenta meia vida longa e alta radioatividade, a formação de hélio pela reação nuclear nêutron-alfa, que contribui para o inchamento do combustível, a alta seção de choque de absorção do ¹⁴N representa uma penalidade neutrônica, e a baixa resistência a oxidação em ambiente de água e vapor.

A empresa Westinghouse considera a possibilidade de enriquecer o teor do isótopo ¹⁵N com a tecnologia laser para mitigar a penalidade neutrônica. Estima-se um custo inicial do enriquecimento do isótopo ¹⁵N para concentração de 99% da ordem de U\$ 1,130 kg/nitrogênio e a utilização com a mistura de U₃Si₂ em diferentes composições [115]. Ressalta-se que até o presente momento não existe tecnologia comercial para o enriquecimento do isótopo ¹⁵N.

Além do combustível UN, o siliceto de urânio (U_3Si_2) também apresenta propriedades desejáveis para os combustíveis ATF, como: alta densidade (aproximadamente $12,2 \text{ g/cm}^3$, aproximadamente 16% superior ao UO_2), alta condutividade térmica (15 W/m/K a 500 °C) quando comparado ao UO_2 (aproximadamente 4 W/m/K a 500 °C), boa estabilidade química, além disso possui um longo histórico de utilização como combustível em reatores de pesquisa, principalmente na forma de dispersão em uma matriz de alumínio [116].

Comparativamente ao UO_2 ao UN, o siliceto de urânio possui temperatura de fusão inferior (aproximadamente 1665 °C), porém apresenta alta condutividade térmica, que aumenta com a temperatura, conforme Figura 2.15, proporcionando temperaturas menores no centro do combustível, principalmente comparado com o UO_2 .

Figura 2.15 - Condutividade térmica do U_3Si_2 em função da temperatura .



Fonte: Adaptado da referência [117].

Além das vantagens citadas, o siliceto de urânio é um combustível não proliferante, devido à dificuldade no reprocessamento quando comparado com outros combustíveis.

Este combustível foi explorado no programa RERTR [118] voltado para redução do teor de enriquecimento dos combustíveis de reatores de pesquisa, uma vez que, a redução no grau de enriquecimento poderia ser obtida com a utilização de combustível mais denso [119,120].

Quando comparado com reatores comerciais tipo LWR, normalmente os reatores de pesquisa operam com potências reduzidas (aproximadamente

dezenas de MWt), as temperaturas envolvidas são inferiores e determinados fenômenos associados com a temperatura não são tão críticos e exacerbados [121].

Dentre os possíveis problemas que devem ser analisados em condição de operação de reatores LWR estão os fenômenos da corrosão, oxidação e o inchamento sob irradiação. O combustível U_3Si_2 apresenta grande susceptibilidade a corrosão para ambiente de alta pressão e temperaturas acima de 400 °C (*breakaway-oxidation*) [122] ocasionando a pulverização do combustível.

Alguns estudos indicam como forma de contornar o problema a adição de elementos (alumínio, cromo ou ítrio) [123,124] ou mudança da química da água do circuito primário com aumento da concentração de H_2 [125] para obter melhor desempenho em condições de atmosfera de vapor ou água a alta temperatura.

Quanto ao inchamento do U_3Si_2 , parte das informações está associada com os combustíveis na geometria tipo placa, onde o U_3Si_2 encontra-se disperso em uma matriz de alumínio. O inchamento apresenta um efeito deletério [124] na corrosão, dessa forma para a utilização das varetas em geometria cilíndrica prevê-se como alternativa aumentar o espaço vazio (*gap*) entre o combustível e a parede interna do revestimento, ou empreender novas pesquisas visando mitigar o inchamento durante a irradiação.

As informações disponíveis em literatura aberta quanto às propriedades e ao comportamento sob irradiação limitam-se basicamente às condições de operação de reatores de pesquisas, com temperaturas do combustível inferior a 250 °C [126].

Os atuais dados existentes possuem aplicação limitada e não podem ser extrapolados para as condições de operação de reatores LWR. No contexto do combustível ATF, o siliceto de urânio com densidade maior do que UO_2 pode representar extensão no ciclo operativo ou redução do teor de enriquecimento. A condutividade térmica maior e crescente com a temperatura contribui para manter as temperaturas mais baixas, menor energia armazenada em caso de acidente.

Tais atributos motivaram a fabricante Westinghouse a investir no potencial do U_3Si_2 como um combustível tolerante a falha.

Algumas amostras de pastilhas foram fabricadas e inseridas em mini-varetas com revestimento de ZIRLO™ para a irradiação no núcleo do reator **ATR** na primeira campanha de irradiação voltada para a prova de conceito denominada de ATF-1 [125] do programa do DOE.

Os resultados preliminares dos ensaios não destrutivos (inspeção visual, gamagrafia, neutrongrafia e profilometria) com a queima acumulada de aproximadamente 21 GWd/tHM mostraram excelente desempenho, sem apresentar falhas ou deformação excessiva no revestimento e na pastilha.

Além dos combustíveis de urânio em forma de nitretos e silicetos, o urânio metálico é considerado outro potencial candidato para os combustíveis tolerantes a falha devido à excelente condutividade térmica e alta densidade.

Historicamente, o desenvolvimento e a utilização do urânio metálico como combustível para os reatores rápidos experimentais são contemporâneos ao desenvolvimento do combustível cerâmico de UO_2 para reatores LWR.

Os reatores rápidos experimentais **EBR** (*Experimental Breeder Reactor*), **FERMI-I**, **DFR** (*Dounrey Fast Reactor*) utilizaram a liga metálica de U-Pu-Zr e $U_{10}Zr$, que contribuíram para desenvolver um extenso banco de dados e informações [128] para o programa americano IFR (*Integral Fast Reactor*) [129] compreendendo mais de 130.000 varetas irradiadas ao longo de quase 30 anos de operação.

A escolha do urânio metálico como combustível deu-se pela facilidade de fabricação, alta condutividade térmica, alta densidade de material físsil e fértil, com a inclusão de elementos de liga (Mo, Zr e Cr) para estabilização dimensional durante a irradiação e resistência a corrosão. Posteriormente, buscando a sinergia com o ciclo de combustível dos reatores LWR, principalmente com o reprocessamento e a extração do plutônio [130], a inclusão de plutônio na liga acarretou um aumento da taxa de queima.

A maioria dos combustíveis metálicos, no início dos programas de irradiações apresentaram inchamento sob irradiação, que por sua vez, foram contornados com o aumento da região de vazio entre a pastilha e o revestimento, assim como o aumento na região do *plenum* para acomodar maiores volumes de gases evitando o aumento da pressão interna da vareta.

Além da experiência com reatores rápidos, o combustível de urânio metálico tornou-se uma opção no programa RERTR, quando a simples substituição para o combustível de U_3Si_2 com enriquecimento abaixo de 20% não apresentava o mesmo desempenho do combustível HEU, principalmente devido à limitação máxima da densidade (aproximadamente $4,8 \text{ g/cm}^3$) de U_3Si_2 na dispersão [131].

A liga metálica de UMo na forma de dispersão ou monolítico tem sido objeto de investigação para utilização nestes reatores [131]. Contudo, ainda não existem resultados promissores. Quanto aos principais fabricantes, não existe até o presente momento alguma pesquisa ou desenvolvimento de combustível contendo ligas de urânio metálico para reatores LWR.

Os combustíveis de alta densidade foram utilizados com sucesso nos primeiros reatores rápidos e encontram-se em uso nos atuais reatores de pesquisa, no entanto quanto à maturidade destes para aplicação em reatores tipo LWR ainda encontram-se em estágio de pesquisa e desenvolvimento, na fase de prova de conceito, situado entre os níveis TRL 1 a TRL 3. A fabricação de determinados combustíveis de alta densidade é um processo já comprovado, porém deve ser adaptado de acordo com o material e com os resultados provenientes das fases de pesquisa e desenvolvimento, incluindo-se o desempenho sob irradiação.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] NATIONAL AERONAUTICS AND SPACE ADMINISTRATION. MANKINS, J. **Technology Readiness levels, A White Paper**, Washington, Estados Unidos, 1995.
- [2] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Power Reactor Information System (PRIS)**, disponível em <<https://pris.iaea.org/pris>>, acesso em 26 janeiro 2020.
- [3] MANKINS, J. C. Technology readiness assessments: A retrospective, **Acta Astronautica**, 65, p. 1216–1223, 2009.
- [4]TRL: Recursos financeiros por níveis de maturidade tecnológica, disponível em <<https://brasil.abqi-group.com/radar-inovacao/artigos-estudos/trl-recursos-financeiros-por-niveis-de-maturidade-t>>, Acesso em 22 janeiro 2020.
- [5] IDAHO NATIONAL LABORATORY. BRAGG-SITTON, S. M. et al. **Advanced fuels campaign: enhanced LWR accident tolerant fuel performance matrix**, 2014, (INL/EXT-13-000264).
- [6] IDAHO NATIONAL LABORATORY. CARMACK, W. J.; BRAASE, L. A.; WIGELAND, R. A. e TODOSOW, M. **Technology readiness levels for advanced nuclear fuels and materials development**, 2017, (INL/JOU-16-38690).
- [7] TANG, C.; STUEBER, M.; SEIFERT, H. J. e STEINBRUECK, M. Protective coatings on zirconium-based alloys as accident-tolerant fuel (ATF) claddings, **Corrosion Reviews**, 35, p. 141–165, 2017.
- [8] DUMERVAL, M.; HOUMAIRE, Q.; BRACHET, J. C.; PALANCHER, H.; BISCHOFF, J. e POUILLIER, E. Behavior of Chromium coated M5 claddings upon thermal ramp tests under internal pressure (Loss-of-Coolant Accident Conditions), Setembro 2018, Praga, República Tcheca, **Proceedings of the TopFuel 2018**.
- [9] BISCHOFF, J.; DELAFOY, C.; VAUGLIN, C.; BARBERIS, P.; ROUBEYRIE, C.; PERCHE, D.; DUTHOO, D.; SCHUSTER, F.; BRACHET J. C.; SCHWEITZER, E. W. e NIMISHAKAVI, K. AREVA NP's enhanced accident tolerant fuel developments: focus on Cr coated M5 cladding, **Nuclear Engineering and Technology**, 50, p. 223-228, 2018.
- [10] SHAH, H.; ROMERO, J.; XU, P.; OELRICH, R.; WALTER, J.; WRIGHT, J. e GASSMANN, W. Westinghouse Exelon EnCore® Fuel Lead Test Rod (LTR) program including coated cladding development and advanced, Setembro 2018, Praga, República Tcheca, **Proceedings of the TopFuel 2018**.

- [11] CHEN, H.; WANG, X. e ZHANG, R. Application and development progress of Cr-based surface coatings in nuclear fuel element: selection, preparation, and characteristics of coating materials, **Coatings**, 10, p. 808, 2020.
- [12] ALAT, E.; MOTTA, A. T.; COMSTOCK, R. J.; PARTEZANA, J. M. e WOLFE, D. E. Ceramic coating for corrosion (c3) resistance of nuclear fuel cladding, **Surface Coatings Technology**, 281, p. 133-143, 2015.
- [13] BRACHET, J. C.; IDARRAGA-TRUJILLO, I.; FLEM, M. L.; SAUX, M. L.; VANDENBERGHE, V.; URVOY, S.; ROUESNE, E.; GUILBERT, T.; TOFFOLON-MASCLET, V. e TUPIN, M. Early studies on Cr-Coated Zircaloy-4 as enhanced accident tolerant nuclear fuel claddings for light water reactors, **Journal of Nuclear Material**, 517, p. 268–285, 2019.
- [14] MAIER, B.; YEOM, H.; JOHNSON, G.; DABNEY, T.; WALTERS, J.; XU, P.; ROMERO, J.; SHAH, H. e SRIDHARAN, K. Development of cold spray chromium coatings for improved accident tolerant zirconium-alloy cladding, **Journal of Nuclear Material**, 519, p. 247–254, 2019.
- [15] ŠEVECEK, M.; GURGEN, A.; PHILLIPS, B.; CHE, Y.; WAGIH, M. e SHIRVAN, K. Cold spray Cr-coated fuel cladding with enhanced accident tolerance, Setembro 2017, Jeju, Coréia do Sul, **Proceedings of the 2017 Water Reactor Fuel Performance Meeting**.
- [16] HAN, S. K.; JEON, G.; YOON, J. S. e KIM, H. J. High temperature wear resistance of (TiAl)N films synthesized by cathodic arc plasma deposition, **Surface Coatings Technology**, 86-87, p.82–87, 1996.
- [17] LIN, K. L.; HWANG, M.Y e WU, C. D. The deposition and wear properties of cathodic arc plasma deposition TiAlN deposits, **Materials Chemistry and Physics**, 46, p. 77–83, 1996.
- [18] HAN, J. G.; NAM, K. H. e CHOI, I. S. The shear impact wear behavior of Ti compound coatings, **Wear**, 214, p. 91–97, 1998.
- [19] WANG, Y. A study of PVD coatings and die materials for extended die-casting die life, **Surface Coatings Technology**, 94-95, p. 60–63, 1997.
- [20] ORGANISATION FOR ECONOMIC CO-OPERATION AND DEVELOPMENT/NUCLEAR ENERGY AGENCY. VAN NIEUWENHOVE, R. IFA-774: The first in-pile test with coated fuel rods, Setembro 2014, Paris, França, **Proceeding of second meeting of the OECD-NEA expert group on accident tolerant fuels for LWRs**.
- [21] IDAHO NATIONAL LABORATORY. CARMACK, J.; BARRETT, K. e MACLEAN-CHICHESTER, H. **Light water reactor accident tolerant fuels irradiation testing**, 2015, (INL/CON-15-34949).
- [22] ŠEVECEK, M.; GURGEN, A.; PHILLIPS, B.; CHE, Y.; WAGIH, M. e SHIRVAN, K. Development of Cr cold spray coated fuel cladding with enhanced accident tolerance, **Nuclear Engineering and Technology**, 50, p. 229-236, 2018.

- [23] KIM, H. G.; KIM, I. H.; JUNG, Y. I.; PARK, D. J.; PARK, J. Y. e KOO, Y. H. Adhesion property and high-temperature oxidation behavior of Cr-coated Zircaloy-4 cladding tube prepared by 3D laser coating, **Journal of Nuclear Materials**, 465, p. 531-539, 2015.
- [24] PARK, J. H.; KIM, H. G.; PARK, J.; JUNG, YI.; PARK, D. J. e KOO, Y. H. High temperature steam-oxidation behavior of arc ion plated Cr coatings for accident tolerant fuel claddings, **Surface Coat Technology**, 280, p. 256–259, 2015.
- [25] PARK, D. J.; KIM, H. G.; JUNG, Y.; PARK, J. H.; YANG, J. H. e KOO, Y. H. Behavior of an improved Zr fuel cladding with oxidation resistant coating under loss-of-coolant accident conditions, **Journal of Nuclear Materials**, 482, p. 75–82, 2016.
- [26] PACIFIC NORTHWEST NATIONAL LABORATORY. GEELHOOD, K. G. e LUSCHER, W. G. **Degradation and failure phenomena of accident tolerant fuel concepts chromium coated zirconium alloy cladding**, 2019, (PNNL-28437).
- [27] CHEN, H.; WANG, X. e ZHANG, R. Application and development progress of Cr-based surface coatings in nuclear fuel element: selection, preparation, and characteristics of coating materials, **Coatings**, 10, p. 808, 2020.
- [28] LIN, Y.; FAUCETT, R.; DESILVA, S.; LUTZ, D.; YILMAZ, M.; DAVIS, P. e SATTERLEE, N. Path toward industrialization of enhanced accident tolerant fuel, Setembro 2018, Praga, República Tcheca, **Proceedings of the TopFuel 2018**.
- [29] IDAHO NATIONAL LABORATORY. **Accident tolerant fuels effort hits important milestone**, disponível em <<https://inl.gov/article/accident-tolerant-fuels/>>, Acesso em 23/03/2019.
- [30] BRACHET, J. C et al. Behavior of Cr-coated M5™ claddings under LOCA conditions, Setembro 2017, Jeju, Coréia do Sul, **Proceedings of 2017 Water Reactor Fuel Performance Meeting**.
- [31] BRACHET, J.C.; LE SAUX, M.; LEZAUD-CHAILLIOUX, V.; DUMERVAL, M.; HOUMAIRE, Q.; LOMELLO, F.; SCHUSTER, F.; MONSIFROT, E.; BISCHOFF, J. e POUILLIER, E. Behavior under LOCA conditions of enhanced accident tolerant chromium coated zircaloy-4 claddings, Setembro 2016, Boise, Estados Unidos, **Proceedings of Topfuel2016 - Light Water Reactor (LWR) Fuel Performance Meeting**.
- [32] ELETRIC POWER RESEARCH INSTITUTE. STRASSER, A. et al. **An evaluation of stainless steel cladding for use in current design LWRs**, 1982, (EPRI-NP-2642).
- [33] AVELAR, A. M.; GIOVEDI, C.; ABE, Y. A. e MOURÃO, B. M. Oxidation of AISI 304L and 348 stainless steels in water at high temperatures, **Materials Research**, 23, 2020.

- [34] ABE, A.; GIOVEDI, C.; GOMES, D. S. e TEIXEIRA e SILVA, A. Revisiting stainless steel as PWR fuel rod cladding after Fukushima Daiichi accident, ***Journal of Energy and Power Engineering***, 8, p. 973-980, 2014.
- [35] GENERAL ELETRIC. ***High-temperature materials and reactor component development programs***, 1965, Fourth Annual Report (GEMP-334A).
- [36] GENERAL ELETRIC. ***High-temperature materials program progress report No. 55, part A***, 1966, (GEMP-55A).
- [37] GENERAL ELETRIC. ***High-temperature materials program progress report No. 59, part A***, 1966, (GEMP-59A).
- [38] REBAK, R. B.; GUPTA, V. K. e LARSEN, M. Oxidation Characteristics of Two FeCrAl Alloys in Air and Steam from 800 °C to 1300 °C, ***The Journal of The Minerals, Metals & Materials Society***, 70, p.1484–1492, 2018.
- [39] OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. YAMAMOTO, Y.; KANE, K.; PINT, B.; TROFIMOV, A. e WANG, H. ***Report on exploration of new FeCrAl heat variants with improved properties***, (ORNL/TM-2019/1290).
- [40] GEANTA, V.; VOICULESCU, I. e STANCIU, E. M. Hafnium influence on the microstructure of FeCrAl alloys, ***Material Science and Engineering***, 133, p.12-16, 2016.
- [41] YAMAMOTO, Y.; PINT, B. A.; TERRANI, K. A.; FIELD, K. G.; YANG, Y. e SNEAD, L. L. Development and property evaluation of nuclear grade wrought FeCrAl fuel cladding for light water reactors, ***Journal of Nuclear Materials***, 467, p.703-716, 2015.
- [42] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. STUCKERT, J. ***First results of the bundle test QUENCH-19 with FeCrAl claddings***, 2020, (IAEA-TECDOC-1921).
- [43] REBAK, R. B.; GUPTA, V. K.; DROBNJAK, M.; KECK, D. J. e DOLLEY, E. J. Overcoming sensitization in welds using FeCrAl alloys, 2018, Praga, República Tcheca, ***Proceedings of TopFuel 2018***.
- [44] TERRANI, K. A.; ZINKLE, S. J. e SNEAD, L. L. Advanced oxidation-resistant iron-based alloys for LWR fuel cladding, ***Journal of Nuclear Materials***, 448, p. 420-435, 2014.
- [45] KIM, H. G.; IL-HYUN, K.; JUNG, Y.; PARK, D. J.; PARK, J. H.; LEE, Y. H. e CHOI, B. K. Status of ATF cladding development at KAERI, Setembro 2019, Seattle, Estados Unidos, ***Proceedings of TopFuel2019***.
- [46] JOSHI, P.; KOMBAIAH, B.; CINBIZ, M. N. e MURTY, K. L. Characterization of stress rupture behavior of nuclear-grade C26M2 FeCrAl alloy for accident-tolerant fuel cladding via burst testing, ***Materials Science & Engineering***, 791, 2020.

- [47] GUSSEV, M. N.; CARMAC, E. e FIELD, K. G. Impact of neutron irradiation on mechanical performance of FeCrAl alloy laser-beam weldments, ***Journal of Nuclear Materials***, 504, p. 221–33, 2018.
- [48] VAN DEVENTER, E. H. e MARONI, V. A. Hydrogen permeation characteristics of some Fe-Cr-Al alloys, ***Journal of Nuclear Materials***, 113, p. 65, 1983.
- [49] HU, X.; TERRANI, K. A.; Wirth, B. D. e SNEAD, L. L. Hydrogen permeation in FeCrAl alloys for LWR cladding application, ***Journal of Nuclear Materials***, 461, p. 282-291, 2015.
- [50] OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. XIANG, C.; FIELD, K. G.; ZHANG, D.; MASSEY, C. P.; LINTON, K. D.; ROBERTSON, J. P. e NELSON, T. ***Post-irradiation fracture toughness characterization of generation ii FeCrAl alloys***, 2019, (ORNL/TM-2019/1391).
- [51] IDAHO NATIONAL LABORATORY. CAPPIA, F. ***Post-Irradiation examinations of accident tolerant fuel candidates with iron-alloy cladding***, 2019, (INL/EXT-19-56583).
- [52] FIELD, K. G.; HOWARD, R. H.; PETRIE, C. M. e TERRANI, K. A. Irradiation testing of accident tolerant fuel FeCrAl cladding, Setembro 2017, Jeju, Coréia doSul, ***Proceedings of the 2017 Water Reactor Fuel Performance Meeting***.
- [53] PENG, W.; GRDANOVSKA, S.; BARTELS, D. M. e WAS, G. S. Effect of radiation damage and water radiolysis on corrosion of FeCrAl alloys in hydrogenated water, ***Journal of Nuclear Materials***, 533, p. 1-18, 2020.
- [54] GUSSEV, M. N.; CARMAC, E. e FIELD, K. G. Impact of neutron irradiation on mechanical performance of FeCrAl alloy laser-beam weldments, ***Journal of Nuclear Materials***, 504, p. 221–33, 2018.
- [55] FIELD, K. G.; BRIGGS, S. A.; SRIDHARAN, K.; HOWARD, R. H. e YAMAMOTO, Y. Mechanical properties of neutron-irradiated model and commercial FeCrAl alloys, ***Journal of Nuclear Materials***, 489, p.118–128, 2017.
- [56] OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. XIANG, C.; FIELD, K. G.; ZHANG, D.; MASSEY, C. P.; LINTON, K. D.; ROBERTSON, J. P. e NELSON, T. ***Post-irradiation fracture toughness characterization of generation II FeCrAl alloys***, 2019, (ORNL/TM-2019/1391).
- [57] IDAHO NATIONAL LABORATORY. CAPPIA, F. ***Post-Irradiation examinations of accident tolerant fuel candidates with iron-alloy cladding***, 2019, (INL/EXT-19-56583).
- [58] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. ***High temperature gas cooled reactor fuels and materials***, 2010, (IAEA-TECDOC-1645).
- [59] KATOH, Y. e SNEAD, L. L. Silicon carbide and its composites for nuclear applications and historical overview, ***Journal of Nuclear Materials***, 526, p. 1-24, 2019.

- [60] MINATO, K.; FUKUDA, K. e IKAWA, K. Strength of silicon-carbide coating layers of fuel particles for high temperature gas-cooled reactors, ***Journal of Nuclear Science and Technology***, 19, p. 69-77, 1982.
- [61] SANDIA NATIONAL LABORATORIES. SASSANI, D. e GELBARD, F. ***Performance assessment model for degradation of tristructural-isotropic (TRISO) coated particle spent fuel***, 2001, (SAND2019-1906C).
- [62] SAUDER, C. Ceramic matrix composites: nuclear applications. ***Ceramic Matrix Composites: Materials, Modeling and Technology***, p. 609-646, 2014.
- [63] QIU, B.; WANG, J.; DENG, Y.; WANG, M.; WU, Y. e QIU, S. Z. A review on thermohydraulic and mechanical-physical properties of SiC, FeCrAl and Ti_3SiC_2 for ATF cladding, ***Nuclear Engineering and Technology***, 52, p. 1-13, 2020.
- [64] SNEAD, LANCE L.; NOZAWA, T.; KATOH, Y.; BYUN, T. S.; KONDO, S. e PETTI, D. A. Handbook of SiC properties for fuel performance modeling, ***Journal of Nuclear Materials***, 371, p. 329–377, 2007.
- [65] OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. KOYANAGI, T.; KATOH, Y.; SINGH G. e SNEAD, M. ***SiC/SiC cladding materials properties handbook***, 2017, (ORNL/SPR-2017/385).
- [66] PARK, J. Y.; KIM, I. H.; JUNG, Y. I.; KIM, H. G.; PARK, D. J. e KIM, W. J. Long term corrosion behavior of CVD SiC in 360°C water and 400°C steam, ***Journal of Nuclear Materials***, 443, p. 603-607, 2013.
- [67] TERRANI, K. A.; YANG, Y.; KIM, Y. J.; REBAK, R.; MEYER III H. M. e GERCZAK, T. J. Hydrothermal corrosion of SiC in LWR coolant environments in the absence of irradiation, ***Journal of Nuclear Materials***, 465, p. 488-498, 2015.
- [68] KONDO et al. Effect of irradiation damage on hydrothermal corrosion of SiC, ***Journal of Nuclear Materials***, 464, p. 36–42, 2015.
- [69] OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. MORRIS, R. N.; BALDWIN, C. A.; ELLIS, R. J.; GIAQUINTO, J. M.; OTT, L. J.; PETERSON, J. L. e SCHMIDLIN, J. E. ***20 Gwd SiC clad fuel pin examination***, 2014, (ORNL/TM-2014/102).
- [70] KATOH, Y. et al. Continuous SiC fiber, CVI-SiC matrix composites for nuclear applications: properties and irradiation effects, ***Journal of Nuclear Materials***, 448, p. 448-476, 2014.
- [71] KATOH, Y.; NOZAWA, T.; SNEAD, L. L.; OZAWA, K. e TANIGAWA, H. Stability of SiC and its composites at high neutron fluence, ***Journal of Nuclear Materials***, 417, p. 400–405, 2011.
- [72] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. MAZZOCCOLI, J. P.; CHOI, J. e XU, P. ***Progress on the Westinghouse accident tolerant fuel programme, accident tolerant fuel concepts for light water reactors***, 2014, (IAEA-TECDOC-1797).
- [73] DECK, C. P.; GONDERMAN, S.; JACOBSEN, G. M.; SHEEDER, J.; OSWALD, S.; HAEFELFINGER, R.; SHAPOVALOV, K. S.; KHALIFA, H. E.;

- GAZZA, J.; LYONS, J.; XU, P.; KOYANAGI, T.; PETRIE, C. e BACK, C. A. Overview of General Atomics SiGATM SiC-SiC composite development for accident tolerant fuel, *Transactions of the American Nuclear Society*, 120, 2019.
- [74] XU, P.; LAHODA, E. J.; LYONS, J.; DECK, C. P. e KOHSE, G. E. Status update on Westinghouse SiC composite cladding fuel development, Setembro 2018, Praga, República Tcheca, *Proceedings of the TopFuel 2018*.
- [75] XU, P.; LAHODA, E.; JACKO, R.; BOYLAN F. e OELRICH, R. Status of Westinghouse SiC composite cladding fuel development, Setembro 2017, Jeju, Coréia do Sul, *Proceedings of the 2017 Water Reactor Fuel Performance Meeting*.
- [76] YUEH, K. e TERRANI, K. A. Silicon carbide composite for light water reactor fuel assembly applications, *Journal of Nuclear Materials*, 448, p. 380–388, 2014.
- [77] SINGH, G.; GORTON, J.; SCHAPPEL, D.; BROWN, N. R.; KATOH, Y.; WIRTH, B. D. e TERRANI, K. A. Deformation analysis of SiC-SiC channel box for BWR applications, *Journal of Nuclear Materials*, 513, p. 71-85, 2019.
- [78] OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. KATOH, Y. e TERRANI, K. A. *Systematic technology evaluation program for SiC/SiC composite-based accident-tolerant LWR fuel cladding and core structures*, 2015, (ORNL/TM-2015/454).
- [79] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Development status of metallic, dispersion and non-oxide advanced and alternative fuels for power and research reactors*, 2003, (IAEA-TECDOC-1374).
- [80] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Advances in fuel pellet technology for improved performance at high burnup*, 1996, (IAEA-TECDOC-1036).
- [81] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. *Advanced fuel pellet materials and fuel rod design for water cooled reactors*, 2009, (IAEA-TECDOC-1654).
- [82] KILLEEN, J. C. Fission gas release and swelling in UO₂ doped with Cr₂O₃, *Journal of Nuclear Materials*, 88, p. 177-184, 1980.
- [83] AMATO, I.; COLUMBO, R. L. e BALZARI, A. P. Grain growth in pure and titania-doped uranium dioxide, *Journal of Nuclear Materials*, 18, p. 252-260, 1966.
- [84] BOURGEOIS, L.; DEHAUDT, P.; LEMAIGNAN, C. e HAMMOU, A. Factors governing microstructure development of Cr₂O₃-doped UO₂ during sintering, *Journal of Nuclear Material*, 297, p. 313–326, 2001.
- [85] ASSIS, G. **Crescimento de grãos em pastilhas de UO₂ para uso como combustível nuclear de elevado desempenho**, Tese de Doutorado, (2007), Universidade Estadual de Campinas - UNICAMP.

- [86] COOPER, M. W. D.; PASTORE, G.; CHEC, Y.; MATTHEWS, C.; FORSLUND, A.; STANEK, C. R.; SHIRVAN, K.; TVERBERG, T.; GAMBLE, K. A.; MAYS, B. e ANDERSSON, D, A. Fission gas diffusion and release for Cr₂O₃-doped UO₂: from the atomic to the engineering scale, ***Journal of Nuclear Materials***, 545, p. 1-15, 2021.
- [87] ARBORELIUS, J.; BACKMAN, K.; HALLSTADIUS, L.; LIMBÄCK, M.; NILSSON, J.; REBENSORFF, B.; ZHOU, G.; KITANO, K.; LÖFSTRÖM, R. e RÖNNBERG, G. Advanced doped UO₂ pellets in LWR applications, ***Journal of Nuclear Science and Technology***, 43, p. 967-976, 2006.
- [88] DELAFOY, C.; BISCHOFF, J.; LAROCQUE, J.; ATTAL, P.; GERKEN, L. e NIMISHAKAVI, K. Benefits of FRAMATOME's e-ATF evolutionary solution: Cr-coated cladding with Cr₂O₃-doped fuel, Setembro 2018, Praga, República Tcheca, ***Proceedings of the TopFuel 2018***.
- [89] WESTINGHOUSE. HALLMAN Jr, L. H. ***Westinghouse advanced doped pellet technology (ADOPT™) fuel***, (WCAP-18482-NP Revision 0).
- [90] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. BACKMAN, K.; HALLSTADIUS, L. e RÖNNBERG, G. ***Westinghouse advanced doped pellet – characteristics and irradiation behaviour***, 2009, (IAEA-TECDOC-1654).
- [91] DELAFOY, C. e ARIMESCU, I. Developments in fuel design and manufacturing in order to enhance the PCI performance of AREVA NP's fuel, 2016, Lucca, Itália, ***Proceedings of the NEA Workshop on PCI in Water-Cooled Reactors***.
- [92] DEPARTMENT OF ENERGY. ***Development of LWR fuels with enhanced accident tolerance, EATF phase 2 final scientific technical report***, Setembro 2018, (FS1-0041211)
- [93] GARNIER, C.; MAILHE, P.; VESCO, P.; BERNARD, L. C.; DELAFOY, C. e GARCIA, P. The COPERNIC mechanical model and its application to doped fuel, 2004, Aix-en-Provence, França, ***Proceedings of Pellet-clad Interaction in Water Reactor Fuels Seminar***.
- [94] FRAMATOME. ***Incorporation of Chromia-doped fuel properties in AREVA approved method***, 2018, (ANP-10340NP-A Revision 0).
- [95] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. ***Advances in fuel pellet technology for improved performance at high burnup***, 1996, (IAEA-TECDOC-1036).
- [96] GENERAL ELECTRIC. ***GE-71 Fuel development closeout report***, 1973, (GEMP-600).
- [97] GENERAL ATOMIC. JOHNSON, D. E. e LOFFTUS, F. H. ***The fabrication and irradiation testing of dispersion-type BeO-UO₂***, 1962, (GA-3483).
- [98] GENERAL ATOMIC. DALE E. e MILLS, J. R. G. ***Irradiation behavior of BeO-UO₂ fuel as a function of fuel-particle size***, 1963, (GA-4138).

- [99] SANDIA NATIONAL LABORATORY. CLOVIS, D. P. E. **Operational overview, annular core research reactor**, 2016, (SAND2016-7720C).
- [100] LYOUSSI, A.; KAISER, K.; NOWLEN, K. C. e DePRIEST, K. R. Characterization of the Annular Core Research Reactor (ACRR) neutron radiography system imaging plane, 2016, **Proceeding of ISRD 15 – International Symposium on Reactor Dosimetry**.
- [101] ISHIMOTO, S.; HIRAI, M.; ITO, K. e KOREI, Y. Thermal conductivity of UO₂-BeO pellet, **Journal of Nuclear Science and Technology**, 33, p. 134-140, 1996.
- [102] KUBOCHITA, H. S. **Enhanced thermal conductivity oxide fuels: compatibility and novel fabrication techniques using BeO**, Dissertação de Mestrado, Escola de Engenharia Nuclear, Universidade de Purdue, Estados Unidos da América, 2004.
- [103] ZHOU, W. et. al. Enhanced thermal conductivity accident tolerant fuels for improved reactor safety – a comprehensive review, **Annals of Nuclear Energy**, 119, p. 66–86, 2018.
- [104] RUSSIN, Y.; SHAHVOROSTOV, Y.; McGRATH, M.; GAGARIN, A.; VOLKOV, B. e KUCHKOVSKI, A. Innovative fuel development in ULBA (Kazakhstan) and testing in the Halden reactor, Setembro 2011, Chengdu, China, **Proceeding of WRFPM, TopFuel 2011**.
- [105] AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS. **ASTM C708-16 : Standard Specification for Nuclear-Grade Beryllium Oxide Powder**.
- [106] KULIKOWSKA, T.; ANDRZEJEWSKI, K.; BRETSCHER, M. M.; **He-3 and Li-6 Poisoning of the MARIA Reactor Beryllium Matrix**, Report IAE-40/A, 1999.
- [107] MALDONADO, G. I.; **Reactivity Accountability Attributed to Beryllium Reflector Poisons in the High Flux Isotope Reactor**, ORNL/TM-2009/188, 1999.
- [108] AIR FORCE WEAPONS LABORATORY. Voss, S. S. **SNAP reactor overview, air force weapons laboratory**, 1984, (AFWL-TN-84-1 4).
- [109] PRATT & WHITNEY AIRCRAFT. DeCRESCENTE, M. A.; FREEED, M. S. e CAPLOW, S. D. **Uranium nitride fuel development SNAP-50, AEC research and development report**, 1965, (PWAC-488).
- [110] SNELGROVE, J. L.; HOFMAN, G. L.; TRYBUS, C. L. e Wiencek, T. C. Development of very-high-density fuels by the RERTR program, **Proceeding of 1996 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR)**.
- [111] STREIT, M. e INGOLD, F. Nitrides as a nuclear fuel option, **Journal of the European Ceramic Society**, 25, p. 2687–2692, 2005.
- [112] ORTEGA, L. H.; BLAMER, B. J.; EVANS, J. A. et al. Development of an accident-tolerant fuel composite from uranium mononitride (UN) and uranium

sesquisilicide (U_3Si_2) with increased uranium loading, *Journal of Nuclear Materials*, 471, p.116–121, 2016.

[113] DELL, R. e WHEELER, V. The ignition of uranium mononitride and uranium monocarbide in oxygen, *Journal of Nuclear Materials*, 21, p. 328–336, 1967.

[114] PALJEVIC, M. e DESPOTOVIC, Z. Oxidation of uranium mononitride, *Journal of Nuclear Materials*, 57, p. 253–257, 1975.

[115] WESTINGHOUSE ELECTRIC COMPANY.LAHODA, E. J. *Development of LWR fuels with enhanced accident tolerance*, 2015, (Technical report RT-TR-15-34).

[116] WHITE, J. T.; NELSON, A. T.; DUNWOODY, J. T.; BYLER, D. D.; SAFARIK, D. J. e McCLELLAN. K. J. Thermophysical properties of U_3Si_2 to 1773 K , *Journal of Nuclear Materials*, 464, p. 275-280, 2015.

[117] LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY. ZHANG, Y.; ANDERS, A. e RAGNAR, D. *A thermal conductivity model for U-Si compounds*, 2017, (LA-UR-16-27736).

[118] NUCLEAR REGULATORY COMMISSION. *Safety evaluation report related to the evaluation of low-enriched uranium silicide-aluminum dispersion fuel for use in non-power reactors*, 1988, (NUREG-1313).

[119] HOFMAN, G. L. e KIM, Y. S. Interdiffusion in U_3Si –Al, U_3Si_2 –Al, and USi –Al dispersion fuels during irradiation, *Journal of Nuclear Materials*, 410, p. 1-9, 2011.

[120] SNELGROVE, J. L.; HOFMAN, G. L.; TRYBUS, C. L. e WIENCEK, T. C. Development of very-high-density fuels by the RERTR program, Outubro, 1996, Seoul, C orea do Sul, *Proceeding of 19th International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR)*.

[121] KEISER Jr., D. D.; WACHS, D. M.; ROBINSON, A. B.; WILLIAMS, W. J.; LILLO, M.; WOOLSTENHULME, N. E.; MOORE, G. A.; JUE, J. F. e HOFMAN, G. L. The use of U_3Si_2 /Al dispersion fuel for high power research reactors, *Journal of Nuclear Materials*, 528, p.1-18, 2020.

[122] WOOD, E. S.; WHITE, J. T.; GROTE, C. J. e NELSON, A. T. U_3Si_2 behavior in H_2O : Part I, flowing steam and the effect of hydrogen, *Journal of Nuclear Materials*, 501, p. 404-412, 2018.

[123] WOOD, E. S.; WHITE, J. T. e NELSON, A. T. The effect of aluminum additions on the oxidation resistance of U_3Si_2 , *Journal of Nuclear Materials*, 500, p. 84-90, 2017.

[124] WOOD, E. S.; MOCZYGEMBA, C.; ROBLES, G.; ACOSTA, Z.; BRIGHAM, B. A.; GROTE, C. J.; METZGER, K. E. e CAI, L. High temperature steam oxidation dynamics of U_3Si_2 with alloying additions: Al, Cr, and Y, *Journal of Nuclear Materials*, 533, p. 1-11, 2020.

- [125] NELSON, A. T.; MIGDISOV, A.; WOOD, E. S. e GROTE, C. J. U_3Si_2 behavior in H_2O environments: Part II, pressurized water with controlled redox chemistry, *Journal of Nuclear Materials*, 500, p. 81-91, 2018.
- [126] FINLAY, M. R.; HOFMAN, G. L. e SNELGROVE, J. L. Irradiation behaviour of uranium silicide compounds, *Journal of Nuclear Materials*, 325, p. 118–128, 2004.
- [127] IDAHO NATIONAL LABORATORY. CAPPIA, F. *Rodlet non-destructive examinations and sectioning diagram of Westinghouse-led ATF concepts U_3Si_2 and U_3Si_2-UN* , 2019, (INL EXT-19-56239 Revision 0).
- [128] ARGONNE NATIONAL LABORATORY. HOFMAN, G. L.; BILLONE, M. C.; KOENIG, J. F.; KRAMER, J. M.; LAMBERT, J. D. B.; LEIBOWITZ, L.; ORECHWA, Y.; PEDERSEN, D. R.; PORTER, D. L.; TSAI H. e WRIGHT, A. E. *Metallic fuels handbook*, 2019, (ANL-NSE-3).
- [129] CARMACK, W. J.; PORTER, D. L.; CHANG, Y. I.; HAYES, S. L.; MEYER, M.K.; BURKES, D. E.; LEE, C. B.; MIZUNO, T.; DELAGE, F. e SOMERS, J. Metallic fuels for advanced reactors, *Journal of Nuclear Materials*, 392, (2009) p. 139–150, 2009.
- [130] CRAWFORD, D. C.; PORTER, D. L. e HAYES, S. L. Fuels for sodium-cooled fast reactors: US perspective, *Journal of Nuclear Materials*, 371, p. 202–231, 2007.
- [131] MEYER et al. Irradiation performance of U-Mo monolithic fuel, *Nuclear Engineering and Technology*, 46, p. 169-182, 2014.

3 METODOLOGIA DE AVALIAÇÃO DO DESEMPENHO DE COMBUSTÍVEIS ATF

Neste capítulo descreve-se o desenvolvimento da metodologia utilizada para as avaliações e análises das diversas opções de combustíveis tolerantes a falha.

A partir do levantamento de informações, dados e o grau de maturidade dos potenciais candidatos a combustíveis tolerantes a falha serão realizadas as análises e avaliações de neutrônica e do desempenho do combustível por meio de simulações computacionais.

As análises e avaliações de neutrônica serão efetuadas utilizando o programa computacional SERPENT [1] baseado no método de Monte Carlo e consistem basicamente em obter, comparar e analisar diversos parâmetros neutrônicos envolvidos no projeto de um núcleo de reator considerando diferentes combinações de combustível e revestimento.

Os principais parâmetros neutrônicos considerados no projeto do núcleo de reator são: a reatividade, coeficientes de reatividade, o comportamento com a queima, razões de moderação e conversão, e o espectro de nêutrons do sistema.

As análises e avaliações para as diferentes combinações de combustível e revestimento podem subsidiar a escolha do projeto de núcleos de reatores com combustíveis tolerantes a falha, identificar as pesquisas e desenvolvimento futuros necessários para elevar o grau de maturidade de algumas opções de combustíveis.

As análises e avaliações de desempenho do combustível, da mesma forma que as análises de neutrônica serão realizadas por meio de simulações com um programa computacional, no caso o TRANSURANUS [2].

O levantamento de dados e informações das propriedades térmicas e mecânicas do revestimento e do combustível, assim como a verificação do grau de maturidade das diferentes opções efetuadas no capítulo anterior (CAPÍTULO 2), indicam que a liga de zircônio com a camada protetiva e a liga de FeCrAl são

as mais promissoras a curto e médio prazo para substituir o atual revestimento dos combustíveis dos reatores LWR. Para a parte do combustível, a opção mais promissora é a atual pastilha de UO_2 com a presença de óxidos de Cr_2O_3 ou Al_2O_3 .

No revestimento, a presença da camada protetiva no atual revestimento à base de zircônio não altera significativamente as propriedades térmicas e mecânicas [3-8]. Apesar do grau de maturidade elevado e adoção por partes dos principais fabricantes de combustíveis, esta opção apresenta apenas vantagens limitadas quanto aos aspectos relacionados com desempenho em condições acidentais [6, 9]. Desta forma, neste trabalho, optou-se por avaliar e verificar o desempenho do combustível com o revestimento constituído de liga FeCrAl, que apresenta propriedades térmicas e mecânicas superiores à liga à base de zircônio, além de apresentar melhor desempenho em condição de acidentes quando comparado com à liga à base de zircônio com a formação de camadas protetivas de óxidos de cromo e alumínio. Adicionalmente, os principais dados e propriedades térmicas e mecânicas da liga de FeCrAl encontram-se disponíveis em literatura aberta [10-13].

Anteriormente, as fases de análises e avaliações de desempenho, as verificações dos programas computacionais quanto a sua funcionalidade e capacidade constituem numa etapa essencial deste trabalho. Destaca-se que originalmente a maioria das ferramentas computacionais [14-22] dedicadas para a análise de desempenho de combustível foram desenvolvidas para o sistema combustível formado pelo revestimento à base de liga de zircônio e o combustível de UO_2 . Por outro lado, as ferramentas computacionais desenvolvidas para as análises neutrônicas dependem basicamente da disponibilidade das seções de choque dos materiais constituintes dos combustíveis tolerantes a falha.

Desta forma, as avaliações iniciais objetivam não somente verificar a funcionalidade, a capacidade e os recursos disponíveis, mas também identificar a necessidade de modificações para as avaliações de desempenho dos combustíveis tolerantes a falhas.

Os principais parâmetros do combustível associados ao desempenho são também utilizados nas análises voltadas para o projeto e o licenciamento do

combustível. Dentre estes parâmetros destacam-se: as temperaturas do combustível e revestimento, evolução da pressão interna da vareta, tensões e deformações no revestimento, evolução do vazio (*gap*) entre o combustível e o revestimento, o comportamento do revestimento em condições de acidente (oxidação as altas temperaturas, inchamento e rompimento). A avaliação do programa computacional e as simulações de desempenho requerem dados de experimentos específicos, que permitam verificar, avaliar e comparar os parâmetros de desempenho de interesse.

A seguir são descritos os experimentos selecionados especificamente para a análise e avaliação do desempenho dos combustíveis tolerantes a falha.

3.1 Experimentos e Casos Selecionados para Análise do Desempenho dos Combustíveis ATF

Após o acidente nuclear de Fukushima como parte do esforço e cooperação internacional nas atividades de pesquisa e desenvolvimento dos combustíveis tolerantes a falha foram criadas pela Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) projetos de pesquisas conhecido pela sigla CRP (*Coordinate Research Project*), que objetivaram avaliar as ferramentas computacionais existentes de desempenho de combustível, as limitações e possibilidade de utilização nos combustíveis ATF, assim como levantar dados e propriedades dos materiais por meio de experimentos específicos. Normalmente, um determinado projeto de pesquisa (CRP) é criado no âmbito da AIEA quando algum tópico relacionado com segurança torna-se relevante para os países membros ou quando a própria AIEA considera importante antecipar estudos para a busca de soluções de potenciais problemas associado à segurança.

O primeiro CRP, denominado de FUMAC (*Fuel Modelling Accident*) [23] foi criado em 2014 no âmbito do Plano de Ação da AIEA sobre Segurança Nuclear e também em atendimento à recomendação do Grupo de Trabalho Técnico da AIEA sobre Desempenho e Tecnologia de Combustíveis (TWGFPT- *Technical Working Group on Fuel Performance and Technology*) em 2012.

Este projeto objetivou: analisar e compreender melhor o comportamento do combustível em condições de acidente, com foco no acidente de perda de refrigerante (LOCA), principalmente na fase inicial do acidente de Fukushima, reunir resultados de experimentos para permitir a simulação de acidentes, identificar as boas práticas na aplicação de modelos físicos para o combustível em condições de acidente, aperfeiçoar as capacidades preditivas destes modelos e avaliar os programas computacionais.

Posteriormente, o segundo CRP denominado de ACTOF [24] foi criado em julho de 2015 com o escopo e objetivo de obter dados de materiais do revestimento de combustíveis tolerantes a falha por meio de diversos experimentos, desenvolver a capacidade de modelagem para prever o comportamento de combustíveis tolerantes a falha nas condições normais e acidentais, e evidenciar objetivamente as vantagens destes materiais de revestimento em condições de acidentes.

Normalmente, no processo de licenciamento de combustíveis são exigidos diversos testes e avaliações para a comprovação do desempenho [25], assim como o atendimento aos requisitos de segurança. Dessa forma, o projeto ACTOF concentrou as atividades em duas áreas: obtenção de dados experimentais de forma qualificada dos materiais candidatos (*Round Robin Test*) e formulação de modelos para os novos materiais visando a implementação nos programas de desempenho de combustível.

Os projetos FUMAC e ACTOF são complementares no esforço de desenvolvimento e obtenção de ferramentas computacionais confiáveis para a análise de combustíveis ATF. Em 2021, a AIEA formalizou a criação do novo CRP denominado de ATF-TS, igualmente voltado para combustíveis ATF visando dar continuidade às atividades desenvolvidas nos projetos anteriores.

Os experimentos selecionados para a avaliação dos combustíveis ATF deste trabalho serão baseados nos experimentos dos dois CRP's da AIEA.

3.1.1 Experimento PUZRY

O experimento denominado de PUZRY [26] consiste de uma série experimental realizada na Academia Húngara de Ciências, Centro de Pesquisa Energética (MTA-EK), para estudar o comportamento mecânico (inchamento e ruptura) do revestimento Zircaloy-4 submetido a diversos transientes de pressão em condições de altas temperaturas similares às condições do acidente de perda de refrigerante (LOCA). Em particular, esta classe de experimento é denominada de efeito separado, uma vez que objetiva investigar apenas a deformação e a ruptura do revestimento para condições bem definidas de temperatura e taxa de pressurização.

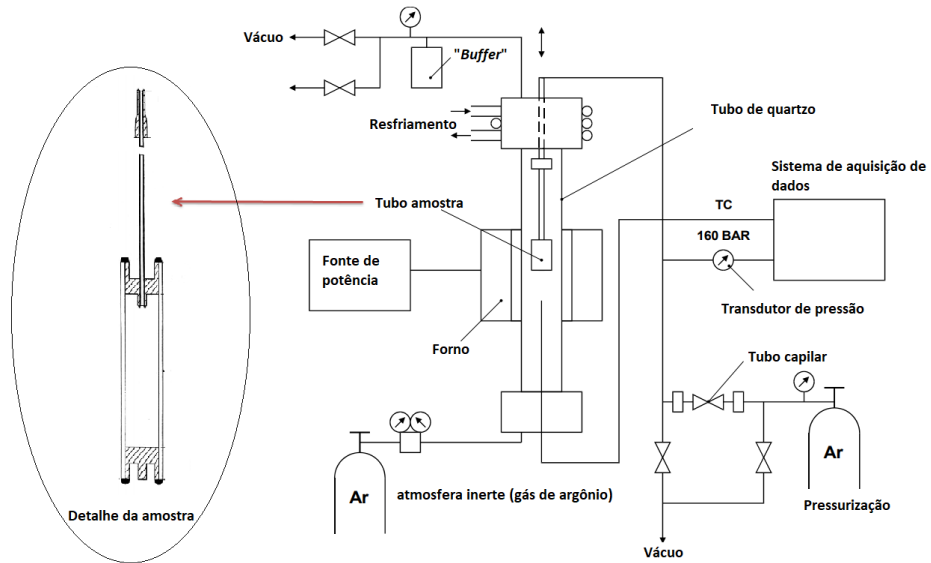
No experimento, amostras de tubos (31 casos) de Zircaloy-4 foram inseridas em um forno de resistência proporcionando condições isotérmicas na faixa de temperatura de 973 a 1473 K (700 °C a 1200 °C). Um determinado tubo de teste foi submetido a uma taxa de pressurização específica até a ocorrência da ruptura no revestimento. Essa sequência experimental é repetida para os demais tubos com diferentes temperaturas e taxas de pressurização.

Inicialmente, um tubo de Zircaloy-4 é inserido em um forno elétrico preenchido com gás argônio inerte e aquecido. A pressão do gás inerte é mantida constante em 0,1 MPa. Após um período de pré-aquecimento (aproximadamente 1000 segundos), cada tubo é pressurizado a uma taxa constante (entre $7,0 \times 10^{-4}$ e $2,6 \times 10^{-2}$ MPa/s) cobrindo um intervalo de pressão de 0 a 10,6 MPa.

Os diâmetros interno e externo dos tubos de Zircaloy-4 utilizados foram de 9,3 e 10,75 mm, respectivamente. As amostras de tubos são fechadas com tampões terminais de Zircaloy-4 soldados ao revestimento.

A Figura 3.1, ilustra o diagrama esquemático do aparato experimental utilizado para os ensaios dos tubos. As Tabelas 3.1 e 3.2 apresentam os principais dados do experimento e os resultados obtidos, respectivamente.

Figura 3.1 – Diagrama esquemático da seção de teste de tubos.



Fonte: Adaptado da referência [26].

Tabela 3.1 - Dados do experimento PUZRY [26].

Corpo de prova	
Revestimento	Zircaloy-4
Raio interno (mm)	4,65
Espessura (μm)	725
Comprimento (mm)	50
Camada de ZrO_2 (μm)	0
Tampões de fechamento	Zircaloy-4
Condições experimentais	
Intervalo de temperatura ($^{\circ}\text{C}$)	700-1200
Condição de aquecimento	Ensaio Isotérmico
Intervalo de pressão (bar)	0-160
Taxa de pressurização (bar/s)	0,005 – 0,263
Atmosfera	Gás de argônio
Instrumentação	Transdutor de pressão e termopares
Taxa de aquisição de dados (dados/s)	10
Número de corpo de provas	31

Tabela 3.2 – Resultados experimentais do experimento PUZRY [26].

Caso	Temperatura (°C)	Taxa de pressão dp/dt (bar/s)	Pressão (bar)*	Tempo de ruptura(s)
1	1.201,3	0,0064	3,40	531,9
2	1.154,4	0,0065	3,70	566,0
3	1.102,1	0,0063	3,83	607,8
4	1.053,2	0,0062	4,38	705,3
5	997,9	0,0062	5,02	810,7
6	950,5	0,0048	8,73	1.805,4
7	952,9	0,0759	15,80	208,2
8	1.001,0	0,0763	8,90	116,7
9	1.051,6	0,0712	7,45	104,7
10	1.102,6	0,0710	6,53	92,0
11	1.149,8	0,0717	6,03	84,1
12	1.197,7	0,0723	5,78	80,0
13	698,8	0,0314	88,83	2.828,0
14	702,2	0,1190	106,16	892,4
15	802,1	0,1173	63,18	538,4
16	750,3	0,1224	83,06	678,5
17	850,1	0,1162	39,79	342,3
18	900,2	0,1151	26,89	233,7
19	900,6	0,0243	19,51	801,3
20	849,7	0,0225	27,22	1.211,1
21	800,8	0,0168	45,30	2.693,3
22	749,9	0,0148	60,80	4.105,1
23	748,6	0,0717	72,58	1.011,8
24	698,8	0,0179	80,75	4.522,2
25	698,3	0,0173	79,78	4.623,5
26	698,4	0,1193	106,05	888,8
27	801,4	0,0248	48,18	1.946,0
28	800,0	0,0425	52,94	1.244,7
29	799,9	0,0720	57,95	804,5
30	800,4	0,2630	72,51	275,7
31	800,4	0,1961	67,88	346,2

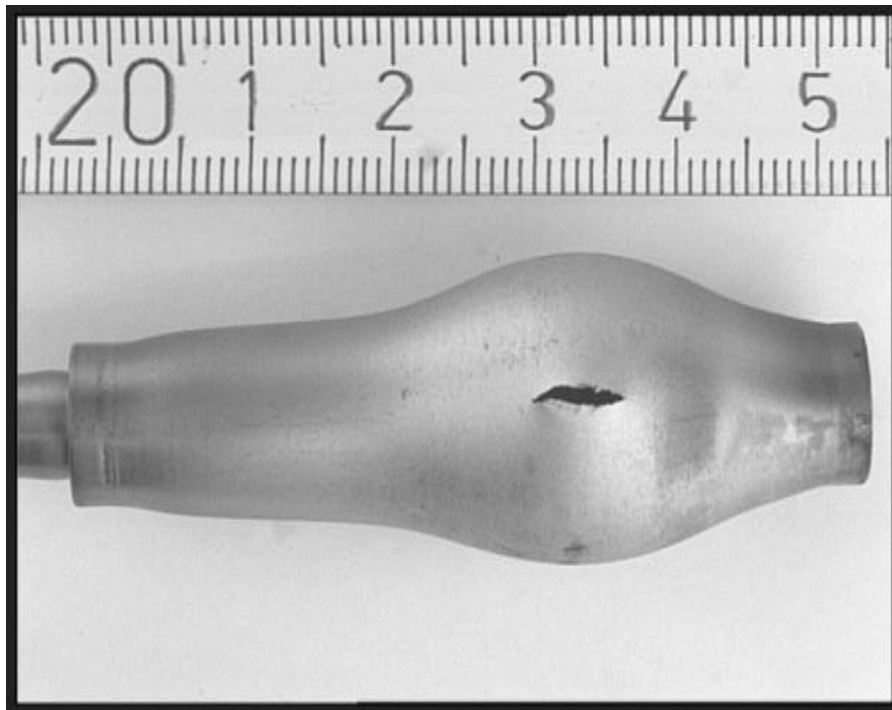
*valor da pressão no momento da ruptura

Os tempos de ruptura dos tubos são sempre maiores para uma mesma temperatura quando a taxa de aumento da pressão é menor, conforme ilustrado nos resultados experimentais dos casos 13 e 24, assim como nos casos 30 e 31.

Esta observação também é válida para os casos em que as temperaturas são muito próximas (diferença da ordem de 1°C), conforme os casos: 3 e 10; 6 e 7; 18 e 19; 17 e 20; 25 e 26; 16 e 22. Portanto, os resultados experimentais evidenciam que a ruptura do tubo é sensível à taxa de pressurização. O caso com a temperatura mais alta não representa necessariamente a situação em que o tempo de ruptura é menor. O menor tempo de ruptura (80,0 segundos) corresponde ao caso 12 na condição de maior temperatura entre os 31 casos do experimento.

A Figura 3.2 ilustra o tubo do caso 10 após atingir a ruptura no revestimento. Neste caso, a temperatura foi de $1.102,6^{\circ}\text{C}$ e a pressão de ruptura 6,53 bar.

Figura 3.2 – Fotografia do tubo após o ensaio de pressurização do caso 10 do experimento PUZRY.

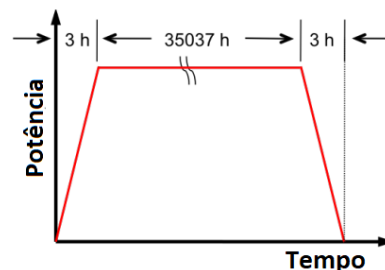


Fonte: Extraído da Referência [26].

3.1.2 Experimento Teórico do INL (*Idaho National Laboratory*)

O experimento teórico [24] proposto no projeto ACTOF da Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA) consistiu de um caso idealizado formado por uma vareta de tamanho reduzido contendo apenas 10 pastilhas típica de reatores PWR, com o revestimento de Zircaloy-4 irradiado na densidade linear de potência de 25 kW/m durante aproximadamente 4 anos (35037 horas), em um perfil de potência plano, com rampas lineares no início e final da irradiação com duração de 3 horas, conforme a ilustração da Figura 3.3. Destaca-se que o valor da densidade de potência utilizado neste caso é superior à média das densidades lineares de potência de reatores tipo PWR, visando maximizar possíveis efeitos da interação entre a pastilha e o revestimento. A Tabela 3.3 apresenta os dados necessários para simulação do caso estacionário.

Figura 3.3 – Perfil de potência adotada no *benchmark* numérico do CRP-ACTOF [23].



Fonte: Adaptado da referência [23].

Este experimento numérico de referência (*benchmark*) foi proposto no projeto ACTOF com o objetivo de comparar o desempenho dos revestimentos Zircaloy-4 e da liga FeCrAl na condição estacionária com acúmulo de queima. Para possibilitar a comparação dos programas computacionais de desempenho de combustível, estes deveriam possuir a liga FeCrAl como uma opção de revestimento ou implementar as propriedades deste material nos programas.

Os seguintes parâmetros do combustível seriam avaliados: temperatura do combustível, a espessura do vazio (*gap*) entre o revestimento e a pastilha, a espessura da camada de óxido e a pressão interna da vareta ao longo da queima.

Tabela 3.3 - Dados do *benchmark* numérico do CRP-ACTOF [24].

Parâmetros	Zircaloy-4	FeCrAl
Número de pastilhas	10	
Altura da pastilha (mm)	11,86	
Diâmetro da pastilha (mm)	8,19	8,57
Densidade inicial do combustível (%DT)	95	
Densidade inicial do combustível (g/cm ³)	10,431	
Enriquecimento do combustível (%)	5	
Folga entre a pastilha e o revestimento (μm)	80	
Gás de preenchimento da vareta	He	
Pressão inicial do gás (MPa)	2	
Diâmetro interno do revestimento (mm)	8,35	8,73
Espessura do revestimento (mm)	0,575	0,385
Diâmetro externo do revestimento (mm)	9,5	9,5
Altura da região do <i>plenum</i> superior (mm)	26	
Volume livre (cm ³)	1,725	1,874
Comprimento total da vareta (mm)	150	
Pressão do refrigerante (MPa)	15,5	
Distância centro a centro entre varetas (mm)	12,6	

Destes dois experimentos selecionados, o primeiro (PUZRY) permite verificar e avaliar o desempenho mecânico do revestimento nas condições típicas do acidente de LOCA e o segundo experimento permite verificar o desempenho conjunto do combustível e do revestimento em uma condição estacionária com acúmulo de queima, onde os fenômenos associados ao combustível afetam o revestimento.

3.2 Avaliação do Desempenho dos Combustíveis ATF

A avaliação do desempenho dos principais candidatos a combustível ATF será realizada por meio de simulações computacionais utilizando o programa TRANSURANUS [2] nas condições: estacionário, transiente operacional e acidente. Conforme mencionado anteriormente, os principais programas de simulação do desempenho de combustíveis foram desenvolvidos originalmente para o sistema combustível formado de pastilhas de UO_2 com revestimento à base da liga de zircônio. Posteriormente, incorporou-se a possibilidade de simular outros combustíveis como óxido misto de urânio e plutônio, assim como novos venenos queimáveis (exemplo: $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$). Desta forma, a utilização para o sistema combustível com diferentes materiais requer modificações, adequações utilizando os novos dados, propriedades e correlação destes materiais, quando disponíveis. Assim como as verificações e validações a serem conduzidas para a avaliação das modificações e adequações implementadas.

O processo de modificação e adaptação dos programas computacionais requer a compreensão dos fenômenos representados na forma de modelos, funções e correlações empíricas ou semi-empíricas, as simplificações e as limitações dos modelos, os algoritmos e as estruturas lógicas de programação de cada programa. Além disso, requer a obtenção dos dados, propriedades e correlações dos novos materiais, e estes dados nem sempre estão disponíveis de forma aberta, ou podem requerer adequações, complementações ou mudanças para compatibilizar com a representação do fenômeno adotado ou com a estrutura lógica do programa.

A Seção (3.2.1) descreve as principais atividades associadas com as modificações e as implementações realizadas no programa TRANSURANUS visando a avaliação de desempenho do revestimento de FeCrAl.

3.2.1 Modificações no programa TRANSURANUS para combustível ATF

O programa computacional TRANSURANUS [2] foi desenvolvido para análise térmica e mecânica de varetas de combustível pelo *Institute for Transuranium Elements* (ITU). Este programa é estruturado com diversos modelos físicos e permite que novos modelos possam ser incorporados sem a necessidade de mudanças significativas ou a criação de novos módulos.

Além da flexibilidade para modificações, o programa pode simular diversos cenários incluindo a condição de acidente da base de projeto. O programa TRANSURANUS, diferentemente dos programas FRAPCON (estacionário) [14] e FRAPTRAN [15] (transientes e acidentes) pode simular de forma completa todo o cenário de um transiente, desde a condição estacionária até o acidente. A escala de tempo dos problemas a serem tratados pode variar de décimo de segundos (típicos de cenários de acidente) até anos (acúmulo de queima). O programa possui um banco de dados de materiais abrangente para combustíveis em forma de óxido, óxido misto, carbeto e nitreto, os revestimentos à base de liga de zircônio (Zircaloy-2, Zircaloy-4 e liga de ZrNb conhecida comercialmente pela designação E-110), para os revestimentos de aço inoxidável (AISI 316 e T91), e diferentes materiais de refrigerante. Além disso, possui a funcionalidade para executar análise de sensibilidade por amostragem de diversos parâmetros do combustível pelo método de Monte Carlo.

O programa TRANSURANUS foi extensivamente verificado e avaliado com diversos experimentos (mais de 400) de irradiação de combustível dos programas OECD Halden Reactor Project IFPE (*International Fuel Performance Experiments*) [25] e intercomparado com outros programas de desempenho de combustível. Além disso, é utilizado por um grande número de instituições de pesquisa e desenvolvimento, operadores de reatores de potência, assim como para análise de segurança por órgãos licenciadores de diversos países europeus [27].

De maneira semelhante a outros programas de desempenho de combustível, o TRANSURANUS depende dos dados e propriedades existentes para reproduzir de forma mais precisa os diversos fenômenos que ocorrem em

condição de operação normal, transientes e acidentes. Nesse sentido, algumas limitações são destacadas abaixo:

- não executa uma análise termo-hidráulica completa de subcanal. A temperatura do refrigerante e o coeficiente de transferência de calor devem ser fornecidos como condições de contorno obtidas por simulações de programas dedicados à análise termo-hidráulicos; e
- a simulação de eventos pós-LOCA é limitada pelo intervalo de validade das correlações e funções de propriedade do material. Em geral, os modelos são validados até a temperatura de 1200 °C e basicamente para condições de acidente da base de projeto (DBA - *Design Basic Accident*).

Neste trabalho são utilizadas duas versões do programa TRANSURANUS atualmente disponíveis: a versão 2017 denominada de **v1m1j17** e a versão 2019 designada como **v1m3j19**. A versão 2017 (**v1m1j17**) original foi disponibilizada pelos desenvolvedores durante a participação no projeto FUMAC no início do desenvolvimento desta Tese. Esta versão originalmente não possuía liga de FeCrAl dentre as opções de revestimento. Posteriormente, foi disponibilizada a versão 2019 (**v1m3j19**) na qual as propriedades termo-mecânicas da liga de FeCrAl foram implementadas pelos desenvolvedores (*ITU- Institute for Transuranium Elements*).

Inicialmente, para viabilizar a utilização da versão 2017 (**v1m1j17**) com o revestimento de FeCrAl serão implementados os dados, propriedades e correlações do FeCrAl disponíveis em literatura aberta diretamente no código fonte. Posteriormente, a versão 2019 será avaliada com a opção de revestimento de FeCrAl já implementada pelos desenvolvedores.

Na estratégia a ser adotada para a implementação dos dados do revestimento de FeCrAl considera-se a existência de módulos associados aos dados e modelos das ligas de ferro (AISI 316 e T91). Esta informação e a similaridade da liga de FeCrAl poderá subsidiar a inclusão das propriedades termo-mecânicas da liga FeCrAl, sem necessariamente incluir novos módulos ou funções que alteram a estrutura original do programa.

A Tabela 3.4 apresenta os módulos que foram modificados para a implementação das propriedades termo-mecânicas da liga FeCrAl. Ressalta-se que, esta mesma abordagem foi utilizada anteriormente para a implementação e utilização do revestimento de aço inoxidável AISI-348 no programa TRANSURANUS versão 2017 (**v1m1j17**) durante a participação no projeto CRP-ACTOF.

Tabela 3.4 – Módulos do programa TRANSURANUS versão 2017 (**v1m1j17**) alteradas para a inclusão da liga de FeCrAl como opção de revestimento.

Módulo	Propriedadetermo-mecânico
ELOC	Módulo de elasticidade
NUELOC	Coeficiente de Poisson
SWELOC	Inchamento
THSTRN	Deformação térmica
LAMBDA	Condutividade térmica
ETACR	Taxa de fluência
SIGSS	Tensão de escoamento
ETAPRR	Deformação de fratura
SIGMAB	Tensão de ruptura
CP	Calor específico
FH	Calor de fusão
EMISS	Emissividade
SOLIMT	'Solidus' e 'liquidus'
RO	Densidade

A estratégia adotada visou não alterar a estrutura lógica de programação, uma vez que o programa TRANSURANUS foi originalmente desenvolvido estruturado em diversos módulos dedicados às propriedades de materiais e correlações, de forma a permitir a inclusão de novos materiais e as respectivas propriedades sem a necessidade de criar e incorporar novos módulos ao programa.

Os dados termo-mecânicos (Tabela 3.4) da liga de ferro (FeCrAl) implementados neste trabalho foram obtidos do documento: *Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Power Production Applications* [11].

3.2.2 Simulações de Desempenho dos Combustíveis ATF

Descreve-se na Subseção 3.2.2.1 de forma detalhada as considerações e premissas adotadas na elaboração dos dados de entradas das simulações realizadas (PUZRY e o *benchmark* INL) e os respectivos resultados e análises.

3.2.2.1 Simulação e avaliação do experimento PUZRY

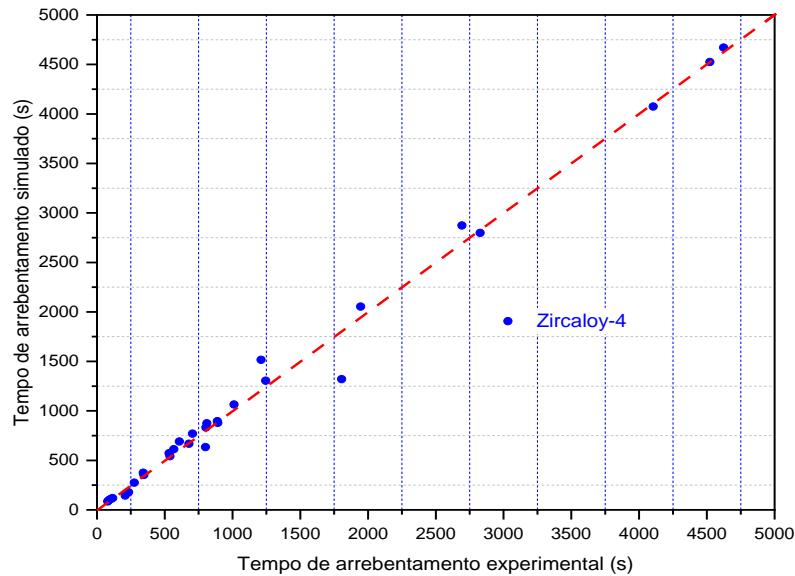
Nas simulações para a avaliação do experimento PUZRY serão utilizadas as duas versões (**v1m3j19** e **v1m3j17**) do programa TRANSURANUS. Inicialmente, a versão **v1m3j17** será modificada para considerar o FeCrAl como revestimento. Neste trabalho, as simulações das varetas ou tubos do experimento PUZRY serão realizadas considerando dois revestimentos distintos: Zircaloy-4 e a liga FeCrAl.

A simulação para o revestimento de Zircaloy-4 visa verificar o desempenho do programa TRANSURANUS e possíveis discrepâncias em relação aos resultados experimentais. Para tanto, inicialmente serão elaborados os dados de entrada dos 31 casos com as informações dimensionais da vareta apresentados na Tabela 3.1 e as condições de contorno (temperaturas e gradientes de pressão) da Tabela 3.2.

A Figura 3.4 ilustra os valores do tempo de ruptura dos 31 casos obtidos com a versão 2019 (**v1m3j19**), de forma geral observa-se boa concordância com os valores experimentais.

Os resultados obtidos nas simulações são apresentados com a reta (ângulo de 45°) com o intuito de ilustrar a dispersão dos valores obtidos quando comparados com os valores experimentais. O gráfico da Figura 3.4 ilustra pouca dispersão em relação à reta (ângulo de 45°), indicando boa concordância com os valores experimentais. As diferenças residem em apenas seis casos (6, 7, 10, 18, 19 e 20).

Figura 3.4 – Resultados obtidos com o programa TRANSURANUS versão 2019 (**v1m3j19**) para o revestimento de Zircaloy-4.



Fonte: Autor da Tese.

Alguns casos discrepantes possuem a temperatura do experimento próxima à temperatura de transição de fase alfa (α) para beta (β) do Zircaloy-4 (~ 870 °C), evidenciando a necessidade de ajustes ou correções nas correlações do Zircaloy-4 para esta faixa de temperatura. Os valores posicionados na parte superior da reta (ângulo de 45°) indicam tendência de super-estimativa e os valores abaixo indicam sub-estimativa em relação ao valor experimental.

Baseado nos resultados das simulações dos 31 casos com o revestimento de Zircaloy-4, conclui-se inicialmente que o programa TRANSURANUS versão 2019 (**v1m3j19**) representa satisfatoriamente o fenômeno de arrebentamento (*burst*) associado ao acidente de perda de refrigerante (LOCA). Destaca-se que a versão 2017 (**v1m3j17**) também foi avaliada para os 31 casos com o revestimento de Zircaloy-4. Os resultados obtidos apresentaram diferenças inferiores à 0,10% com a versão 2019.

Convém ressaltar que o experimento PUZRY é denominado de efeito separado (*separate effect*), pois visa verificar o desempenho mecânico do revestimento submetido a uma condição similar de um acidente de perda de refrigerante (LOCA), excetuando-se pela ausência do combustível e do ambiente para a reação de oxidação em altas temperaturas, uma vez que este experimento foi realizado em atmosfera inerte contendo gás argônio. Esta condição experimental permite avaliar o desempenho mecânico do revestimento isoladamente submetido a diferentes taxas de pressurização (0,0048 até 0,2630 bar/segundo) e diferentes temperaturas (698,3 até 1201,3 °C).

Após as verificações preliminares dos recursos e modelos do programa TRANSURANUS utilizando o revestimento de Zircaloy-4, procedeu-se à avaliação da liga FeCrAl como revestimento, inicialmente utilizando a versão 2017 (**v1m1j17**) modificada com a implementação das propriedades termo-mecânicas apresentadas na Tabela 3.4. Os dados termo-mecânicos da liga FeCrAl foram obtidos do *Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Power Production Applications* [11].

As simulações dos 31 casos com a versão 2017 (**v1m1j17**) modificada apresentaram resultados qualitativamente concordantes com os resultados obtidos com o revestimento de Zircaloy-4, conforme apresentado na quinta coluna da Tabela 3.5. A necessidade de avaliação das modificações implementadas e os resultados obtidos com a versão 2017 (**v1m1j17**) modificada motivou realizar a mesma simulação com a versão 2019 (**v1m3j19**) original, uma vez que esta versão já possuía o FeCrAl como opção de revestimento. A comparação entre os resultados permitiria a avaliação de forma independente do procedimento de implementação dos novos dados, correlações e modelos do FeCrAl da versão 2017 (**v1m3j17**).

Para as verificações, utilizou-se os mesmos dados de entrada dos 31 casos, com exceção do identificador do revestimento (ModClad(J)) adotado na versão 2019 (**v1m3j19**).

As simulações com a versão 2019 (**v1m3j19**) apresentaram problemas de não convergência para a maioria (23) dos casos, conforme a sétima coluna (FeCrAl versão original) da Tabela 3.5. Os casos (8) que atingiram a

convergência notadamente são somente os casos com temperatura superior a 1050 °C. Apesar dos oito casos (1, 2, 3, 4, 9, 10, 11 e 12) da Tabela 3.5 terem atingido a convergência nas simulações, os resultados dos tempos de ruptura são bastante discordantes. Os casos 3 e 4 apresentam os valores da taxa de pressurização muito semelhantes ($dp_3 = 0,0063$ e $dp_4 = 0,0062$) e temperaturas próximas ($T_3 = 1.102,1$ °C e $T_4 = 1.053,2$ °C) com diferença de aproximadamente 50 °C, no entanto os tempos de rupturas são bastante díspares: $T_{3burst} = 273,60$ segundos e $T_{4burst} = 8.802,00$, diferindo mais de 30 vezes. Além disso, quando comparado com os valores dos tempos de ruptura obtidos com a versão 2017 (**v1m3j17**) modificada, estes são bastante discrepantes. Essas simulações indicam que as propriedades, modelos e correlações do FeCrAl existente na versão 2019 (**v1m3j19**) não estão adequadas.

A constatação da ausência de convergência na versão 2019 (**v1m3j19**) impossibilitou a comparação e a verificação da versão 2017 (**v1m3j17**) modificada de forma independente.

Com o intuito de viabilizar a versão 2019 (**v1m3j19**) para o revestimento de FeCrAl e comparar com a versão 2017 (**v1m3j17**) efetuou-se as mesmas modificações nos módulos listados na Tabela 3.4 visando substituir com as novas propriedades. A oitava coluna da Tabela 3.5 ilustra os valores obtidos com a versão 2019 (**v1m3j19**) modificada.

As mudanças implementada eliminaram o problema da não convergência, obtendo-se a convergência para todos os 31 casos simulados, e os valores dos tempos de ruptura praticamente são os mesmos da versão 2017 (**v1m3j17**), com exceção nos últimos dígitos significativos, estas diferenças podem ser atribuídos ao truncamento e/ou arredondamento dos valores. Desta forma, as mudanças implementadas evidenciam que a versão 2019 (**v1m3j19**) original apresenta de fato inconsistências nas propriedades e modelos do revestimento de FeCrAl. Ressalta-se que as propriedades do combustível não foram alteradas nas modificações realizadas na implementação das propriedades do FeCrAl.

Os valores apresentados na quinta e oitava colunas da Tabela 3.5 apresentam diferenças inferiores a 0,1%. A Figura 3.5 ilustra a comparações entre as versões para o revestimento de FeCrAl.

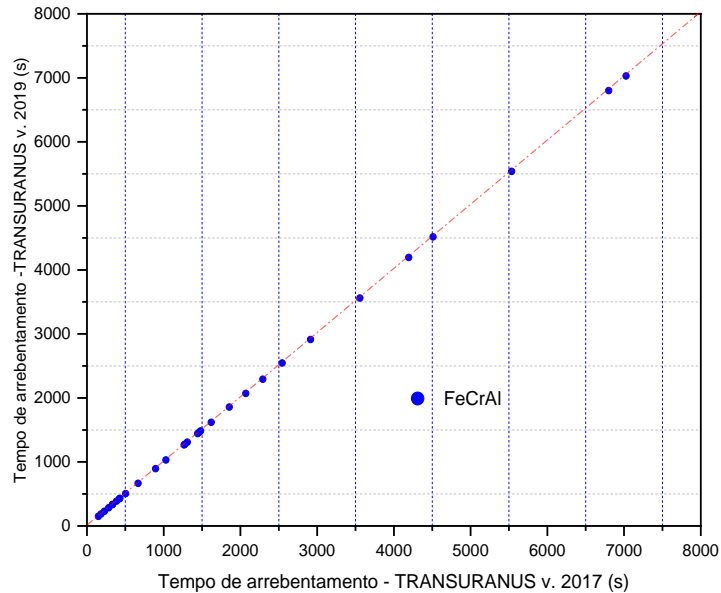
Tabela 3.5 – Resultados das simulações do experimento PUZRY com diferentes versões do programa TRANSURANUS.

Caso	Taxa de pressuriz. (bar/s)	Temp. (°C)	Tempo exp. (s)	Tempo ruptura obtido na simulação (s)			
				Transuranus (v1m1j17)	Transuranus (v1m3j19)		
				FeCrAl handbook	Zry-4	FeCrAl original	FeCrAl handbook
1	0,0064	1.201,3	531,90	1.266,24	572,45	270,00	1.266,72
2	0,0065	1.154,4	566,90	1.482,16	612,52	266,40	1.482,15
3	0,0063	1.102,1	607,80	1.855,08	690,04	273,60	1.856,41
4	0,0062	1.053,2	705,30	2.293,55	770,29	8.802,00	2.291,90
5	0,0062	997,9	810,70	2.914,05	874,56	NC	2.911,99
6	0,0048	950,5	1.805,40	4.511,32	1.320,41	NC	4.515,43
7	0,0759	952,9	208,20	423,29	144,46	NC	423,31
8	0,0763	1.001,0	116,70	335,17	118,92	NC	335,17
9	0,0712	1.051,6	104,70	283,56	112,08	799,20	283,53
10	0,0710	1.102,6	92,00	228,07	101,61	25,20	228,08
11	0,0717	1.149,8	84,10	184,91	92,51	25,2	184,88
12	0,0723	1.197,7	80,00	149,01	84,68	25,2	149,04
13	0,0314	698,8	2.828,00	4.194,36	2.798,50	NC	4.194,64
14	0,1190	702,2	892,40	1.277,76	879,35	NC	1.277,76
15	0,1173	802,1	538,40	666,39	542,43	NC	666,41
16	0,1224	750,3	678,50	895,31	668,14	NC	895,32
17	0,1162	850,1	342,30	505,16	375,21	NC	505,12
18	0,1151	900,2	233,70	386,44	178,80	NC	386,42
19	0,0243	900,6	801,30	1.464,84	633,99	NC	1.465,10
20	0,0225	849,7	1.211,10	2.070,28	1.515,05	NC	2.070,26
21	0,0168	800,8	2.693,30	3.558,79	2.872,61	NC	3.559,71
22	0,0148	749,9	4.105,10	5.536,32	4.073,80	NC	5.538,08
23	0,0717	748,6	1.011,80	1.443,02	1.064,49	NC	1.442,93
24	0,0179	698,8	4.522,20	6.799,97	4.524,53	NC	6.800,77
25	0,0173	698,3	4.623,50	7.027,04	4.670,54	NC	7.028,92
26	0,1193	698,4	888,80	1.309,56	895,91	NC	1.309,61
27	0,0248	801,4	1.946,00	2.544,47	2.053,72	NC	2.544,92
28	0,0425	800,0	1.244,70	1.619,96	1.304,31	NC	1.620,02
29	0,0720	799,9	804,50	1.030,54	831,50	NC	1.030,56
30	0,2630	800,4	275,70	331,80	274,14	NC	331,80
31	0,1961	800,4	346,20	429,88	352,31	NC	429,88

NC: não obteve a convergência

Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.5 – Comparação entre os resultados obtidos com as versões 2017 (*v1m1j17*) e 2019 (*v1m3j19*).



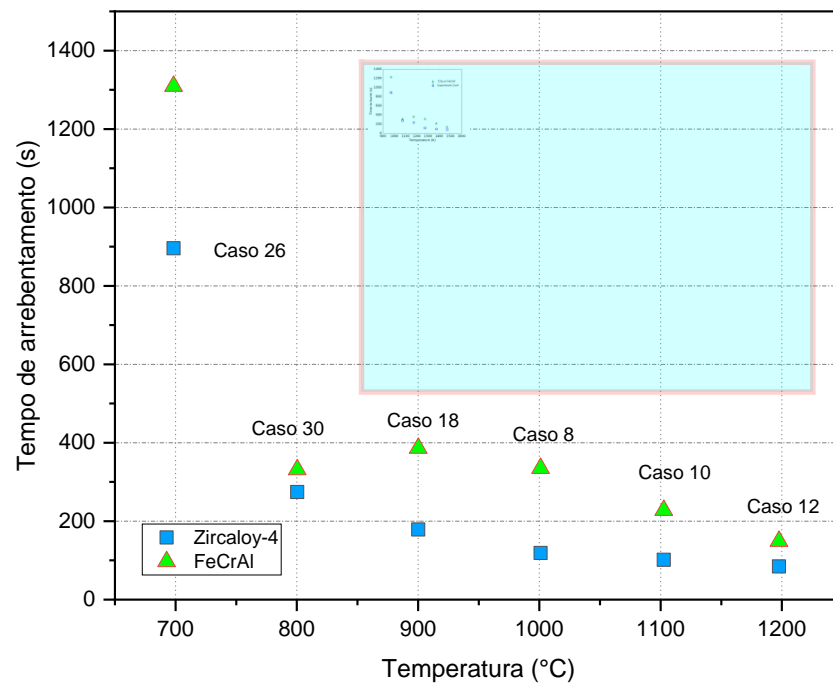
Fonte: Autor da Tese.

A fim de complementar a verificação dos resultados de forma independente, uma vez que não existem dados experimentais com revestimento de FeCrAl, efetuou-se uma comparação com os resultados de simulações do projeto CRP-ACTOF realizada com programa diferente do TRANSURANUS. No projeto ACTOF foram realizadas simulações de apenas seis casos distintos (8, 10, 12, 18, 26 e 30) do experimento com os revestimentos de Zircaloy-4 e FeCrAl. Os seis casos selecionados visavam cobrir praticamente todo o intervalo de temperatura (698,4 °C até 1.197,7 °C) do experimento.

Na Figura 3.6 são apresentados os tempos de ruptura em função da temperatura para os seis casos considerando os revestimentos Zircaloy-4 e o FeCrAl. Nesta figura, foi incluído um extrato dos resultados da referência [28] obtidos com o programa de desempenho de combustível BISON [17].

O gráfico menor (fundo azul) inserida na Figura 3.6 ilustra os resultados obtidos com o programa BISON para o revestimento de FeCrAl com a mesma espessura (0,725 mm) do revestimento de Zircaloy-4 do experimento.

Figura 3.6 – Comparação entre os tempos de ruptura obtidos com os revestimentos Zircaloy-4 e FeCrAl juntamente com o resultados obtidos no projeto ACTOF com o programa BISON [28].

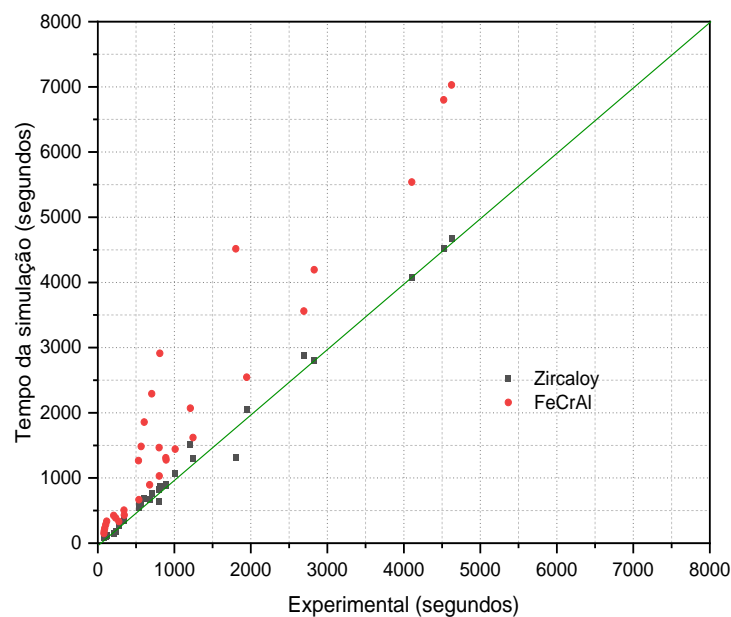


Fonte: Autor da Tese com a inclusão da Figura da referência [28]

Observa-se que o comportamento e os valores dos tempos de ruptura obtidos com o programa TRANSURANUS versão 2017 (*v1m3j17*) modificada são similares aos resultados do programa BISON. O revestimento de FeCrAl possui os tempos de ruptura superiores ao Zircaloy-4 em toda a faixa de temperatura avaliada. No entanto, a diferença observada não é significativamente maior.

A Figura 3.7 ilustra os resultados obtidos para os revestimentos de Zircaloy-4 e FeCrAl com a versão 2019 (**v1m3j19**) e 2017 (**v1m1j17**) e os valores experimentais. Os valores dos tempos de ruptura são sempre superiores quando comparados com os valores experimentais evidenciando que a liga de FeCrAl apresenta propriedades mecânicas superiores à liga Zircaloy-4. Convém destacar que as condições dos experimentos excluem a ocorrência da oxidação em altas temperaturas para ambas as ligas: Zircaloy-4 e FeCrAl.

Figura 3.7 – Comparação entre os resultados obtidos para os revestimentos de Zircaloy-4 e FeCrAl com a versão 2019 (**v1m3j19**) e 2017 (**v1m1j17**) do programa TRANSURANUS e os valores experimentais.



Fonte: Autor da Tese

A partir dos resultados da Tabela 3.5 e das Figuras 3.4 a 3.7, de forma resumida conclui-se:

- boa concordância para a maioria dos resultados obtidos das simulações e os resultados experimentais (quarta coluna) para o revestimento de Zircaloy-4 (sexta coluna);

- as simulações com o revestimento de FeCrAl com os dados e correlações provenientes da referência [11] apresentaram convergência nos tempos de ruptura dos tubos dos 31 casos para ambas as versões modificadas neste trabalho: 2019 (oitava coluna) e 2017 (quinta coluna);
- os resultados dos tempos de ruptura para a liga FeCrAl obtidos com as versões 2019 (oitava coluna) e 2017 (quinta coluna) modificadas com os dados e correlações provenientes da referência [11] apresentaram valores próximos e concordantes entre si para os 31 casos, conforme apresentado na Figura 3.5;
- todos os tempos de ruptura obtidos com as versões 2019 (oitava coluna) e 2017 (quinta coluna) modificadas para a liga de FeCrAl apresentaram valores superiores quando comparado com os tempos obtidos experimentalmente, conforme a Figura 3.5;
- os tempos de ruptura obtidos com as versões 2019 (oitava coluna) e 2017 (quinta coluna) modificadas para a liga FeCrAl com os dados e correlações provenientes da referência [11] apresentaram valores superiores quando comparados com os tempos de ruptura do revestimento de Zircaloy-4 com a versão 2019 (sexta coluna), conforme a Figura 3.7;
- as menores diferenças entre os tempos de ruptura calculados para os revestimentos de FeCrAl e Zircaloy-4 são da ordem de 22% em média e, residem nos casos onde as temperaturas dos experimentos são próximas de 800 °C,
- as maiores diferenças entre os tempos de ruptura calculados para os revestimentos de FeCrAl e Zircaloy-4 são acima de 100% e, residem nos casos onde as temperaturas dos experimentos são superiores a 1000 °C;
- apesar de poucos casos (8, 10, 12, 18, 26 e 30) as comparações independentes dos resultados obtidos com o programa BISON mostraram-se concordantes com as versões modificadas do programa TRANSURANUS;
- a superioridade das propriedades termo-mecânica do FeCrAl; e
- necessidade de validação da implementação dos dados e modelos por meio de experimentos específicos de rupturas similares ao PUZRY para a liga de FeCrAl.

O comportamento de ruptura do revestimento com ligas à base de zircônio (Zr) em condições de um acidente de LOCA é governado principalmente por três fenômenos: fluência, hidratação e oxidação. A fluência do revestimento durante a excursão da temperatura no transiente resulta no inchamento devido à diferença de pressão interna e a externa do revestimento. A espessura da parede do revestimento é reduzida na região onde ocorre a deformação geométrica (inchamento) afetando as características de transferência de calor e o aumento da tensão mecânica nesta região.

A hidratação do revestimento é decorrência do tempo de acúmulo de queima do combustível e favorece o fenômeno da oxidação permitindo a difusão do oxigênio nas camadas internas e a recombinação com a fase beta do zircônio, tornando o material menos dúctil, principalmente na ocorrência da reação de oxidação para a temperatura acima da mudança de fase.

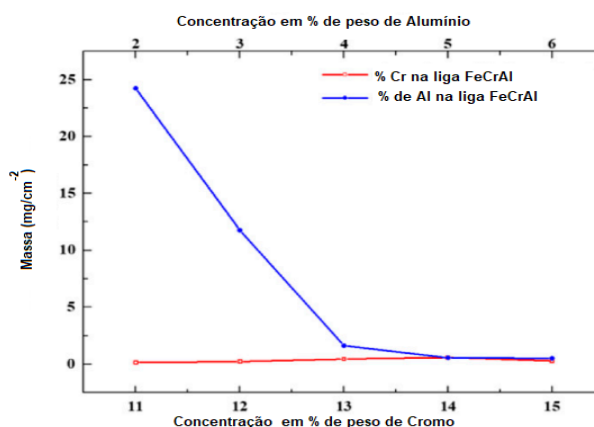
O efeito da oxidação para altas temperaturas afeta e deteriora a capacidade estrutural do revestimento devido a formação de camada de óxido e a redução da massa de metal no local afetado.

Dessa forma, experimentos complementares e similares ao PUZRY com o revestimento de FeCrAl necessitam ser conduzidos para aperfeiçoar o modelo de ruptura existente, incluindo experimentos envolvendo o rompimento do revestimento em ambiente oxidante. Convém ressaltar que o modelo analítico de ruptura implementado no programa TRANSURANUS provém de experimento com poucos pontos experimentais (6 pontos) e específico para a liga denominada de C35M (com a composição em percentual de peso de: Fe-13Cr-5Al-2Mo-0.2Si-0.05Y) desenvolvido no Laboratório Nacional de Oak Ridge [24].

Notadamente, algumas propriedades termo-mecânicas dependem do percentual em massa dos elementos Al e Cr existente na liga FeCrAl, igualmente para o comportamento da corrosão em altas temperaturas.

A presença em maior quantidade de alumínio na liga reduz a oxidação para ambiente de vapor à alta temperatura, conforme a Figura 3.8.

Figura 3.8 – Dependência da corrosão em alta temperatura (1.200,00 °C em 4 horas) com as concentrações dos elementos Al e Cr na liga de FeCrAl [29].



Fonte: Adaptado da referência [29].

3.2.2.2 Simulação e avaliação do experimento teórico – *Benchmark* INL (Caso estacionário)

O arquivo de dados de entrada do programa TRANSURANUS foi elaborado com base nos dados apresentados na Tabela 3.3 e com o perfil de potência apresentado na Figura 3.3. Os dados consistem basicamente de dados de materiais, dimensões, perfil de potência, entre outros. As simulações serão realizadas com o programa TRANSURANUS na sua forma original para o revestimento à base da liga de zircônio (Zircaloy-4 e M5[®]), e com a versão modificada do programa para o revestimento de FeCrAl. Destaca-se a inclusão dos resultados do revestimento de AISI-348 com intuito de comparar os desempenhos das duas ligas à base de ferro e avaliar qualitativamente as implementações dos dados do FeCrAl no programa TRANSURANUS.

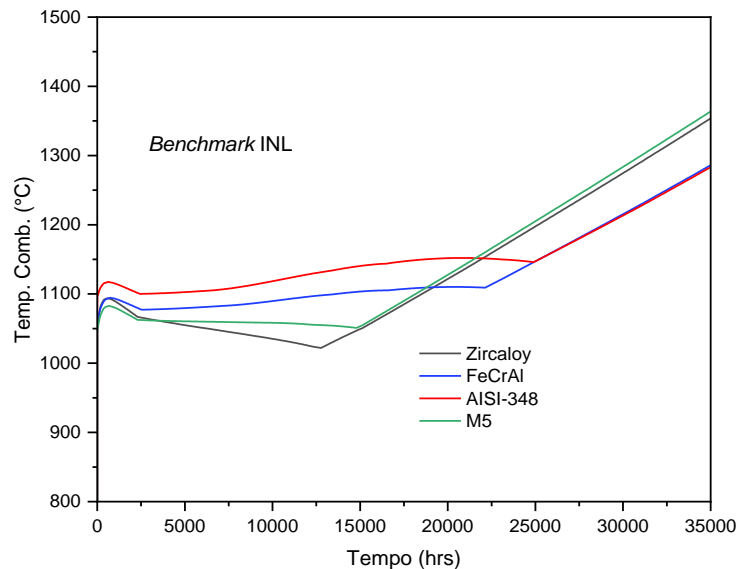
As Figuras 3.8 a 3.12 apresentam os resultados dos diferentes parâmetros do combustível obtidos com o programa TRANSURANUS na sua forma original para os revestimento à base de zircônio (Zircaloy-4 e M5[®]) e para a versão

modificada do programa TRANSURANUS (versão **v1m3j19**) para os revestimentos de AISI-348 e FeCrAl (com dados da referência [11]).

A Figura 3.9 apresenta temperaturas central dos combustíveis com diferentes revestimentos (Zircaloy-4, M5[®], FeCrAl e AISI-348) em função do tempo de irradiação. Observam-se valores maiores das temperaturas no final da vida para os revestimentos à base da liga de zircônio (Zircaloy-4 e M5[®]) quando comparados com os revestimentos à base da liga de ferro.

A mudança da condutividade térmica do material de revestimento afeta a temperatura do combustível, conseqüentemente afeta outros parâmetros diretamente dependentes da temperatura do combustível: dilatação térmica, a liberação de gases dos produtos de fissão e a pressão interna da vareta combustível.

Figura 3.9 – Comportamento da temperatura central do combustível para diferentes revestimentos obtidos com o programa TRANSURANUS.



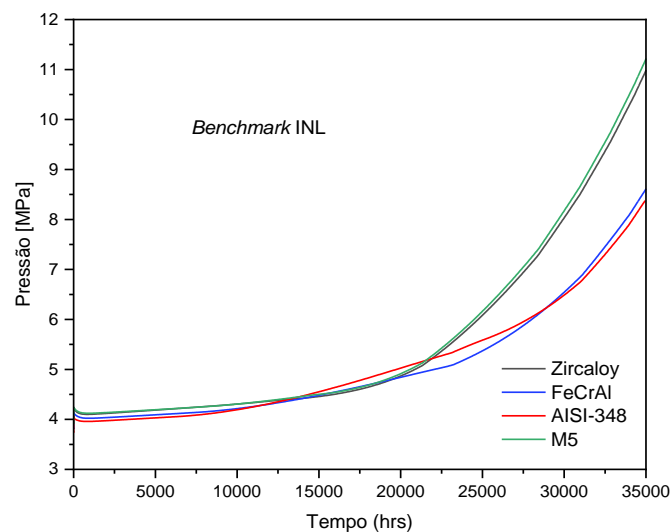
Fonte: Autor da Tese.

As temperaturas central do combustível para os revestimentos à base da liga de ferro (AISI-348 e a liga FeCrAl) são similares entre si, evidenciando a temperatura menor ao final de vida e esta redução poderá influenciar de forma determinante o comportamento do combustível durante a evolução de um cenário de acidente.

A Figura 3.10 ilustra as curvas de evoluções das pressões internas das varetas de combustível com diferentes revestimentos em função do tempo de irradiação. Observa-se que o revestimento à base da liga de zircônio (Zircaloy-4 e M5[®]) apresentam valores superiores no final de vida quando comparado com os revestimentos à base da liga de ferro.

A pressão interna depende basicamente de dois parâmetros: temperatura e liberação de gases de fissão. Destaca-se que o programa TRANSURANUS foi modificado apenas para incluir diferentes revestimentos (AISI-348 e FeCrAl) e as propriedades do combustível de UO₂ não foram alteradas. Dessa forma a diferença observada na pressão interna da vareta provêm da maior liberação dos gases de fissão e da temperatura do combustível, conforme ilustrado na Figura 3.9 .

Figura 3.10 – Comportamento das pressões interna das varetas combustíveis para diferentes revestimentos obtidos com o programa TRANSURANUS.



Fonte: Autor da Tese

A temperatura do combustível contribui significativamente para a liberação dos gases de fissão, principalmente quando o limiar de Vitanza [30, 31] é ultrapassado. O limiar de VITANZA é uma curva empírica que provém de diversos experimentos com diferentes taxas de queima em função da temperatura central do combustível, conforme a Equação 3.1.

Quando a temperatura do combustível supera valor limiar de VITANZA para um nível de queima, ocorre um aumento súbito na liberação de gases do combustível.

$$B_{avg} = 5 \times 10^{-3} \exp(9.800/T_{CL}) \quad (3.1)$$

Onde:

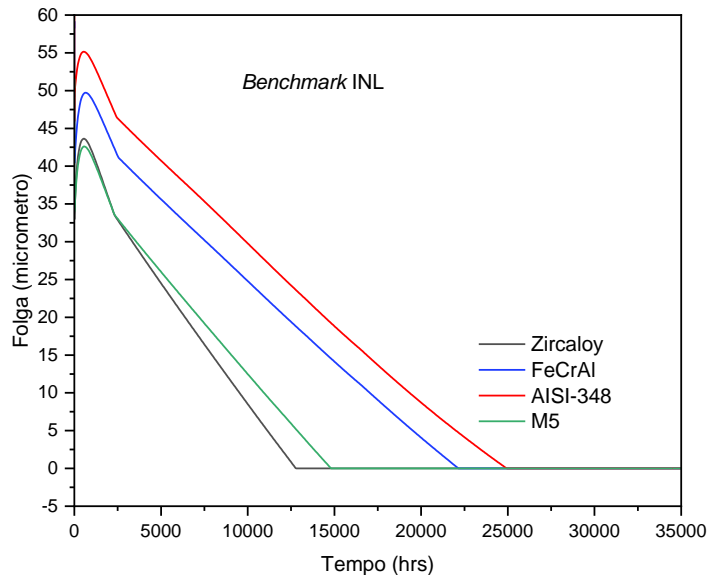
T_{cl} é a temperatura central do combustível, e

B_{avg} é a queima média do combustível

A Figura 3.11 ilustra o comportamento da folga (*gap*) entre a pastilha de combustível e os diferentes revestimentos em função do tempo de irradiação. A folga entre a pastilha combustível e o revestimento é governada basicamente pelo coeficiente de dilatação e fluência do revestimento, e os fenômenos que ocorrem na pastilha de combustível. No início de vida devido ao fenômeno da densificação da pastilha de combustível ocorre o aumento da folga. Posteriormente, o inchamento da pastilha em função da queima torna-se predominante nas mudanças na geometria do combustível.

O fechamento das folgas para os combustíveis com revestimentos à base de zircônio (Zircaloy-4 e M5[®]) ocorre antecipadamente quando comparado com os demais revestimentos. O combustível com o revestimento de aço inoxidável AISI-348 permanece sem o contato com a pastilha praticamente até a queima de 40 GWd/kgU (25000 h) devido a maior expansão térmica do AISI-348. Nesse aspecto mostra-se superior à liga de FeCrAl.

Figura 3.11 - Comportamento da folga (*gap*) entre a pastilha combustível e parede interna de diferentes revestimentos obtidos com o programa TRANSURANUS.



Fonte: Autor da Tese.

A fluência no revestimento devido à combinação da pressão do circuito primário (aproximadamente 130 bar para reatores PWR) e a temperatura afetam a geometria do revestimento juntamente com a dilatação térmica. Os revestimentos à base de zircônio possuem baixo coeficiente de expansão térmica comparado com as ligas à base de ferro. Desta forma, o fechamento da folga é antecipado. A mudança geométrica no sentido longitudinal, seja pela dilatação térmica ou pelo crescimento sob irradiação para as ligas à base de zircônio não influenciam a folga entre a pastilha e o revestimento.

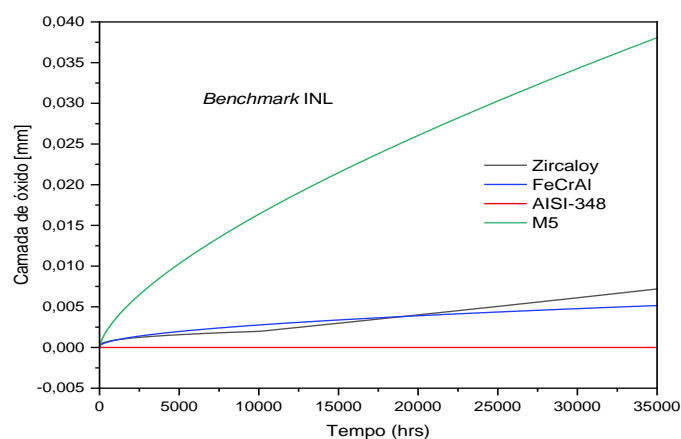
Do ponto de vista do desempenho do combustível, a ocorrência antecipada do fechamento da folga (*gap*) poderá contribuir para a falha pelo fenômeno PCI (*Pellet Cladding Interaction*), principalmente quando submetido a transientes operacionais de potência. Além disso, o fechamento da folga (*gap*) contribui para a falha do revestimento no acidente de excursão de reatividade (RIA – *Reactivity Initiated Accident*), principalmente devido ao fenômeno PCMI (*Pellet Cladding*

Mechanical Interaction), onde o carregamento gerado pela excursão de potência causa uma dilatação súbita da pastilha de combustível, que impõe um carregamento mecânico significativo no revestimento. Dessa forma, a presença e manutenção da folga (*gap*) ao longo da queima contribuem para a redução das falhas no revestimento na condição de operação normal, transientes operacionais e em acidentes da base de projeto (RIA).

A Figura 3.12 apresenta a evolução da camada de óxido dos diferentes revestimentos em função do tempo de irradiação. A presença de uma fina camada de óxido é desejável para a proteção contra a corrosão. No entanto, o excesso de oxidação e a espessa camada de óxido degradam a condutividade térmica do revestimento, o que por sua vez, contribui para o aumento da temperatura do combustível e conseqüentemente da pressão interna da vareta.

Além disso, reduz a resistência mecânica à deformação devido a perda parcial do material pela corrosão (descamação do óxido superficial). Dessa forma, a presença de uma camada de óxido na condição operacional pode representar inicialmente um benefício, desde que não ocorra a degradação da condutividade térmica e a redução da resistência mecânica.

Figura 3.12 - Comportamento das camadas de óxido de diferentes revestimentos obtidos com o programa TRANSURANUS.



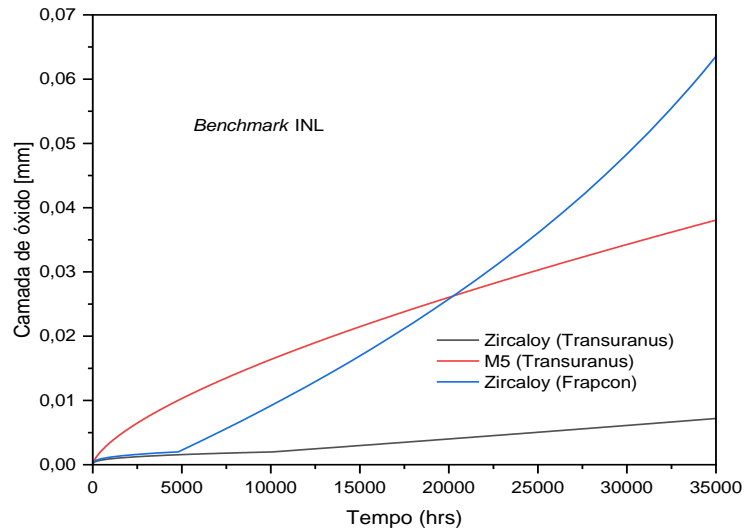
Fonte: Autor da Tese.

Notadamente, observa-se que a camada de óxido do revestimento de Zircaloy-4 apresenta valor significativamente inferior ao da liga M5[®] (base de zircônio) e muito similar à liga FeCrAl. Ressalta-se que, neste trabalho, não foram modificados os modelos de oxidação do Zircaloy-4 e da liga M5[®]. Portanto, este comportamento observado é intrínseco do programa TRANSURANUS nas duas versões (2017 e 2019).

A diferença entre o resultado na camada de óxido do programa TRANSURANUS e outros programas de desempenho já foi igualmente observado no CRP-ACTOF [24]. Para a verificação das diferenças obtidas para as ligas de zircônio foi realizada uma simulação independente com o programa FRAPCON [14]. A Figura 3.13 ilustra uma comparação entre os resultados da camada de óxido no revestimento de Zircaloy-4 e na liga M5[®] com o programa TRANSURANUS e FRAPCON.

A camada de óxido do revestimento de Zircaloy-4 obtida com o programa FRAPCON é muito superior quando comparado com o resultado do programa TRANSURANUS. O valor obtido com programa FRAPCON é próximo dos valores experimentais obtidos de reatores comerciais com queimas superiores a 40 GWd/kgU [32]. Dessa forma, conclui-se que o modelo de corrosão existente para a liga Zircaloy-4 no programa TRANSURANUS requer uma revisão.

Figura 3.13 – Comparação entre os resultados obtidos dos programas FRAPCON [14] e TRANSURANUS para a camada de óxido de diferentes revestimentos.



Fonte: Autor da Tese.

Quanto às mudanças implementadas no programa TRANSURANUS, a simulação do experimento teórico na condição estacionária evidenciou o desempenho melhor do revestimento FeCrAl comparado com a liga de zircônio sobre a temperatura do combustível, tamanho da folga (*gap*), pressão interna da vareta e a formação da camada de óxido. Estes parâmetros do combustível são as condições iniciais de um eventual cenário acidental e são determinantes para os possíveis modos de falhas no revestimento.

A pressão interna e as temperaturas maiores contribuem para o inchamento do revestimento (*balloning*) no início de um acidente de LOCA. A ausência da folga (*gap*) no combustível contribui de forma determinante na falha do revestimento no acidente de RIA.

Portanto, o revestimento de FeCrAl fornece condições iniciais menos desafiadoras para os acidentes da base de projeto (LOCA e RIA).

3.3 Avaliação Neutrônica dos Combustíveis ATF

Atualmente, existe um consenso sobre as ferramentas computacionais utilizadas no projeto neutrônico de reatores tipo LWR, que praticamente não requerem mudanças ou implementações para a análise dos combustíveis tolerantes a falha (ATF). A aplicação destas ferramentas depende apenas da parte formal da validação e da verificação das seções de choque de alguns núclídeos, que não estão presentes nos atuais combustíveis à base de UO_2 e da liga de zircônio.

Os processos de verificação e validação das ferramentas computacionais requerem experimentos específicos de criticalidade, normalmente realizados em reatores de pesquisa de potência zero. Ressalta-se que, até o presente momento, não existem núcleos de reatores de pesquisa utilizando exclusivamente combustíveis ATF para fins de verificação e validação de ferramentas computacionais, porém alguns experimentos críticos realizados no passado, por exemplo, os experimentos realizados no reator de potência zero IPEN/MB-01 com varetas de combustível de aço inoxidável AISI-304 podem ser úteis para o processo de verificação e validação das seções de choque [33] dos combustíveis à base de ligas de Ferro.

As avaliações neutrônicas são divididas em três etapas. A primeira etapa consiste na obtenção e verificação das reatividades de diferentes combinações de combustíveis e revestimentos, por meio de cálculos utilizando o modelo de célula unitária e, de um elemento de combustível típico de reatores PWR para os casos estacionário e com queima.

Na segunda etapa, são realizadas análises dos principais parâmetros importantes à segurança como o coeficiente de reatividade do moderador, influência da moderação do sistema no espectro de nêutrons e a razão de conversão.

Na terceira e última etapa, será avaliada a penalidade imposta pela absorção de nêutrons para diferentes espessuras do revestimento de FeCrAl.

Inicialmente, os cálculos de reatividade do sistema combustível (revestimento e combustível) com um modelo de célula unitária visam avaliar o comportamento da reatividade para o início de vida, assim como identificar a combinação que apresenta a maior e a menor reatividade.

A combinação de diferentes combustíveis e revestimentos que apresenta maior reatividade não representa necessariamente a melhor opção para o combustível ATF, uma vez que outras simulações são necessárias para verificar o desempenho em condições de operação normal e cenários de acidentes da base de projeto.

As simulações com o modelo geométrico em duas dimensões de um elemento de combustível visam representar um arranjo típico com a presença de tubos guias e veneno queimável juntamente com as varetas de combustível. As simulações permitem avaliar a evolução da reatividade e a mudança do espectro de nêutrons ao longo da queima do combustível devido à formação e à presença de produtos de fissão e novos elementos transurânicos.

As diversas simulações de neutrônica podem também subsidiar verificações e análises de termo-hidráulica, mecânica e de desempenho sob irradiação. Além disso, contribui com possíveis soluções ou alternativas para a necessidade de aumento de enriquecimento do combustível devido à maior absorção parasítica de nêutrons de diferentes materiais de revestimentos ou combustíveis candidatos a ATF.

3.3.1 Método de Monte Carlo

O método de Monte Carlo aplicado à área de projeto de núcleo de reatores tem origem praticamente no início do desenvolvimento dos primeiros reatores nucleares. A base teórica foi formalizada matematicamente por Von Neumann utilizando o conceito de função densidade de probabilidade. Somente após o desenvolvimento da computação digital, a aplicação do Método de Monte Carlo baseado em estatística e amostragem de números aleatórios tornou-se uma

realidade para diversos problemas práticos, principalmente o transporte de partículas devido à natureza estocástica dos processos de interação com o meio.

O método é essencialmente estatístico, mais adequado para simular processos estocásticos. Não necessita e tão pouco soluciona uma equação de transporte de partículas como outras ferramentas computacionais baseadas em métodos determinísticos. O método simula a estória das partículas (nêutrons, fótons, prótons, gamas, elétrons e outras partículas) de forma independente em um determinado meio, desde o instante da aparição até o desaparecimento, conforme ocorre no núcleo do reator. Aliado ao método explícito, sem a necessidade de representação analítica por meio de equações, as ferramentas computacionais de Monte Carlo tratam a geometria de forma explícita por meio de geometria combinatorial, sem a necessidade de aproximações normalmente utilizadas em métodos determinísticos.

Além disso, a natureza do método permite a utilização da computação de multiprocessamento simultâneo com diversos núcleos de processadores acelerando o processamento da simulação das partículas. Atualmente, o Método de Monte Carlo representa o estado da arte na simulação de transporte de partículas para diversas disciplinas, desde aplicações em reatores nucleares até a medicina nuclear.

Nos projetos e cálculos envolvendo a neutrônica, os resultados obtidos da simulação de Monte Carlo representam valores de referência para fins de comparação com outros métodos determinísticos aproximados, pois a simulação é considerada um experimento numérico, uma vez que não requer aproximações na geometria e na representação das reações nucleares. Além disso, utiliza as seções de choque na forma contínua em energia e a precisão estatística do parâmetro a ser obtido depende apenas da quantidade de partículas simuladas.

O programa de Monte Carlo SERPENT [1] foi desenvolvido no Centro de Pesquisa Técnica (VTT) da Finlândia e foi disponibilizado ao público em 2009. Posteriormente à disponibilização pública, foram implementadas novas funcionalidades e diversas melhorias.

Atualmente, o SERPENT é um programa computacional para utilização em diferentes aplicações envolvendo o transporte de partículas devido a sua versatilidade na modelagem de geometria tridimensional com diversas opções de superfícies geométricas, a capacidade de geração de seções de choque homogeneizadas e colapsadas em poucos grupos de energia para utilização em outros programas de métodos determinísticos [34]. Dentre as diversas opções e capacidades, destacam-se a possibilidade de executar a queima ou transmutação e a análise de incertezas.

O processo de queima ou transmutação do combustível nuclear no program SERPENT pode ser tratado de duas formas: método das cadeias lineares ou pelo método CRAM de matriz exponencial considerando mais de 1500 núclídeos de produtos de fissão e entre 250 a 300 núclídeos actinídeos, além de fazer correções preditivas ao longo da queima [35,36].

Normalmente, o processo de queima do combustível nuclear no método de Monte Carlo requer tempo computacional considerável. Neste sentido, o programa SERPENT possui opções que aceleram os cálculos com utilização do método de grade unificada de energia para o armazenamento das seções de choque e o uso do método *Woodcock delta tracking* [37]. Destaca-se também a programação estruturada de forma a permitir fácil acoplamento com outros programas, por exemplo: programas de termo-hidráulica e/ou desempenho de combustível [38-39]. O programa SERPENT foi avaliado e comparado com diversos outros programas similares de Monte Carlo, assim como programas determinísticos e extensivamente validados por meio de diversos experimentos [38-44]. Além disso, foi utilizado em diversas simulações considerando de forma completa o núcleo de diferentes reatores [45-48].

3.3.2 Reatividade dos combustíveis tolerantes a falha (ATF)

A reatividade do combustível é um parâmetro essencial no projeto de um núcleo de reatores, uma vez que fornece informações iniciais quanto à duração do ciclo do combustível, grau de enriquecimento necessário, necessidades associadas com o controle do reator por meio de venenos queimáveis, adição de boro solúvel, barras de controle e segurança para o controle e desligamento seguro.

3.3.2.1 Avaliação e análise da reatividade no início de vida dos candidatos ao combustível ATF

A reatividade do sistema combustível com a mudança de revestimento e/ou do combustível no projeto de um elemento de combustível tem um impacto direto nos parâmetros neutrônicos. O atual sistema combustível de reatores LWR é praticamente um projeto otimizado nos diversos aspectos, incluindo a parte neutrônica, principalmente pelo uso do revestimento à base da liga de zircônio e outros elementos com baixa seção de choque de absorção de nêutrons.

A primeira etapa das avaliações e análises da reatividade do combustível ATF com diferentes tipos de revestimentos e combustíveis é conduzida utilizando os dados do reator PWR da Westinghouse (AP-1000) como referência de comparação.

A Tabela 3.6 apresenta os principais dados de projeto do reator AP-1000 [47], as dimensões da vareta de combustível para o modelo geométrico da célula unitária (bidimensional 2D) constituído de 4 regiões: a pastilha de combustível de UO_2 , folga (*gap*), revestimento e água (moderador, sem a presença de boro solúvel). No modelo geométrico da célula unitária serão desprezadas as regiões que possuem interface com as grades espaçadoras e outros materiais que compõem a vareta de combustível ao longo do comprimento total.

Inicialmente, para avaliação das reatividades e comparação com o sistema combustível do reator AP-1000, serão selecionados quatro tipos de revestimento e quatro tipos de combustíveis considerados como os mais promissores para curto prazo (conceito evolucionário) e longo prazo (conceito revolucionário).

As simulações neutrônicas compreendem 16 diferentes combinações de revestimentos e combustíveis nas seguintes condições: início de vida e a condição de contorno totalmente refletido nas superfícies externa da célula unitária.

O parâmetro reatividade da célula unitária nas simulações será representado pelo fator de multiplicação infinito de nêutrons de um sistema na ausência de fuga de partículas do sistema, buscando maximizar a reatividade do sistema combustível.

Tabela 3.6 - Principais dados de projeto do reator AP-1000 [49].

Parâmetro	AP-1000
Potência térmica (MWt)	3400
Potência elétrica (MWe)	1100
Número de elementos de combustível	157
Arranjo dos elementos de combustível	17x17
Número de varetas combustível por elemento de combustível	265
Número de tubos guia por elemento de combustível	24
Altura ativa da vareta de combustível (cm)	426,72
Espaçamento centro a centro entre varetas de combustível (<i>pitch</i>) (cm)	1,259
Diâmetro externo da vareta de combustível (cm)	0,94996
Espessura do revestimento da vareta de combustível (cm)	0,05715
Material do revestimento	ZIRLO™
Diâmetro da pastilha de combustível (cm)	0,81915
Altura da pastilha de combustível (cm)	0,98298
Material da pastilha de combustível	Pastilhas de UO ₂
Enriquecimento da pastilha de combustível (% ²³⁵ U em massa)	2,35; 3,40 e 4,45
Densidade (% da densidade teórica)	95,5
Material dos tubos guia	ZIRLO™
Quantidade de varetas de controle por elemento de combustível	24
Material do revestimento das varetas de controle	AISI-304
Material das varetas de controle	Ag-In-Cd ou Aço inoxidável 304
Quantidade de grades espaçadoras por elemento de combustível	14
Material das grades espaçadoras	ZIRLO™ e liga NiCrFe (superior e inferior)

Fonte: Dados do reator AP-1000 [49]

Para as concentrações dos materiais dos revestimentos e dos combustíveis, adotou-se:

- a) FeCrAl, a liga comercial denominada de APMT-KHANTAL[®] desenvolvida pela empresa SANDVIK com os seguintes percentuais em peso na liga: Cr (22%), Al (5,0%), Mo (3,0%), Si (0,7%), Mn (0,4%), C (0,05%) e Fe (balanço);
- b) ZIRLO[™] com as seguintes composições típicas (% em peso): Sn (1,0%), Nb (1,0%), Fe (0,1%) e Zr (balanço) [49];
- c) Aço inoxidável AISI-348 com as seguintes composições (% em peso): Cr (17,45 %), Ni (10,94 %), Mn (1,61%), Nb (0,83 %), Si (0,42 %), C (0,052 %), P (0,017 %) e Fe (balanço);
- d) SiC onde foram considerados os isótopos ²⁸Si, ²⁹Si e ³⁰Si nas abundâncias naturais; e
- e) A pastilha de combustível com enriquecimento isotópico de 4,45 % em ²³⁵U.

A biblioteca de seção de choque utilizada é a versão ENDF/B-VIII no formato de energia pontual. Além disso, as temperaturas de 900 K para a região do combustível e 550 K para a região do moderador.

As simulações irão considerar a quantidade de 50 milhões de partículas visando obter um desvio padrão da ordem de dezenas de pcm (parte por cem mil).

Algumas simplificações no modelo visaram maximizar a reatividade do sistema e não afetam a comparação relativa entre os resultados.

A Tabela 3.7 apresenta os resultados obtidos para os fatores de multiplicação infinito de nêutrons das diversas combinações de materiais combustíveis e revestimentos. Neste trabalho, o fator de multiplicação infinito de nêutrons será denominado de reatividade, uma vez que, representa a disponibilidade de nêutrons de um determinado sistema. Quando a reatividade de um sistema representar as diferenças entre fatores de multiplicação de dois diferentes estados, esta condição será mencionada de forma explícita, a fim de evitar interpretações equivocadas.

Tabela 3.7 – Fatores de multiplicação infinito de nêutrons (K_{inf}) para diferentes sistemas combustível (combustível e revestimento) candidatos a ATF.

Combustível	Revestimento ($K_{inf} \pm \sigma$)			
	AISI-348	ZIRLO™	FeCrAl (APMT)	SiC
UO ₂	1,25815 ±	1,38457 ±	1,27295 ±	1,39316 ±
	0,00019	0,00019	0,00020	0,00019
UN	1,16124 ±	1,23844 ±	1,16954 ±	1,24564 ±
	0,00022	0,00019	0,00022	0,00020
U ₃ Si ₂	1,26158 ±	1,36680 ±	1,27300 ±	1,37470 ±
	0,00019	0,00019	0,00018	0,00019
UO ₂ -BeO (10%vol)	1,25202 ±	1,39644 ±	1,26860 ±	1,40496 ±
	0,00019	0,00018	0,00020	0,00018

Fonte: Autor da Tese

Destacam-se as combinações com a menor (UN + AISI-348) e a maior (UO₂-BeO + SiC) reatividade quando comparadas com o caso referência (UO₂ + liga de zircônio). O revestimento de aço inoxidável AISI-348 com qualquer combinação de combustível sempre apresenta menor reatividade em relação aos demais revestimentos, ilustrando a maior penalidade neutrônica frente aos demais revestimentos. Analogamente, o revestimento de FeCrAl apresenta a maior penalidade neutrônica frente aos demais revestimentos, excetuando o revestimento de aço inoxidável AISI-348.

O revestimento de SiC apresenta a maior reatividade em relação aos demais revestimentos para o mesmo tipo de combustível, inclusive superando a reatividade do combustível referência (UO₂ com revestimento de liga de zircônio).

O combustível nitreto de urânio (UN) apresenta a maior absorção de nêutrons quando comparado com os demais combustíveis (UO₂, U₃Si₂ e UO₂-BeO) para um determinado revestimento (AISI-348, FeCrAl, ZIRLO™ e SiC). Isto deve-se principalmente à presença do isótopo ¹⁴N, que possui uma alta seção de choque de absorção de nêutrons térmicos, penalizando a reatividade e constituindo uma grande desvantagem frente aos demais combustíveis.

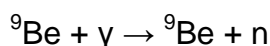
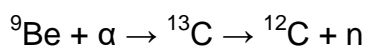
A abundância isotópica natural em massa do isótopo ¹⁴N é 99,64%, enquanto o isótopo ¹⁵N apenas 0,36%, dessa forma uma utilização do combustível

UN só será atraente no futuro com a possibilidade de enriquecimento do isótopo ^{15}N no nitrogênio.

O custo associado é razoavelmente alto atualmente, estima-se um custo inicial do enriquecimento do isótopo ^{15}N para concentração de 99% da ordem de U\$ 1.130,00/kg.nitrogênio, representando atualmente um grande obstáculo para a utilização do combustível UN [50].

As Figuras 3.13 e 3.14 apresentam as curvas das seções de choque total e de captura dos isótopos ^{14}N e ^{15}N para nêutrons da biblioteca de dados nucleares básicos ENF/B-VIII, respectivamente.

O combustível $\text{UO}_2(10\text{vol\%})\text{BeO}$ com o revestimento de ZIRLOTM ou SiC apresentam reatividades sempre superiores em relação ao caso referência ($\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$). A maior reatividade deve-se à presença do elemento berílio que contribui na moderação dos nêutrons [51] em adição à moderação proporcionada pela molécula de H_2O . Além disso, o berílio pode produzir nêutrons adicionais ao sistema contribuindo para o aumento da reatividade, conforme as reações abaixo:



Ressalta-se que neste trabalho não foram avaliados as reações (n,2n) e (n, α) na faixa de energia $E > 1,85 \text{ MeV}$ para o isótopo ^9Be para avaliar a produção de ^6Li e ^3H .

A Tabela 3.8 apresenta as mesmas informações da Tabela 3.7, porém de forma ordenada para facilitar a avaliação, do maior valor para o menor de reatividade entre as diferentes combinações de combustível e revestimento.

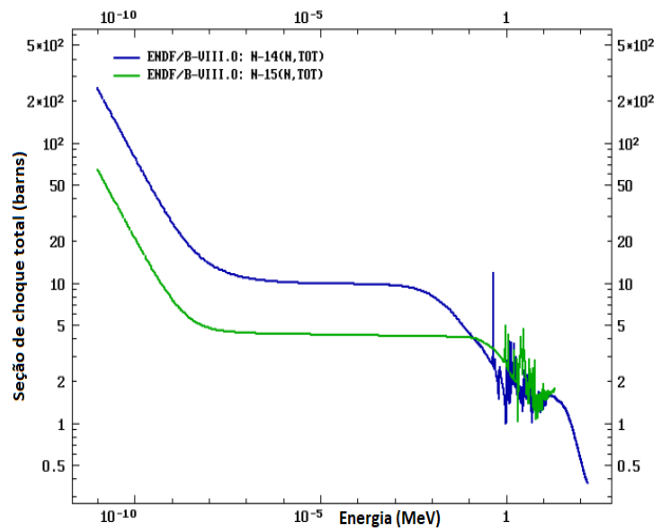
Destacam-se na Tabela 3.8 as combinações $\text{U}_3\text{Si}_2 + \text{FeCrAl}$ e $\text{UO}_2 + \text{FeCrAl}$. Estas possuem a mesma reatividade diferindo apenas no intervalo do desvio padrão do cálculo de Monte Carlo.

Tabela 3.8 – Fatores de multiplicação infinito de nêutrons em ordem decrescente para os diferentes sistemas combustível (combustível e revestimento) candidatos a ATF.

Posição	Sistema Combustível	$K_{\text{infinito}} \pm \sigma$
1	UO ₂ -BeO + SiC	1,40496 ± 0,00018
2	UO ₂ -BeO + ZIRLO™	1,39644 ± 0,00018
3	UO ₂ + SiC	1,39316 ± 0,00019
4	UO ₂ + ZIRLO™ (Referência)	1,38457 ± 0,00019
5	U ₃ Si ₂ + SiC	1,37470 ± 0,00019
6	U ₃ Si ₂ + ZIRLO™	1,36680 ± 0,00019
7	U ₃ Si ₂ + FeCrAl	1,27300 ± 0,00018
8	UO ₂ + FeCrAl	1,27295 ± 0,00020
9	UO ₂ -BeO + FeCrAl	1,26860 ± 0,00020
10	U ₃ Si ₂ + AISI-348	1,26158 ± 0,00019
11	UO ₂ + AISI-348	1,25815 ± 0,00019
12	UO ₂ -BeO + AISI-348	1,25202 ± 0,00019
13	UN + SiC	1,24564 ± 0,00020
14	UN + ZIRLO™	1,23844 ± 0,00019
15	UN + FeCrAl	1,16954 ± 0,00022
16	UN + AISI-348	1,16124 ± 0,00022

Fonte: Autor da Tese.

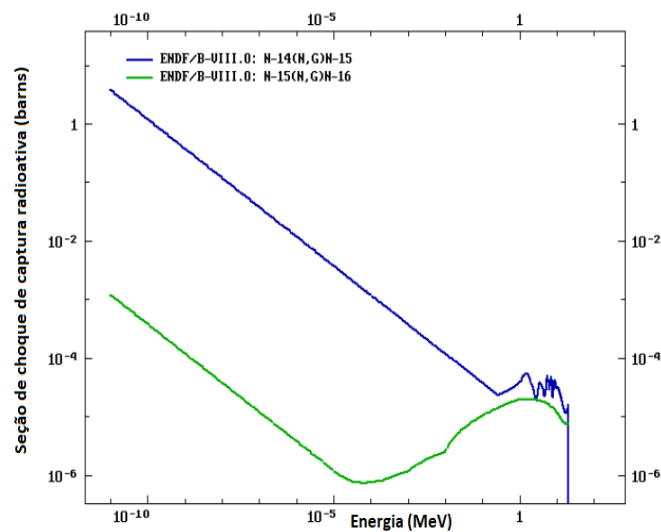
Figura 3.14 - Seção de choque de total dos isótopos ¹⁴N e ¹⁵N (base dados ENDF/B-VIII versão 0).



Fonte: Adaptado pelo autor da Tese do <https://www.nndc.bnl.gov/> [52].

O comportamento das seções de choque é similar para ambos os isótopos (^{14}N e ^{15}N). No entanto, a diferença é significativa principalmente na faixa de energia térmica (Energia < 0,625 eV) dos nêutrons. A diferença é mais pronunciada na seção de choque da reação de captura (n,gama) entre os isótopos ^{14}N e ^{15}N .

Figura 3.15 - Seção de choque de captura radioativa dos isótopos ^{14}N e ^{15}N (base dados ENDF/B-VIII versão 0).

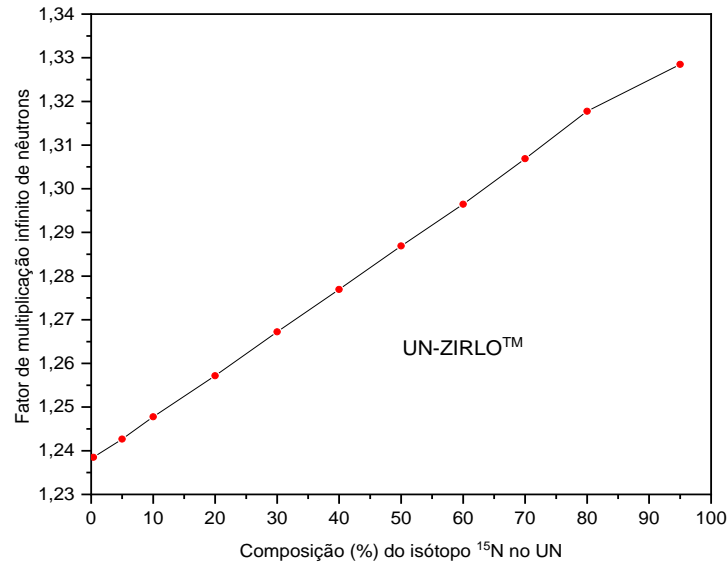


Fonte: Adaptado pelo autor da Tese do <https://www.nndc.bnl.gov/>[52].

A fim de avaliar criteriosamente o comportamento da reatividade do sistema UN + ZIRLOTM em função da concentração do isótopo ^{15}N , foram realizadas diversas simulações variando-se a concentração deste isótopo.

A Figura 3.16 ilustra o comportamento da reatividade como uma função linear crescente com o aumento da abundância isotópica do ^{15}N . Apesar do aumento da reatividade obtida, o sistema combustível UN + ZIRLOTM não supera ou sequer iguala a reatividade ($1,38457 \pm 0,00019$) do sistema combustível de referência ($\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$). Portanto, a estratégia de enriquecimento do combustível UN tem resultado limitado quando comparado com o caso referência.

Figura 3.16 – Reatividade do sistema UN + ZIRLO™ em função abundância (%) isotópica do ^{15}N .

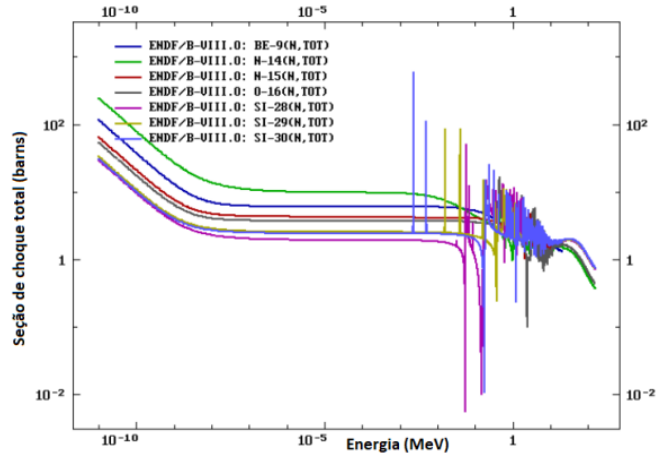


Fonte: Autor da Tese.

Para avaliação da contribuição das seções de choque são apresentadas nas Figuras 3.17, 3.17, 3.19, 3.20, 3.21 e 3.22 as seções de choque dos núclídeos constituintes dos diversos combustíveis e revestimentos.

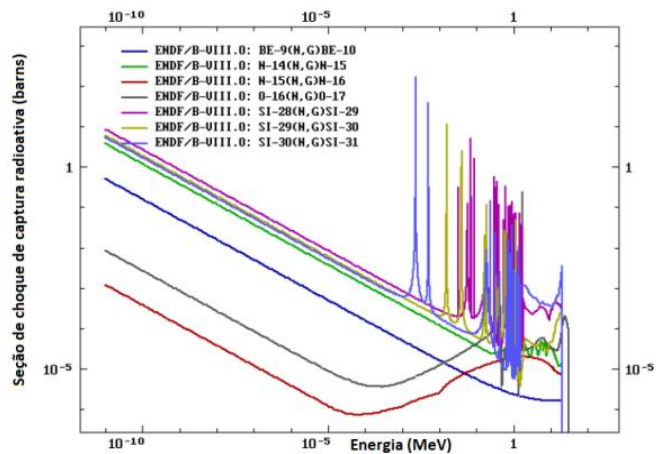
A maior seção de choque total dentre os materiais combustíveis ($\text{UO}_2\text{-BeO}$, UN, U_3Si_2) é o núclídeo ^{14}N (Figura 3.17).

Figura 3.17 - Seção de choque total dos diversos componentes dos combustíveis ($\text{UO}_2\text{-BeO}$, UN, U_3Si_2): Berílio, Oxigênio, ^{14}N , ^{15}N , ^{28}Si , ^{29}Si e ^{30}Si (base dados ENDF/B-VIII versão 0).



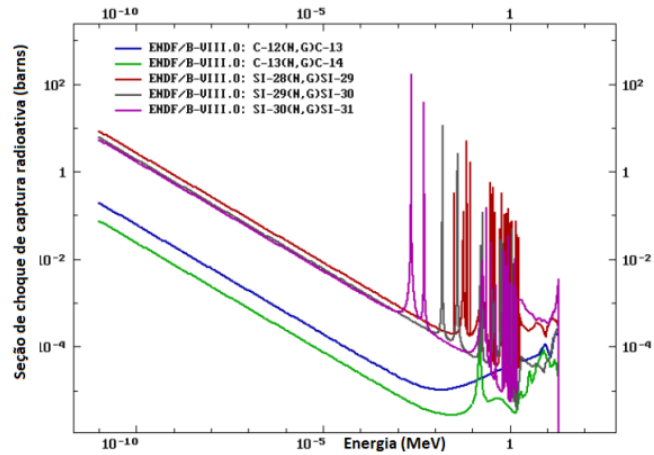
Fonte: Adaptado pelo autor da Tese do <https://www.nndc.bnl.gov/>[52].

Figura 3.18 - Seção de choque de captura radioativa dos diversos componentes dos combustíveis ($\text{UO}_2\text{-BeO}$, UN, U_3Si_2): Berílio, Oxigênio, ^{14}N , ^{15}N , ^{28}Si , ^{29}Si e ^{30}Si (base dados ENDF/B-VIII versão 0).



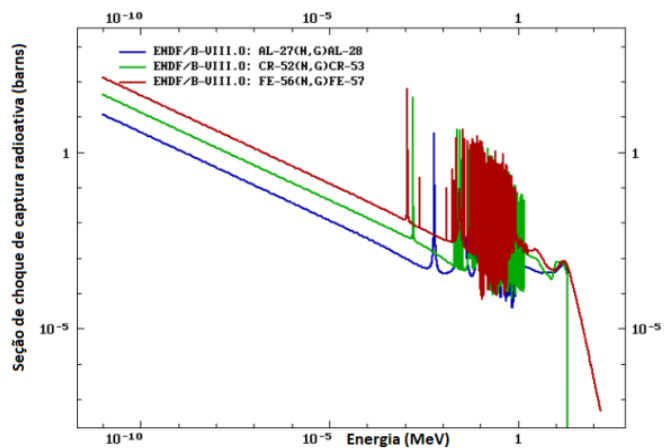
Fonte: Adaptado pelo autor da Tese do <https://www.nndc.bnl.gov/>[52].

Figura 3.19 - Seção de choque de captura radioativa dos núclídeos componentes do revestimento de SiC: ^{12}C , ^{13}C , ^{28}Si , ^{29}Si e ^{30}Si (base dados ENDF/B-VIII versão 0).



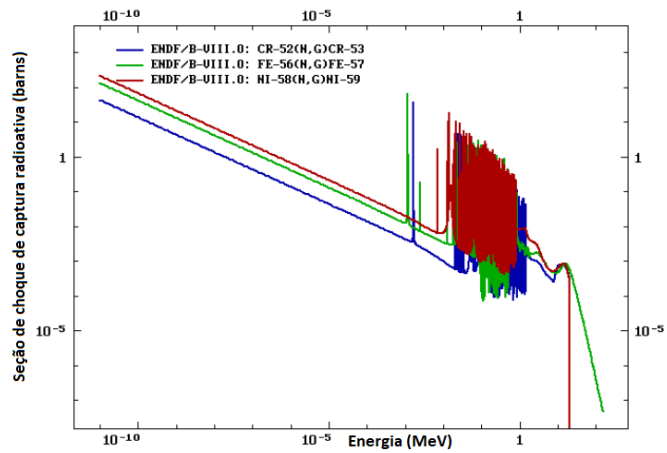
Fonte: Adaptado pelo autor da Tese do <https://www.nndc.bnl.gov/>[52].

Figura 3.20 - Seção de choque de captura radioativa dos principais núclídeos componentes do revestimento FeCrAl: ^{56}Fe , ^{52}Cr , e ^{27}Al (base dados ENDF/B-VIII versão 0).



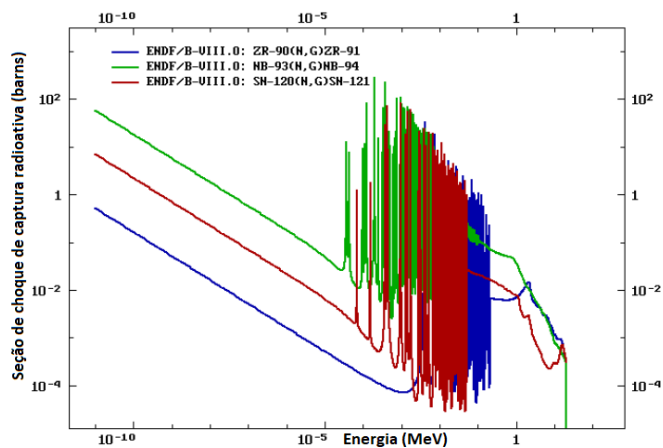
Fonte: Adaptado pelo autor da Tese do <https://www.nndc.bnl.gov/>[52].

Figura 3.21 - Seção de choque de captura radioativa dos principais nuclídeos componentes do AISI-348: ^{56}Fe , ^{52}Cr , e ^{58}Ni (base dados ENDF/B-VIII versão 0).



Fonte – Adaptado pelo autor da Tese do <https://www.nndc.bnl.gov/>[52].

Figura 3.22 - Seção de choque de captura radioativa dos principais nuclídeos componentes do ZIRLO™: ^{90}Zr , ^{93}Nb , e ^{120}Sn (base dados ENDF/B-VIII versão 0).



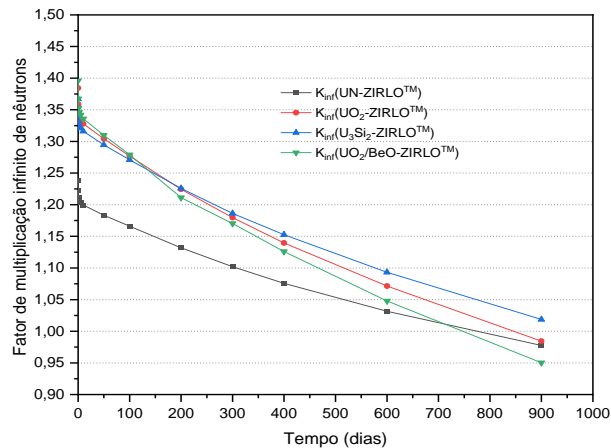
Fonte: Adaptado pelo autor da Tese do <https://www.nndc.bnl.gov/>[52].

3.3.2.2 Avaliação e análise da reatividade com a queima dos combustíveis ATF

Complementa-se a verificação e a análise do comportamento da reatividade com simulações envolvendo a queima do combustível no modelo de célula unitária. A queima do combustível nuclear produz inúmeros produtos de fissão, geralmente estes são absorvedores de nêutrons que contribuem para a redução da reatividade do sistema. No sentido oposto, a queima também produz elementos transurânicos físséis e fissionáveis, que podem contribuir para o aumento da reatividade por meio de reações de fissão ou conversão. Ressalta-se que neste trabalho não foram avaliados as reações nucleares $(n,2n)$ e (n,α) na faixa de energia $E > 1,85$ MeV para o isótopo ${}^9\text{Be}$ para avaliar a produção e o efeito da presença do ${}^6\text{Li}$ e ${}^3\text{H}$.

As Figuras 3.23 a 3.26 ilustram o comportamento da reatividade (fator de multiplicação infinito de nêutrons) em função do tempo de queima. As simulações da queima compreenderam um período de 900 dias visando verificar quais combinações de combustíveis e revestimentos superam o tempo do combustível de referência ($\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$).

Figura 3.23 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento de ZIRLO™



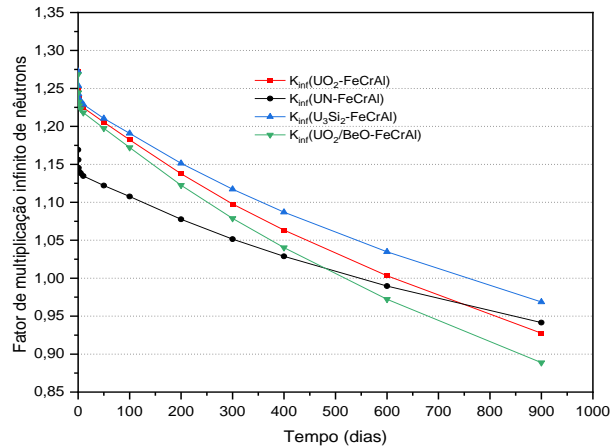
Fonte: Autor da Tese.

No comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis com o revestimento de ZIRLO™, verifica-se:

- o combustível U_3Si_2 supera a reatividade do UO_2 ao final de 900 dias de queima e possui reatividade positiva dentre os demais;
- o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ no início de vida apresenta reatividade superior ao $\text{UO}_2\text{+ ZIRLO}^{\text{TM}}$ (Tabela 3.8). No entanto, ao final de vida apresenta a menor reatividade dentre os demais combustíveis;
- o combustível UN apresenta a menor reatividade dentre os demais combustíveis com o revestimento de ZIRLO™ no início de vida (Tabela 3.8). No entanto, ao final de vida iguala-se a reatividade do $\text{UO}_2\text{+ ZIRLO}^{\text{TM}}$; e
- o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ é o primeiro atingir a reatividade negativa (aproximadamente após 750 dias de queima).

As mudanças do espectro de nêutrons ao longo da queima justificam as diferenças de comportamento observado no início de vida e no final de vida.

Figura 3.24 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento de FeCrAl .

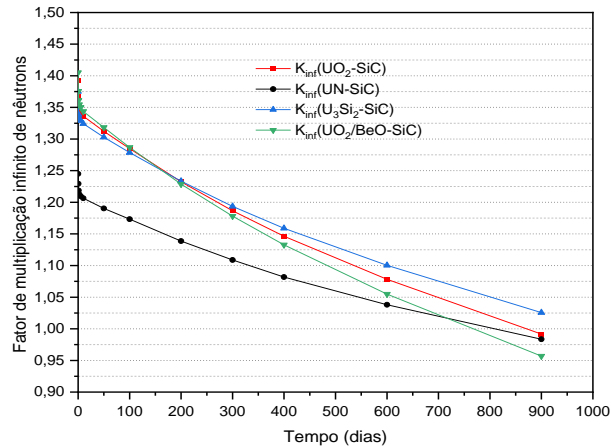


Fonte: Autor da Tese.

No comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis com revestimento de FeCrAl, verifica-se que:

- o combustível U_3Si_2 supera a reatividade do UO_2 ao final de 900 dias de queima, No entanto, nenhum combustível apresenta reatividade positiva ao final de 900 dias;
- o combustível U_3Si_2 possui reatividade superior e mantém-se com a reatividade positiva até aproximadamente 750 dias de queima, enquanto os demais não apresentam reatividade positiva;
- o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ é o primeiro combustível a perder a reatividade positiva em relação aos demais;
- o combustível U_3Si_2 e o UO_2 possuem reatividade similares no início de vida (Tabela 3.8), porém a reatividade do U_3Si_2 supera a do UO_2 ao longo da queima; e
- a diferença entre o primeiro combustível atingir a reatividade nula ($\text{UO}_2\text{-BeO}$) e o último (U_3Si_2) é de aproximadamente 250 dias.

Figura 3.25 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento de SiC .

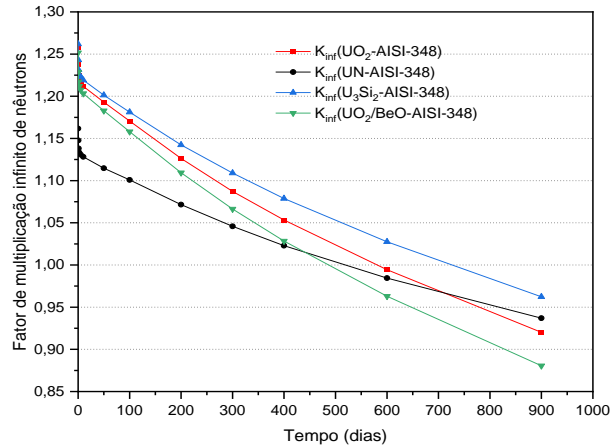


Fonte: Autor da Tese.

No comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis com o revestimento de SiC, verifica-se que:

- o combustível U_3Si_2 supera a reatividade do UO_2 ao final de 900 dias de queima e é o único que ainda possui reatividade positiva dentre os demais;
- o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ no início de vida apresenta reatividade superior ao $\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$ (Tabela 3.8). No entanto, ao final de vida apresenta a menor reatividade dentre os demais combustíveis;
- o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ é o primeiro combustível a perder a reatividade positiva em relação aos demais;
- a reatividade do combustível U_3Si_2 é menor do que do UO_2 no início de vida (Tabela 3.8), porém a reatividade do U_3Si_2 supera a do UO_2 ao longo da queima; e
- ao final de 900 dias a reatividade do combustível UN é muito próximo do UO_2 , apesar de ambas serem negativas.

Figura 3.26 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento de aço inoxidável AISI-348 .



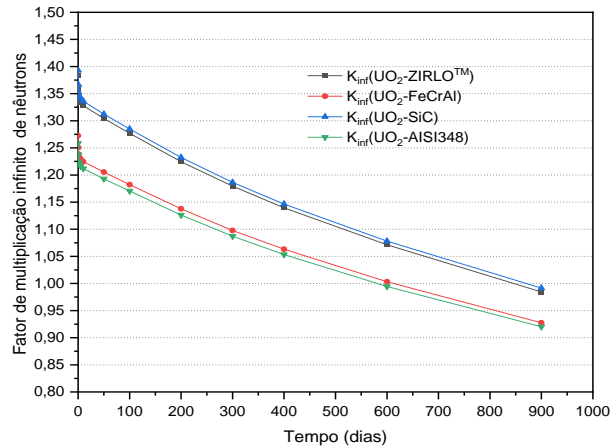
Fonte: Autor da Tese.

No comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos combustíveis com o revestimento de aço inoxidável AISI-348, verifica-se que:

- o combustível U_3Si_2 supera a reatividade do UO_2 ao final de 900 dias de queima. No entanto, todos os combustíveis apresentam reatividade negativa ao final de 900 dias;
- o combustível U_3Si_2 possui reatividade superior e mantém-se com a reatividade positiva até aproximadamente 700 dias de queima, enquanto os demais já não apresentam a reatividade positiva;
- o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ apresenta a menor reatividade em relação aos demais após aproximadamente 500 dias;
- a reatividade do combustível UN supera a do UO_2 ao final de 900 dias; e
- o período em que $\text{UO}_2\text{-BeO}$ permanece com a reatividade positiva é praticamente 40% do tempo do U_3Si_2 .

As Figuras 3.27 a 3.30 ilustram de forma semelhante as mesmas informações apresentadas nas Figuras 3.23 a 3.26 . No entanto, a apresentação das curvas são organizadas por tipo de revestimento. Esta forma permite ilustrar a influência de diversos revestimentos ao longo da queima para um determinado tipo de combustível.

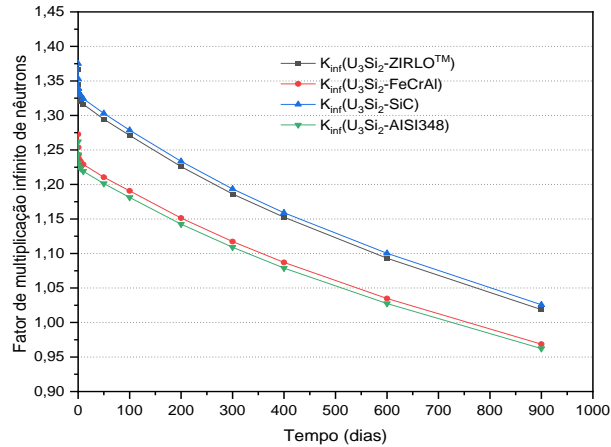
Figura 3.27 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, SiC e aço inoxidável AISI-348) com o combustível UO_2 .



Fonte: Autor da Tese.

Na Figura 3.27 destaca-se a baixa absorção de nêutrons do revestimento SiC quando comparado com os demais revestimentos, inclusive com o caso de referência formado com a liga de zircônio ZIRLO™, enquanto a absorção de nêutrons nas ligas de ferro, FeCrAl e aço inoxidável AISI-348, são praticamente comparáveis em reatividade.

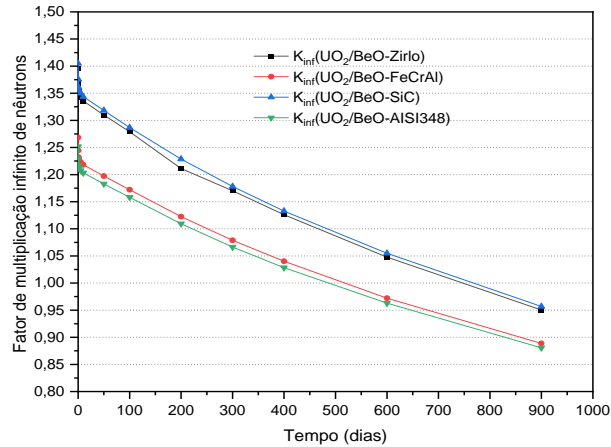
Figura 3.28 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, SiC e aço inoxidável AISI-348) com o combustível U_3Si_2 .



Fonte: Autor da Tese.

A reatividade na Figura 3.28 apresenta o comportamento similar ao da Figura 3.27 com destaque apenas na reatividade positiva do combustível U_3Si_2 quando comparada com a reatividade do UO_2 para os revestimentos de SiC e ZIRLO™.

Figura 3.29 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, SiC e aço inoxidável AISI-348) com o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$.

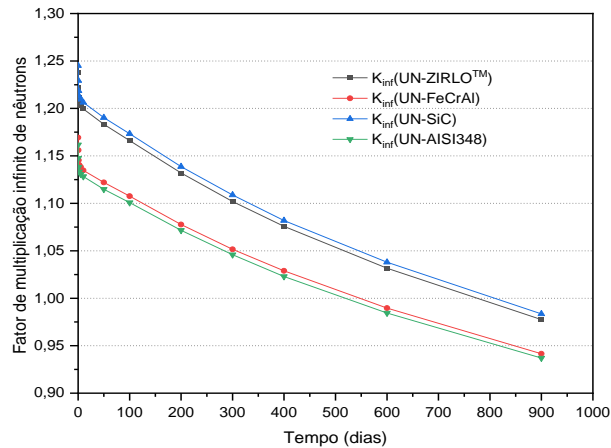


Fonte: Autor da Tese.

Nas curvas de reatividade da Figura 3.29 destaca-se o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ com o revestimento ZIRLO™. Este apresenta a reatividade superior à do UO_2 com o mesmo revestimento. Os comportamentos das reatividades das ligas à base de ferro são similares as Figuras 3.27 e 3.28.

As reatividades dos combustíveis $\text{UO}_2\text{-BeO} + \text{SiC}$ e $\text{UO}_2\text{-BeO} + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$ mantêm-se positiva por um tempo inferior ao combustível $\text{UO}_2 + \text{SiC}$, $\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$, $\text{U}_3\text{Si}_2 + \text{SiC}$ e $\text{U}_3\text{Si}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$.

Figura 3.30 – Comportamento da reatividade em função da queima de diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, SiC e aço inoxidável AISI-348) com o combustível UN.



Fonte: Autor da Tese.

Na Figura 3.30 destaca-se o curto período da reatividade positiva apresentado pelo combustível UN quando comparado com os demais combustíveis, independente do tipo de revestimento.

Os resultados das reatividades da célula unitária ao longo da queima apresentados nas Figuras 3.23 a 3.30 conjuntamente com os resultados obtidos (Tabela 3.8) para o início de vida, evidenciam que somente as informações baseadas nos cálculos de reatividades no início de vida não são suficientes para selecionar o candidato ao combustível ATF com melhor desempenho neutrônico.

A mudança do comportamento da reatividade entre o início e o final de vida evidência a importância da mudança espectral de nêutrons das diferentes combinações de combustível e revestimento.

3.3.2.3 Reatividade dos elementos de combustível com a queima

A análise e verificação neutrônica do elemento de combustível visa verificar o comportamento da reatividade ao longo da queima do combustível com a presença de tubos guias, tubo de instrumentação e varetas de veneno queimável considerando a potência típica do reator AP-1000.

Os seguintes dados são adotados na modelagem:

- arranjo geométrico 17x17 típico de reatores PWR com 264 varetas de combustível, 24 tubos guias, 16 varetas de veneno queimável de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ e 1 tubo de instrumentação, conforme o arranjo apresentado na Figura 3.30 [51];

- vareta de veneno queimável de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ contém 6% em peso de Gd_2O_3 e 94% em peso de UO_2 com enriquecimento de 1,7% de ^{235}U com o revestimento de ZIRLO™;

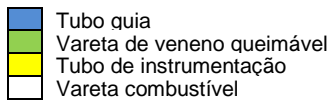
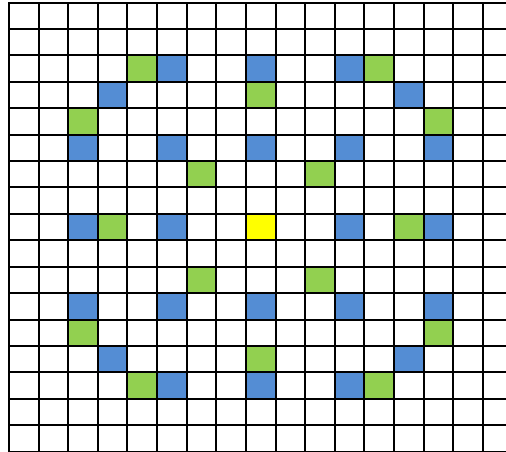
- vareta de veneno queimável de $\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$ possui as mesmas dimensões (diâmetro da pastilha e diâmetro externo do revestimento) do combustível;

- tubo guia com o raio interno de 0,56134 cm e externo de 0,61214 cm e constituído de liga à base de zircônio ZIRLO™; e

- temperaturas de 550 e 900 K adotadas para as regiões do moderador e do combustível, respectivamente.

As simulações da reatividade do elemento de combustível foram realizadas com e sem a presença de varetas de veneno queimável no elemento de combustível com diferentes combinações de revestimento e combustível. Ressalta-se que, no reator AP-1000, o veneno queimável pode ser constituído de diboreto de zircônio (fina camada de ZrB_2 cobrindo a pastilha combustível) ou óxido de gadolínio.

Figura 3.31 – Elemento de combustível com varetas de combustível, varetas de veneno queimável, tubo guias e tubo de instrumentação.

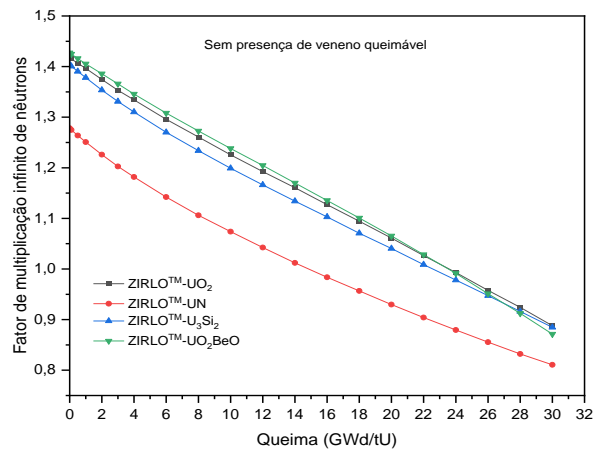


Fonte: Autor da Tese baseado na referência [53].

Igualmente às simulações realizadas para as células unitárias, o programa SERPENT foi utilizado para todas as simulações das diversas combinações de combustíveis e revestimentos candidatos a combustível ATF. Destaca-se que neste trabalho não foram avaliados os possíveis impactos na reatividade do elemento de combustível as reações nucleares $(n,2n)$ e (n,α) na faixa de energia $E > 1,85$ MeV para o isótopo ${}^9\text{Be}$ quanto a produção de ${}^6\text{Li}$ e ${}^3\text{H}$.

As Figuras 3.32 a 3.35 ilustram os resultados obtidos da simulação para o comportamento da reatividade em função da queima do elemento de combustível sem a presença das varetas de veneno queimável.

Figura 3.32 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível sem a presença de varetas de veneno queimável, e com varetas de combustível com o revestimento de ZIRLO™ e diferentes tipos de combustível (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$).



Fonte: Autor da Tese.

Observa-se na Figura 3.32, que o comportamento das curvas de reatividade não mantém a similaridade com as obtidas com os cálculos das células unitárias, conforme apresentado na Figura 3.23 .

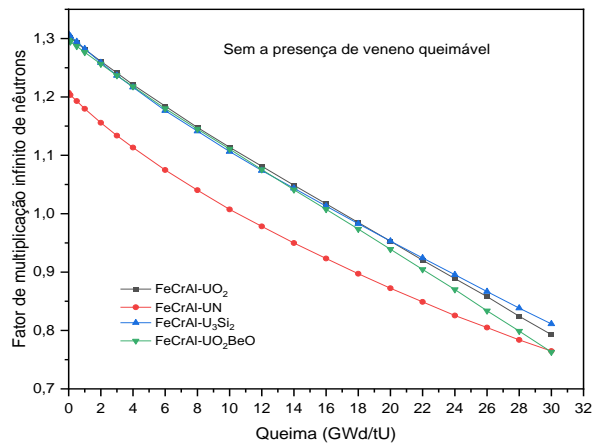
Os três tipos de combustíveis, UO_2 , U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$, ao final do ciclo possuem reatividades próximas, enquanto que o combustível UN apresenta sempre a menor reatividade em relação aos demais. Estes resultados evidenciam a contribuição e influência do arranjo das varetas de combustível e a presença de materiais estruturais (tubos guia e tubo de instrumentação) na reatividade do sistema.

A geometria básica de um elemento de combustível é definida pela distância centro a centro entre as varetas denominado de *pitch* e o arranjo, que representa o grau de moderação do sistema, enquanto a presença dos tubos guias pode contribuir para redução da reatividade local devido à ausência de combustível e à presença de um material absorvedor nesta posição. Em contrapartida, as varetas de combustível próximas às regiões dos tubos guias

possuem maior moderação de nêutrons contribuindo para aumento da reatividade localmente.

A verificação da relação entre o ganho e a perda de reatividade devido ao arranjo e à distribuição de outras estruturas constituem parte do projeto de um elemento de combustível.

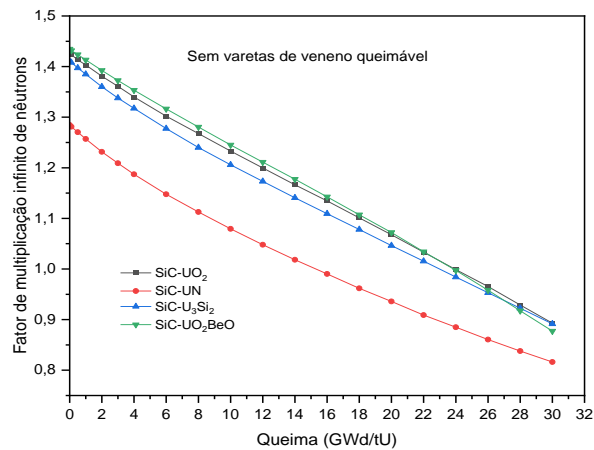
Figura 3.33 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível sem a presença de varetas de veneno queimável, e considerando varetas de combustível com o revestimento de FeCrAl e diferentes tipos de combustível (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$).



Fonte: Autor da Tese.

Os comportamentos das curvas de reatividades são similares à Figura 3.32, excetuando o período de queima na qual a reatividade positiva é menor quando comparada com o revestimento de ZIRLOTM. Fato já observado nas curvas de reatividade obtidas dos cálculos de células unitárias com liga à base de ferro com o revestimento.

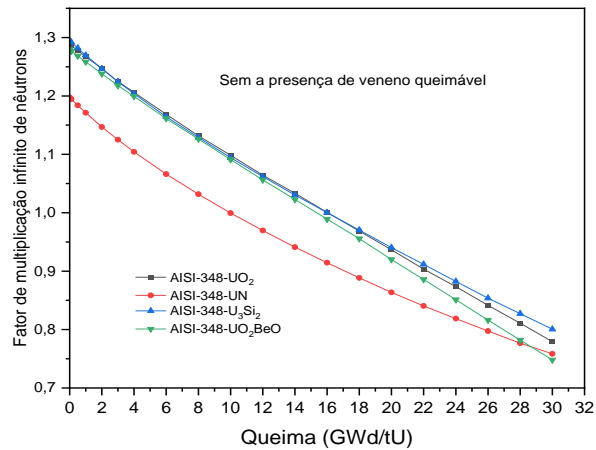
Figura 3.34 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível sem a presença de varetas de veneno queimável, e varetas de combustível com o revestimento de SiC, e diferentes tipos de combustível (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$).



Fonte: Autor da Tese.

Destaca-se a similaridade das curvas de reatividades com a Figura 3.32, assim como o período de queima onde a reatividade é positiva. Os valores da queima máxima (aproximadamente 24 GWd/tU) com reatividade positiva são praticamente os mesmos para os combustíveis UO_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$ com revestimentos de SiC e ZIRLOTM.

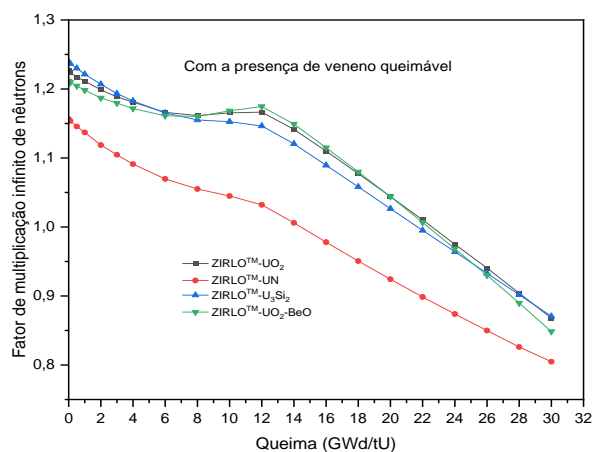
Figura 3.35 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível sem a presença de varetas de veneno queimável, e com varetas de combustível com diferentes tipos de combustível (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$), e o revestimento de aço inoxidável AISI-348.



Fonte: Autor da Tese.

As curvas de reatividade são similares ao caso com o revestimento de FeCrAl (Figura 3.24), inclusive a queima máxima atingida com a reatividade positiva (aproximadamente 17 GWd/tU).

Figura 3.36 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível com a presença de varetas de veneno queimável e varetas de combustível com o revestimento de ZIRLO™, e diferentes combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$).



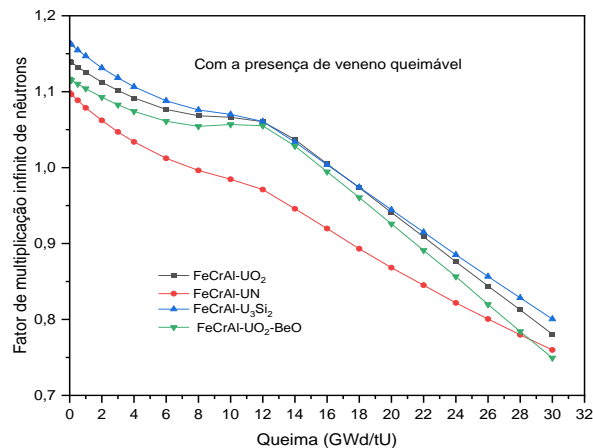
Fonte: Autor da Tese.

O comportamento das curvas de reatividades com a presença das varetas de veneno queimável difere das curvas da Figura 3.32. O comportamento da reatividade pode ser dividido em três etapas: no início de vida ocorre uma queda acentuada na reatividade, gradativamente ao longo da queima a taxa de redução da reatividade diminui e, tende a se estabilizar e até pode apresentar uma tendência de aumento e na fase final com o consumo do veneno queimável, a taxa de redução da reatividade tende para os valores próximos àqueles observados sem a presença de veneno queimável.

Este comportamento é característico para o veneno queimável de óxido de gadolínio devido à presença dos isótopos ímpares e à cadeia de transmutação do gadolínio. Os isótopos ^{155}Gd e ^{157}Gd possuem seções de choque de captura térmica de nêutrons relativamente elevada, 60.900 e 254.000 barns, respectivamente [54].

As taxas de variações de reatividade ao longo da queima do elemento de combustível com a presença de veneno queimável dependem: do percentual de óxido de gadolínio presente no UO_2 , a quantidade e a localização das varetas com veneno queimável no elemento de combustível. Idealmente, a presença de veneno queimável no elemento de combustível não deve impor uma absorção residual ao final do ciclo.

Figura 3.37 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível com a presença de varetas de veneno queimável e varetas de combustível com o revestimento de FeCrAl, e diferentes combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$).

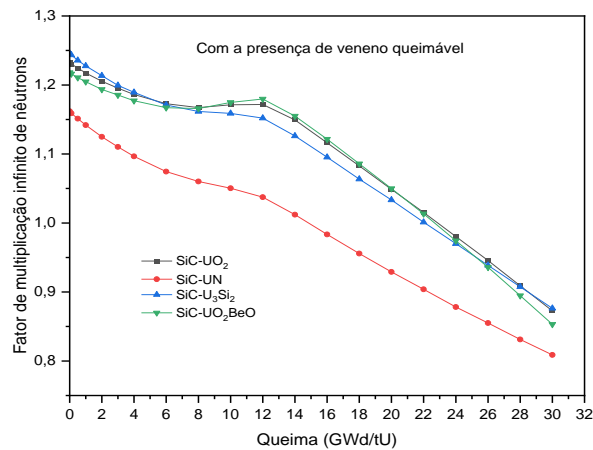


Fonte: Autor da Tese.

Observa-se que a reatividade mantém-se positiva até os valores de queima similares ao caso do elemento de combustível sem a presença de veneno queimável (Figura 3.32). A comparação entre os dois casos (sem a presença e com a presença de veneno queimável) permite observar a penalidade devido a absorção residual do veneno queimável.

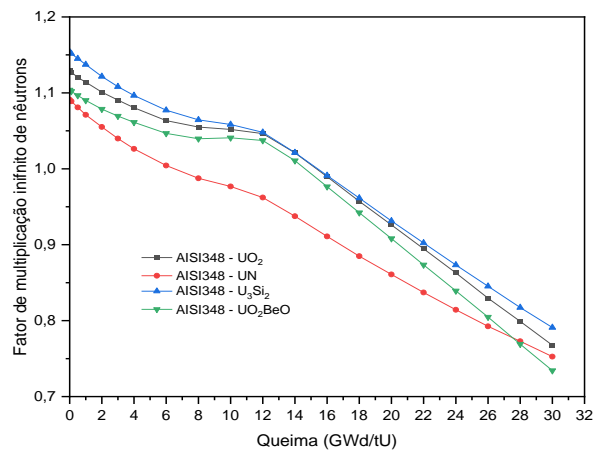
A forma da curva difere da Figura 3.36 (revestimento de ZIRLOTM), principalmente na região de estabilidade da reatividade.

Figura 3.38 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível com a presença de varetas de veneno queimável considerando varetas de combustível com o revestimento de SiC, e diferentes tipos de combustível (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$).



Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.39 – Comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da queima do elemento de combustível com a presença de varetas de veneno queimável, e varetas de combustível com o revestimento de aço inoxidável AISI-348, e diferentes combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$).

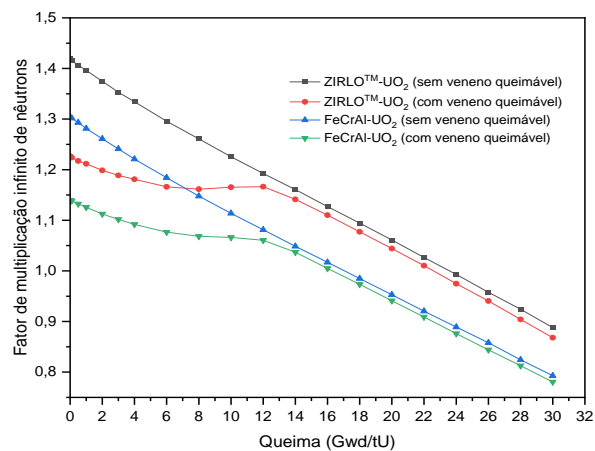


Fonte: Autor da Tese.

As reatividades de diferentes combinações de combustíveis e revestimentos com a presença de veneno queimável são similares aos casos sem a presença de veneno queimável. No entanto, as formas das curvas de reatividade são afetadas pela presença do veneno queimável.

Além disso, observa-se uma penalidade residual na reatividade associada com a parte não consumida do veneno queimável ao longo do ciclo. A Figura 3.40 ilustra as curvas de reatividade com e sem a presença de veneno queimável com os revestimento de ZIRLOTM e FeCrAl para exemplificar a penalidade na reatividade.

Figura 3.40 – Penalidade na reatividade em função da queima do elemento de combustível devido a presença de veneno queimável considerando varetas de combustível com os revestimentos ZIRLOTM e FeCrAl com o combustível UO₂.



Fonte: Autor da Tese.

Destacam-se as curvas paralelas (com e sem veneno queimável) ao final do ciclo evidenciando a existência da penalidade residual na reatividade.

3.3.3 Razão de moderação dos combustíveis tolerantes a falha

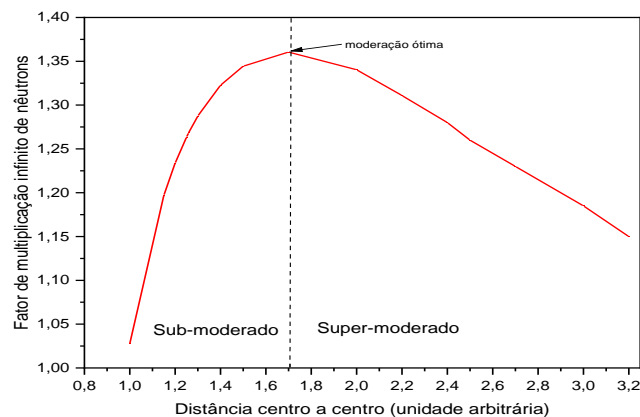
A razão de moderação de um combustível é a relação entre a quantidade de material combustível e o moderador. Este parâmetro também contribui para a reatividade do sistema combustível e basicamente reflete o balanço de nêutrons devido às reações nucleares de absorção, fuga, termalização e fissão. No projeto de um elemento de combustível para reatores LWR, a moderação é um fator fundamental sob o ponto de vista de reatividade e da segurança.

A razão de moderação pode variar da condição sub-moderada até super-moderada, passando pelo ponto de moderação ótima em função da distância centro a centro entre as varetas de combustível no arranjo do elemento de combustível.

Os reatores tipo LWR são projetados com a moderação na condição sub-moderada por questão de segurança. A curva da razão de moderação de forma geral para reatores tipo LWR apresenta um comportamento crescente e, posteriormente, decrescente a partir do ponto de máximo (razão de moderação ótima).

A Figura 3.41 ilustra o comportamento típico da reatividade expresso em termos do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função da distância centro a centro das varetas de combustível.

Figura 3.41 – Reatividade em função da razão de moderação.



A distância centro a centro entre as varetas de combustível representa a quantidade de moderação de nêutrons mantendo-se a geometria do combustível constante, equivalente à razão de moderação (quantidade de hidrogênio/quantidade de urânio – H/U).

Na região à esquerda do ponto da razão de moderação ótima da Figura 3.41, o núcleo do reator é denominado de sub-moderado. A moderação de nêutrons é insuficiente e conseqüentemente muitos nêutrons são absorvidos, principalmente na região de ressonância do isótopo ^{238}U . Enquanto, na região direita do ponto de razão de moderação ótima da Figura 3.41, o núcleo do reator é denominado de super-moderado; com muito moderador presente e muita absorção parasitária neste material.

A partir da curva da razão de moderação, pode-se observar que a relação moderador-combustível é determinante para o comportamento da reatividade e a segurança intrínseca. Nos reatores com núcleos super-moderado (à direita do ponto de máximo da Figura 3.41), se a densidade do moderador diminui decorrente do aumento da temperatura, o valor da razão de moderação do reator desloca para o lado esquerdo da curva e representa uma condição de aumento de reatividade, representando uma realimentação positiva na reatividade.

Essa condição poderá ocorrer em um transiente de aumento de potência, que ocasiona aumento da temperatura do moderador, redução da densidade do moderador, aumento da reatividade e aumento contínuo da potência. Essa condição é indesejável do ponto de vista da segurança nuclear.

Portanto, o projeto de um elemento de combustível seguro deve ter a razão de moderação localizada à esquerda do ponto de razão de moderação ótima, a fim de garantir a segurança intrínseca do núcleo do reator.

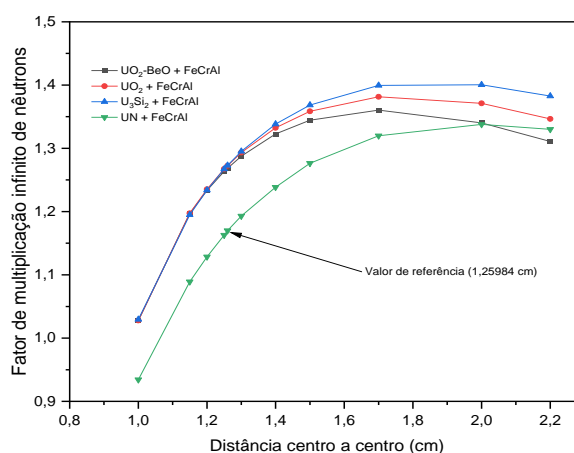
A verificação e a avaliação da reatividade em função do grau de moderação para diferentes combinações de revestimentos e combustíveis, além de verificar a segurança do núcleo do reator poderá subsidiar a elaboração de uma estratégia para aumentar a reatividade do sistema combustível, sem no entanto violar os requisitos de segurança.

A reatividade das diversas combinações de combustível e revestimento para diferentes moderações são obtidas por meio de simulações de células unitárias, utilizando o mesmo modelo de célula unitária dos cálculos realizados na Seção 3.3.2.2 deste Capítulo.

As Figuras 3.42 a 3.45 ilustram os resultados obtidos para o comportamento do fator de multiplicação infinito de nêutrons em função do grau de moderação para os diferentes combustíveis e um determinado tipo de revestimento. Destaca-se nas curvas o valor do *pitch* de referência do projeto do reator AP-1000 para subsidiar a comparação.

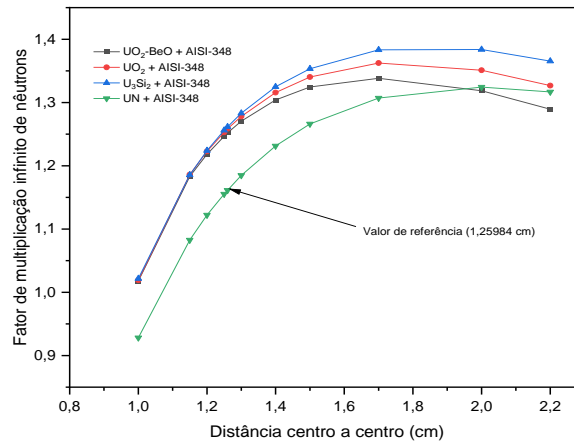
Observa-se o comportamento similar das curvas na região sub-moderada, porém com o aumento do grau de moderação observa-se a divergência entre as curvas, onde determinadas combinações de combustível e revestimento apresentam taxa de aumento da reatividade variável com o aumento do grau de moderação. Além disso, verifica-se a possibilidade de aumento considerável de reatividade com a mudança do espaçamento centro a centro das varetas de combustível (*pitch*).

Figura 3.42 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons para diferentes combustíveis (UO_2 , $\text{UO}_2\text{-BeO}$, U_3Si_2 e UN) com o revestimento de FeCrAl em função do grau de moderação.



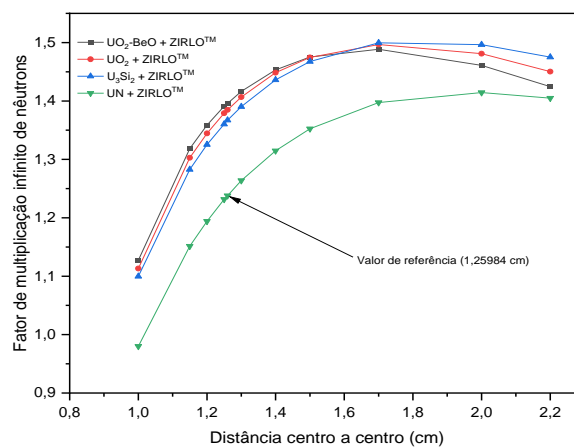
Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.43 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons para diferentes combustíveis (UO_2 , $\text{UO}_2\text{-BeO}$, U_3Si_2 e UN) com o revestimento de AISI-348 em função do grau de moderação.



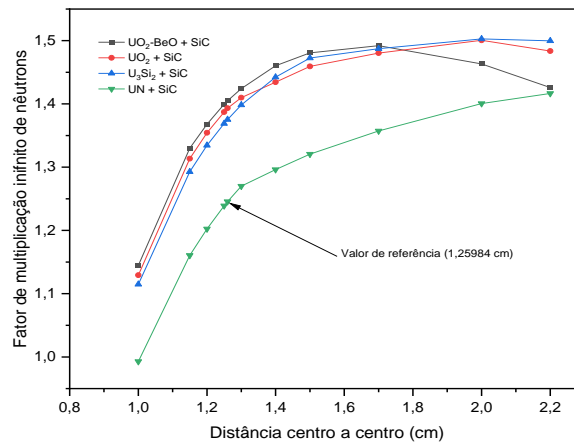
Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.44 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons para diferentes combustíveis (UO_2 , $\text{UO}_2\text{-BeO}$, U_3Si_2 e UN) com o revestimento de ZIRLOTM em função do grau de moderação.



Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.45 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons para diferentes combustíveis (UO_2 , $\text{UO}_2\text{-BeO}$, U_3Si_2 e UN) com o revestimento de SiC em função do grau de moderação.



Fonte: Autor da Tese.

Dentre os resultados obtidos para os fatores de multiplicação infinito de nêutrons em função do grau de moderação, destaca-se o comportamento do combustível UN, com menor reatividade em relação aos demais na região sub-moderada. No entanto, verifica-se uma taxa de aumento sempre crescente atingindo o ponto de valor máximo em função da moderação. Este comportamento não é observado para algumas combinações de revestimento e combustível (por exemplo: $\text{UO}_2\text{-BeO} + \text{SiC}$, $\text{UO}_2 + \text{AISI-348}$)

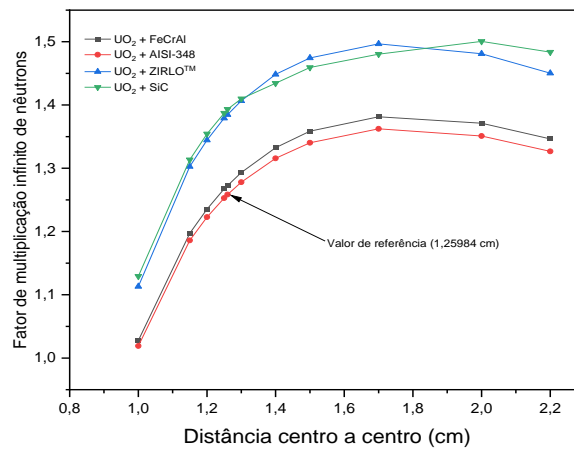
O comportamento evidencia que o combustível UN com diferentes tipos de revestimento (ZIRLOTM, SiC, FeCrAl e AISI-348) ainda não atingiu o ponto da razão de moderação ótima, ou encontra-se muito próximo deste, enquanto os demais combustíveis já atingiram a razão de moderação e encontram-se na região super-moderada para o intervalo de moderação considerado. Além disso, os valores da reatividade do combustível UN com os revestimentos de FeCrAl e AISI-348 superam do combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$, conforme as Figuras 3.42 e 3.43.

Os demais combustíveis (UO_2 , $\text{UO}_2\text{-BeO}$ e U_3Si_2) exibem comportamentos similares na região sub-moderada. Na região super-moderada, destaca-se o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$, que apresenta maior redução da reatividade com o aumento da moderação em relação aos demais combustíveis (UO_2 e U_3Si_2). Destaca-se no $\text{UO}_2\text{-BeO}$ a presença do berílio, que atua na moderação. Dessa forma, este combustível em relação aos demais já apresenta uma condição de moderação maior.

As curvas dos fatores de multiplicação infinito de nêutrons em função do grau de moderação evidenciam a existência de uma margem segura para aumentar a reatividade com o aumento da moderação em relação ao valor de referência (distância centro a centro de 1,25984 cm).

De forma similar, as Figuras 3.42 a 3.45 e as Figuras 3.46 a 3.49 também ilustram o comportamento das curvas de reatividade em função do grau de moderação para um determinado combustível com os diferentes tipos de revestimentos.

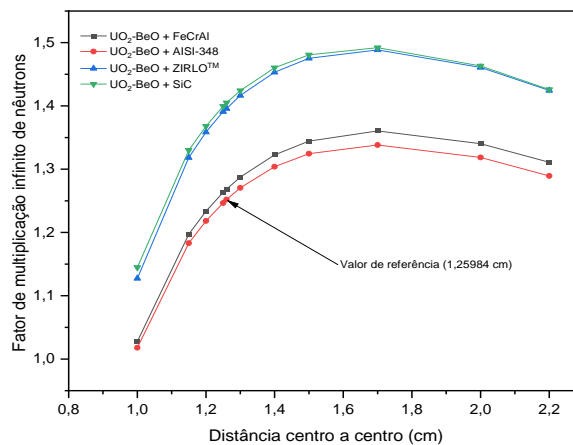
Figura 3.46 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons do combustível UO_2 com diferentes tipos de revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do grau de moderação.



Fonte: Autor da Tese.

Observa-se que todos os combustíveis atingiram o ponto de razão de moderação ótima. No entanto, apenas o combustível $\text{UO}_2 + \text{SiC}$ apresenta o ponto de moderação ótima maior do que os demais combustíveis.

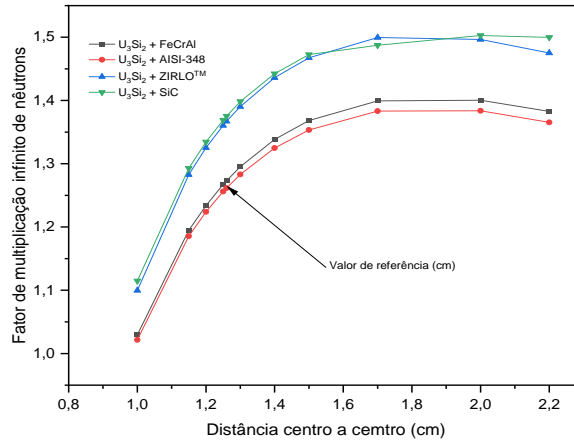
Figura 3.47 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons do combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ com diferentes revestimentos (ZIRLOTM, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do grau de moderação.



Fonte: Autor da Tese.

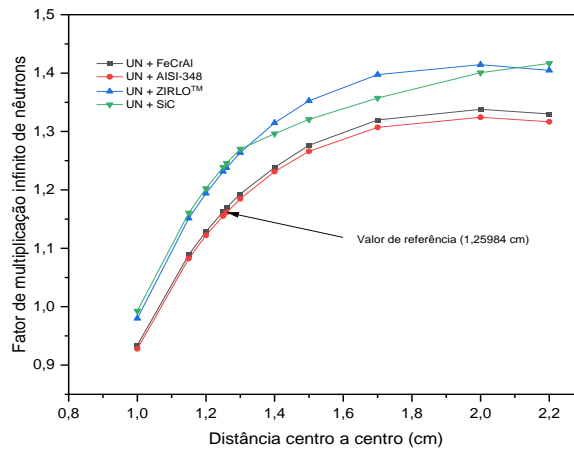
Observa-se o comportamento similar e os valores próximos entre as curvas de $\text{UO}_2\text{-BeO}$ com os revestimentos de SiC e ZIRLOTM para toda a faixa de moderação, enquanto para os revestimentos de FeCrAl e AISI-348 o comportamento das curvas são similares e muito próximos da região sub-moderada, e posteriormente divergindo na região super-moderada.

Figura 3.48 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons do combustível U_3Si_2 com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do grau de moderação.



Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.49 – Fator de multiplicação infinito de nêutrons do combustível UN com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do grau de moderação.



Fonte: Autor da Tese.

Observa-se na Figura 3.49 para o combustível UN com revestimento SiC o comportamento sempre crescente da curva de reatividade, evidenciando que ainda não atingiu o ponto de razão de moderação ótima quando comparado com as demais combinações de combustível e revestimento. Igualmente aos demais casos, pode-se concluir que existe uma margem segura para aumentar a reatividade com o aumento da moderação em relação ao caso referência (distância centro a centro de 1,2598 cm).

As diferenças de reatividade entre as diversas combinações de combustível e revestimento em função do grau de moderação ilustram a dependência com o espectro de nêutrons do sistema.

Os combustíveis avaliados possuem densidades que variam de 10,16 até 14,42 g/cm³ ($\rho_{U_3Si_2} = 11,3$ g/cm³, $\rho_{UO_2} = 10,96$ g/cm³, $\rho_{UN} = 14,42$ g/cm³ e $\rho_{UO_2-BeO} = 10,16$ g/cm³). Os revestimentos também podem contribuir para a mudança do espectro de nêutrons no sistema combustível.

Dessa forma, uma avaliação e análise do espectro de nêutrons poderão contribuir para o melhor entendimento da reatividade do sistema.

3.3.4 Espectro de energia dos nêutrons dos combustíveis candidatos a ATF

A reatividade do sistema combustível deve ser avaliada também sob o ponto de vista do espectro de energia dos nêutrons, uma vez que a presença de materiais absorvedores no sistema modifica o espectro de energia dos nêutrons com energia maior ou menor, ou seja, um aumento ou decréscimo na fração de nêutrons com energias mais altas e menor fração de nêutrons térmicos responsáveis pelas fissões em reatores tipo LWR.

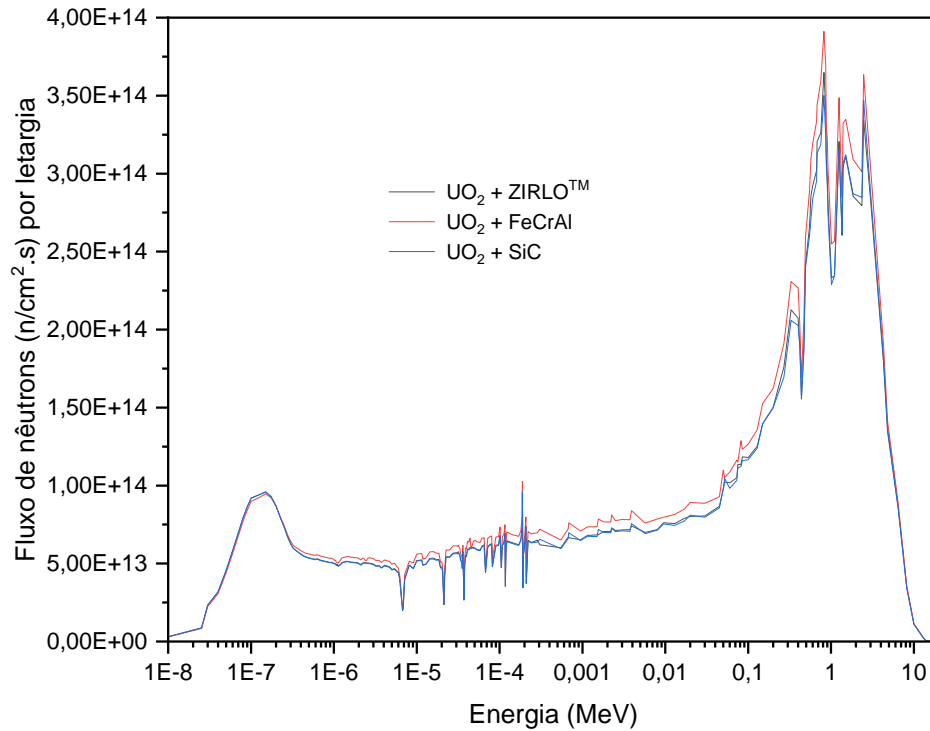
A presença e/ou aumento de materiais absorvedores de nêutrons pode estar associada com a escolha do combustível e/ou revestimento e, também, pela queima do combustível nuclear com a produção dos produtos de fissão absorvedores de nêutrons e materiais férteis (nuclídeos de urânio e plutônio).

A presença de maior ou menor quantidade de materiais férteis no início de vida e a sua produção afeta a reatividade do sistema. Inicialmente, foram avaliados os espectros de energia dos nêutrons para as diferentes combinações de combustíveis e de revestimentos por meio de simulação de uma célula unitária adotando-se o mesmo modelo geométrico, condições iniciais e de contorno utilizados nas análises efetuadas na Seção 3.3.2.1.

O fluxo de nêutrons é relativo a uma célula unitária com as regiões de combustível, vazio, revestimento e moderador. As Figuras de 3.50 a 3.66 apresentam as diversas curvas do comportamento do espectro de energia dos nêutrons para um determinado combustível com diferentes revestimentos (ZIRLOTM, FeCrAl e SiC).

No conjunto de curvas não foram incluídas os dados do revestimento de aço inoxidável AISI-348, uma vez que apresenta um comportamento bastante similar e próximo da liga de FeCrAl, conforme verificados nos resultados das Seções anteriores (3.3.2.1 a 3.3.2.3).

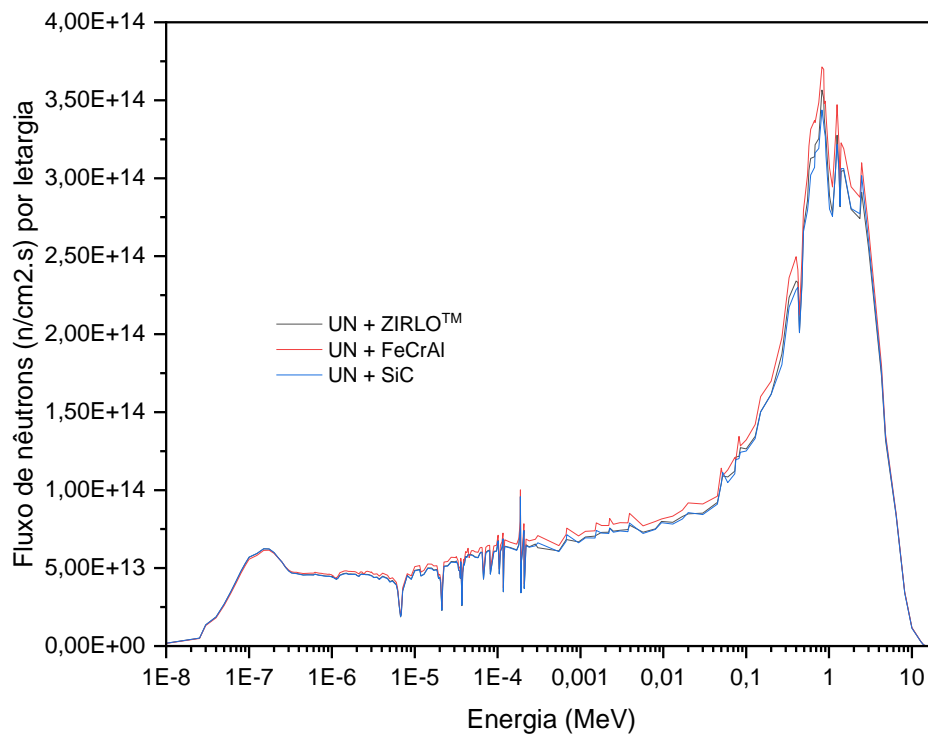
Figura 3.50 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia para o combustível UO_2 com diferentes revestimentos (ZIRLOTM, FeCrAl e SiC) em função da energia.



Fonte: Autor da Tese.

Na Figura 3.50 destacam-se as similaridades e as pequenas diferenças entre as curvas dos diferentes sistemas de combustível. Portanto, observa-se pouca influência do revestimento no espectro de energia dos nêutrons para combustível de UO_2 , principalmente na região de energia térmica (0,0 – 0,625 eV).

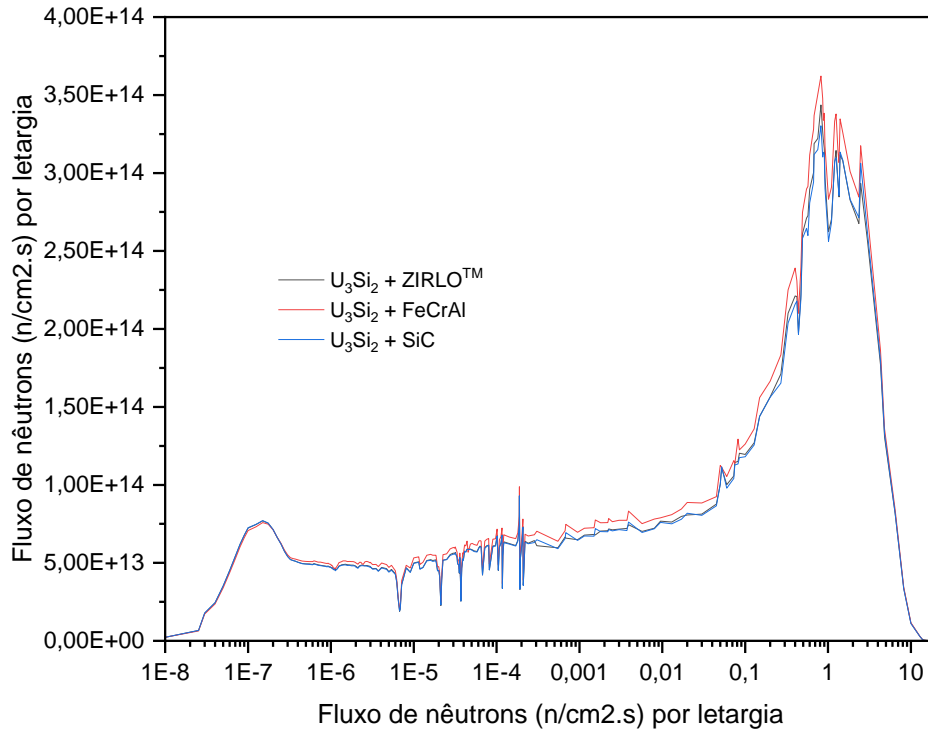
Figura 3.51 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia para o combustível UN com diferentes revestimentos (ZIRLO™, FeCrAl e SiC) em função da energia.



Fonte: Autor da Tese.

De maneira similar as curvas da Figura 3.50, a mudança de revestimento afeta pouco o espectro de energia dos nêutrons para combustível de UN.

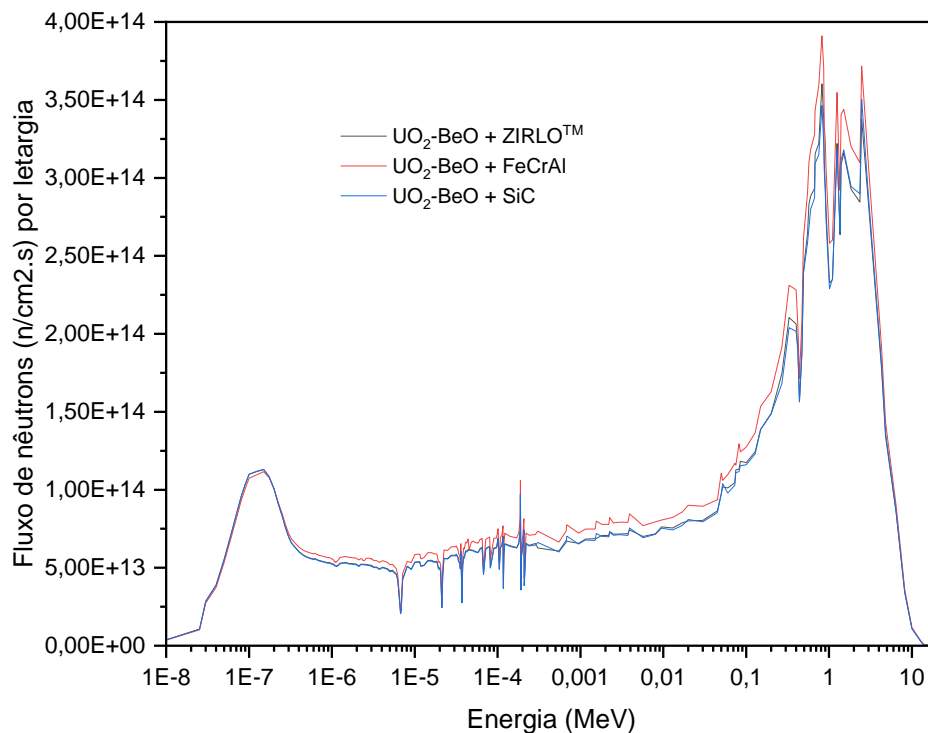
Figura 3.52 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia para o combustível U_3Si_2 com diferentes revestimentos (ZIRLOTM, FeCrAl e SiC) em função da energia.



Fonte: Autor da Tese.

De forma similar as curvas das Figuras 3.50 e 3.51, a mudança de revestimento afeta pouco o espectro de energia dos nêutrons para combustível de U_3Si_2 .

Figura 3.53 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ com diferentes revestimentos (ZIRLOTM, FeCrAl e SiC) em função da energia.



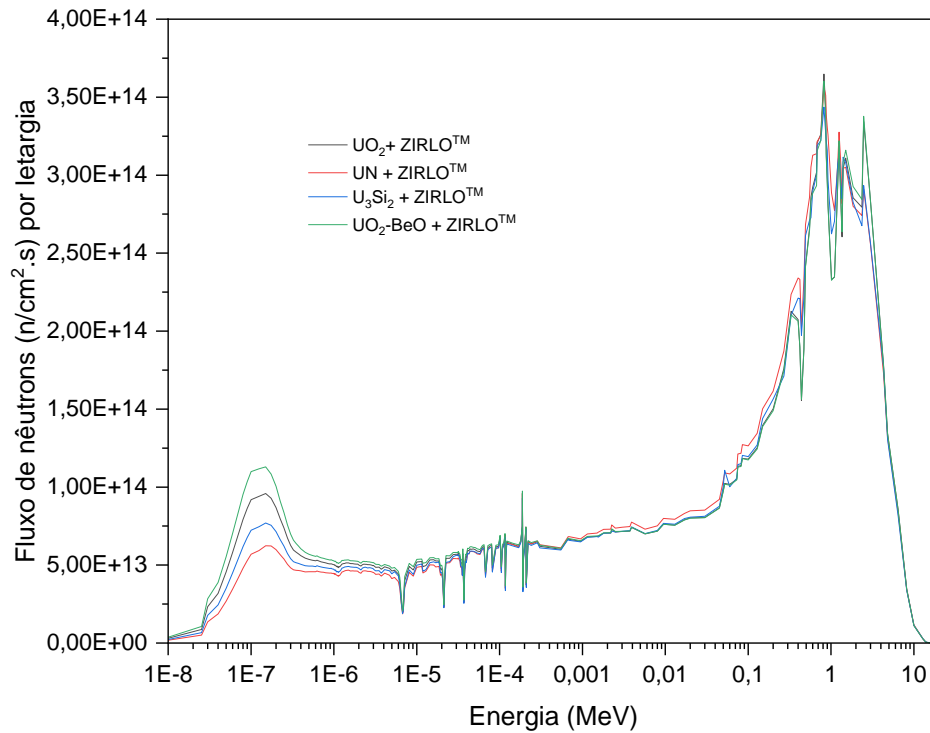
Fonte: Autor da Tese.

Igualmente as curvas das Figuras anteriores (3.50, 3.51 e 3.52), a mudança de revestimento afeta pouco o espectro de energia dos nêutrons para combustível de $\text{UO}_2\text{-BeO}$.

As Figuras 3.54 a 3.69 ilustram as curvas dos diferentes espectros de energia dos nêutrons para um dado revestimento com diferentes tipos de revestimento.

Nestas figuras, destaca-se a influência maior do material combustível no espectro de energia dos nêutrons do sistema combustível quando comparado com a influência do revestimento.

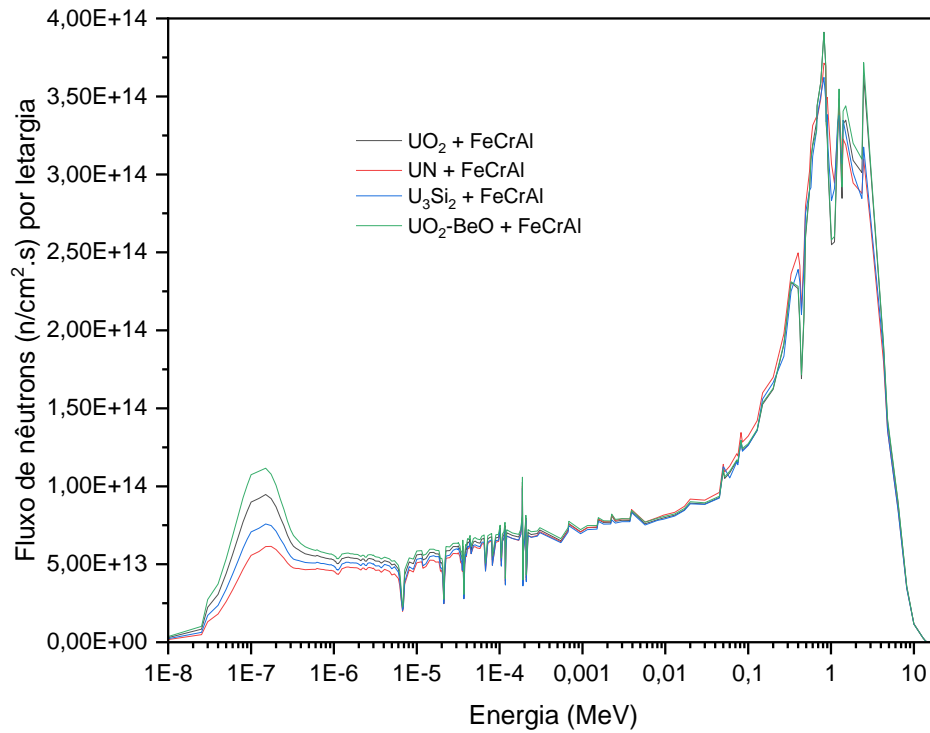
Figura 3.54 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o revestimento ZIRLO™ e diferentes tipos de combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 , $\text{UO}_2\text{-BeO}$) em função da energia.



Fonte: Autor da Tese.

Destacam-se principalmente as diferenças dos fluxos de nêutrons na região de energia térmica dos nêutrons (0 – 0,625 eV), o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ apresenta o maior fluxo enquanto o combustível UN o menor fluxo.

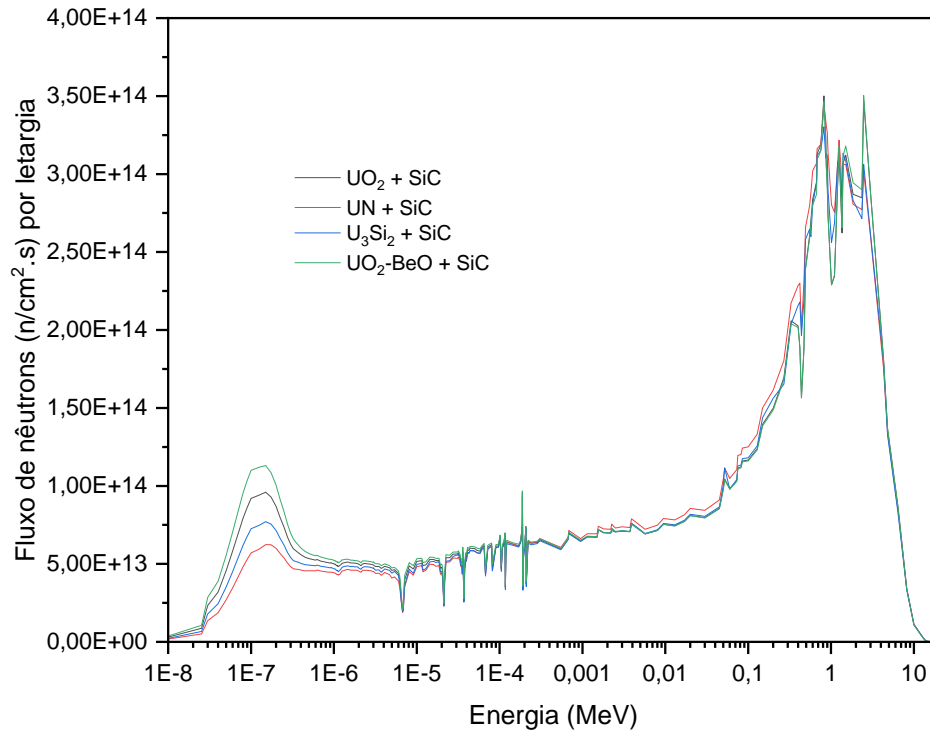
Figura 3.55 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o revestimento FeCrAl e diferentes tipos de combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 , $\text{UO}_2\text{-BeO}$) em função da energia.



Fonte: Autor da Tese.

O comportamento das curvas na Figura 3.55 é similar ao das curvas da Figura 3.54.

Figura 3.56 – Fluxo de nêutrons por unidade de letargia com o revestimento SiC e diferentes tipos de combustíveis (UO_2 , UN, U_3Si_2 , $\text{UO}_2\text{-BeO}$) em função da energia.



Fonte: Autor da Tese.

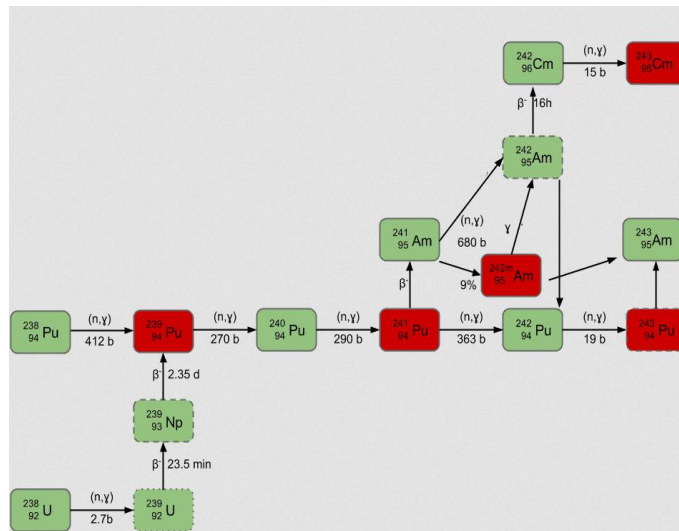
Os comportamentos das curvas do espectro de energia dos nêutrons evidenciam a influência do tipo de combustível quando comparados com os diferentes revestimentos, principalmente na região de energia térmica. Desta forma, a escolha do material de combustível também deve considerar o espectro de energia dos nêutrons do sistema combustível. Com relação ao comportamento do espectro com a queima do combustível, este tende a se tornar mais epitérmico e rápido, favorecendo os materiais que tem seções de choque de absorção de nêutrons maiores na região térmica e desfavorecendo os elementos que possuem seções de choque de absorção maior nas regiões de energia epitérmica e rápida.

3.3.5 Razão de conversão dos combustíveis candidatos a ATF

A reatividade do sistema combustível varia ao longo da queima do combustível devido ao consumo do combustível (nuclídeo físsil), à produção dos produtos de fissão absorvedores de nêutrons e à produção de novos nuclídeos férteis. Estes últimos podem converter-se em nuclídeos físseis por meio de reações de captura de nêutrons e/ou decaimento nuclear.

A Figura 3.57 ilustra uma parte da cadeia de transmutação do isótopo do urânio ^{238}U com os diversos nuclídeos, que serão produzidos pelas reações de captura de nêutrons e decaimento radioativo. Nesta cadeia de transmutação, ocorre a formação de nuclídeos físseis como ^{239}Pu , ^{241}Pu , que contribuem para o aumento da reatividade do sistema combustível ao longo da queima.

Figura 3.57 – Cadeia de transmutação do nuclídeo ^{238}U com formação de nuclídeos físseis.



Fonte - Adaptado pelo autor da Tese da referência [55].

A capacidade de converter isótopos férteis em isótopos físseis pode ser medida pela razão de conversão (CR), que é definida pela razão de número e átomos físseis produzidos por átomos consumidos:

$$CR = \frac{\text{Número de átomos férteis convertido}}{\text{Número de átomos físséis consumido}} = \frac{\text{Número de átomos físséis produzidos}}{\text{Número de átomos físséis consumidos}}$$

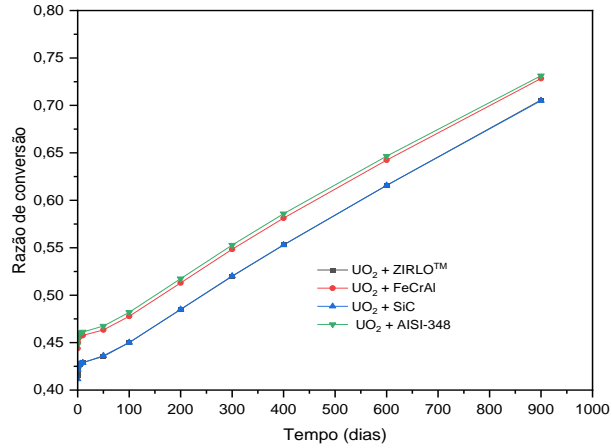
A grandeza é diretamente relacionada com número de nêutrons produzidos por nêutrons absorvidos. A existência e a quantidade de materiais férteis, a seção de choque de captura de nêutrons e o espectro de energia ao longo da queima são fundamentais para a razão de conversão do sistema combustível.

A reatividade disponível ao longo da queima pode depender bastante da razão de conversão. Dessa forma, a avaliação da razão de conversão dos diferentes tipos de combustível poderá também subsidiar a escolha de um tipo de combustível e revestimento do ponto de vista neutrônico. As curvas das razões de conversão em função da queima serão obtidas por meio de simulações utilizando o modelo de célula unitária com queima já utilizada na Seção 3.3.2.1.

Nas Figuras de 3.58 a 3.61, observa-se o comportamento das razões de conversão para um dado combustível e diferentes tipos de revestimentos. A razão de conversão de forma geral exhibe um aumento com a queima pela formação dos nuclídeos férteis e físséis.

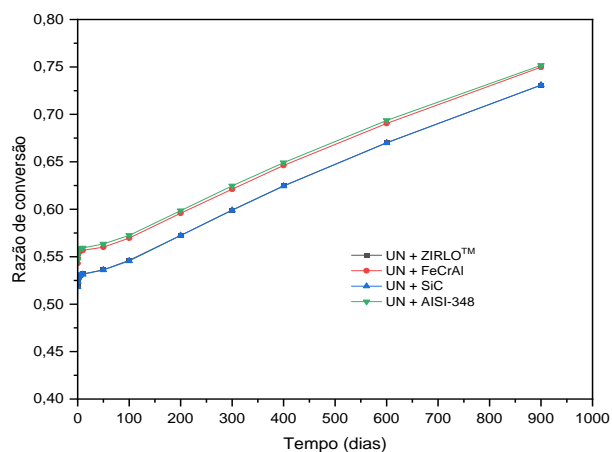
Os revestimentos com seções de choque de absorção de nêutrons maior (FeCrAl e AISI-348) possuem o fator de multiplicação menor em relação aos revestimentos de SiC e ZIRLOTM. No entanto, os revestimentos (FeCrAl e AISI-348) exibem a razão de conversão maior.

Figura 3.58 – Razão de conversão do combustível UO_2 com diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do tempo de queima.



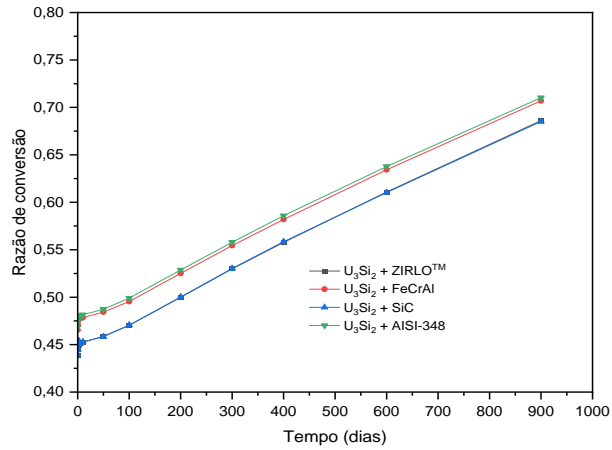
Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.59 – Razão de conversão do combustível UN com diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do tempo de queima.



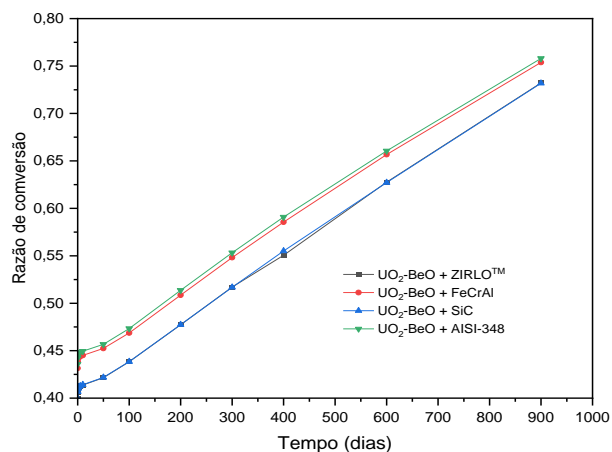
Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.60 – Razão de conversão do combustível U_3Si_2 com diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do tempo de queima.



Fonte: Autor da Tese.

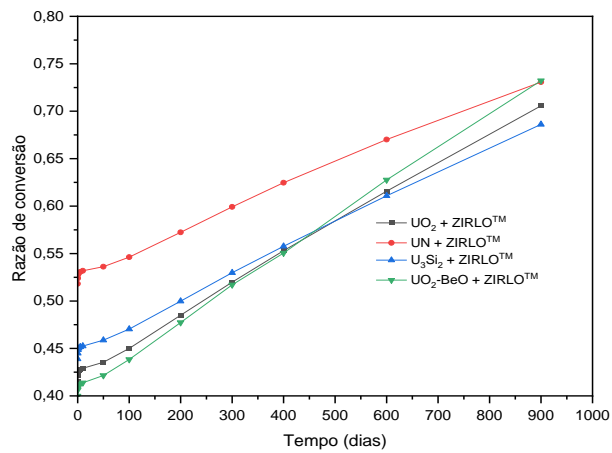
Figura 3.61 – Razão de conversão do combustível UO_2 -BeO com diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, AISI-348 e SiC) em função do tempo de queima.



Fonte: Autor da Tese.

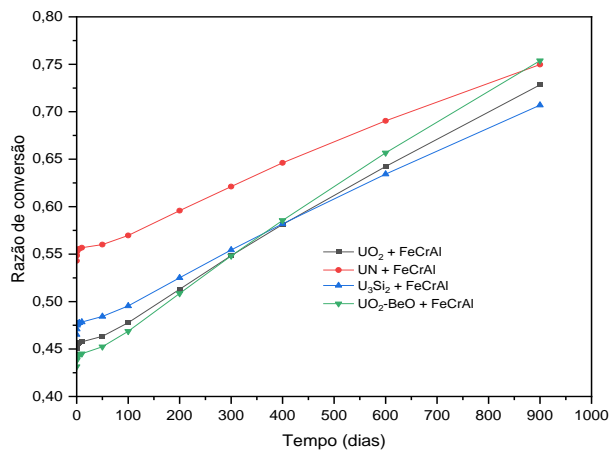
As Figuras de 3.62 a 3.64 apresentam as curvas das razões de conversão para um dado revestimento com diferentes tipos de combustível (UO_2 , UN, U_3Si_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$). Igualmente, no comportamento apresentado nas curvas das Figuras de 3.55 a 3.58, a razão de conversão aumenta com a queima devido a produção de núclídeos férteis e físséis.

Figura 3.62 – Razão de conversão com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento ZIRLO™ em função do tempo de queima.



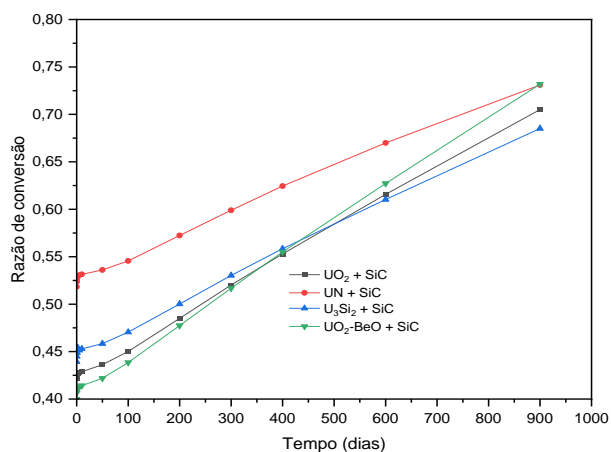
Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.63 – Razão de conversão com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento FeCrAl em função do tempo de queima.



Fonte: Autor da Tese.

Figura 3.64 – Razão de conversão com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento SiC em função do tempo de queima.



Fonte: Autor da Tese.

O combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ com os diferentes tipos de revestimento (ZIRLO™, FeCrAl, SiC e AISI-348) apresenta a menor taxa de conversão no início de vida. No entanto, ao final da vida, ele supera os demais combustíveis (UO_2 , UN e U_3Si_2). Independentemente do tipo de revestimento, o combustível U_3Si_2 apresenta a menor taxa de conversão ao final de vida, apesar de no início de vida ter a razão de conversão superior ao UO_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$.

A análise do comportamento da razão de conversão contribui para avaliar possíveis formas de ganhos de reatividade, que podem ser obtidos ao longo da queima do combustível, uma vez que a maioria dos reatores tipo LWR utiliza combustíveis com teores de enriquecimento abaixo ou próximos de 5% em ^{235}U , ou seja, uma parcela do combustível é formada pelos materiais férteis ao longo da queima. Além disso, a informação sobre razão de conversão pode subsidiar na estratégia dos sistemas combustíveis que requerem aumento do teor de enriquecimento como forma de reduzir a absorção parasítica de nêutrons.

3.3.6 Coeficiente de reatividade do moderador dos combustíveis candidatos a ATF

O projeto de núcleo de reatores não se limita somente a verificar e analisar a reatividade pelo fator de multiplicação de nêutrons do sistema combustível, o comportamento deste ao longo da queima, o arranjo de varetas de combustível no elemento de combustível, a razão de moderação e as mudanças no espectro de energia dos nêutrons em uma dada condição específica de operação.

Estes parâmetros também estão diretamente associados à variação da temperatura do meio, principalmente devido aos transientes de potência durante a operação do reator. O parâmetro que melhor traduz estas mudanças é denominado de coeficiente de reatividade de temperatura e está diretamente associado com a segurança da operação.

Os coeficientes de temperatura indicam o comportamento do reator devido as mudanças de temperatura do combustível ou do moderador. O aumento de potência ocasiona aumento na temperatura, conseqüentemente a redução na densidade do moderador, menor grau de termalização de nêutrons e menor número de reações de fissões.

Além disso, concomitantemente à atuação do efeito Doppler do combustível, principalmente no combustível UO_2 utilizado em reatores LWR, um aumento de temperatura ocasiona o alargamento das ressonâncias do isótopo ^{238}U e o conseqüente aumento de absorção de nêutrons na faixa epitérmica, resultando em menor número de nêutrons térmicos e na redução nas reações de fissões.

Esse mecanismo de realimentação negativa promovido pela variação de temperatura garante a segurança intrínseca da operação do reator, principalmente numa condição de excursão de potência.

Como requisito de licenciamento, um núcleo de reator é projetado de tal forma que o coeficiente de reatividade tenha o valor negativo para garantir a realimentação negativa da reatividade.

Neste trabalho serão avaliados os coeficientes de reatividade do moderador para as diferentes combinações de combustíveis e revestimentos.

Para as simulações envolvendo a obtenção das reatividades dependente das temperaturas, adotou-se o mesmo modelo de célula unitária e os dados das simulações executadas na Seção 3.3.2.1.

Define-se o coeficiente de reatividade do moderador como:

$$\alpha_M = \frac{\partial \rho}{\partial T} \text{ (coeficiente de reatividade do moderador)} \quad (3.2)$$

onde:

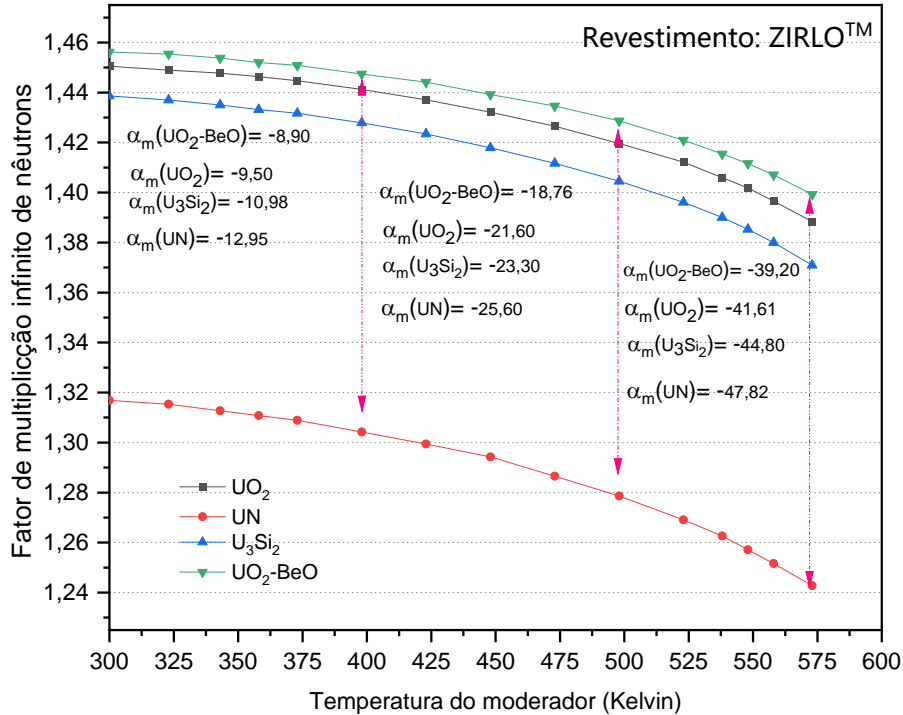
$\partial \rho = K_\infty(T_2) - K_\infty(T_1)$, neste trabalho será adotado apenas como a diferença entre os fatores de multiplicação infinito de nêutrons.

$$\partial T = T_2 - T_1$$

No total, foram consideradas 15 temperaturas no moderador sem a presença do boro solúvel, variando de 300 até 573 K (27 °C até 300 °C) para obtenção dos valores de reatividade de cada sistema combustível. Os valores dos coeficientes de reatividade do moderador foram divididos em três intervalos de temperaturas distintos: α_{M1} (300 até 398 K), α_{M2} (398 até 498 K) e α_{M3} (498 até 573 K).

As Figuras de 3.65 a 3.68 ilustram as curvas dos coeficientes de reatividade em função da temperatura juntamente com os diferentes valores dos coeficientes de reatividade do moderador para os três intervalos de diferentes combustíveis. Os valores do coeficiente de reatividade apresentado para cada intervalo de temperatura são a média aritmética dos valores dos coeficientes de reatividade do intervalo em questão.

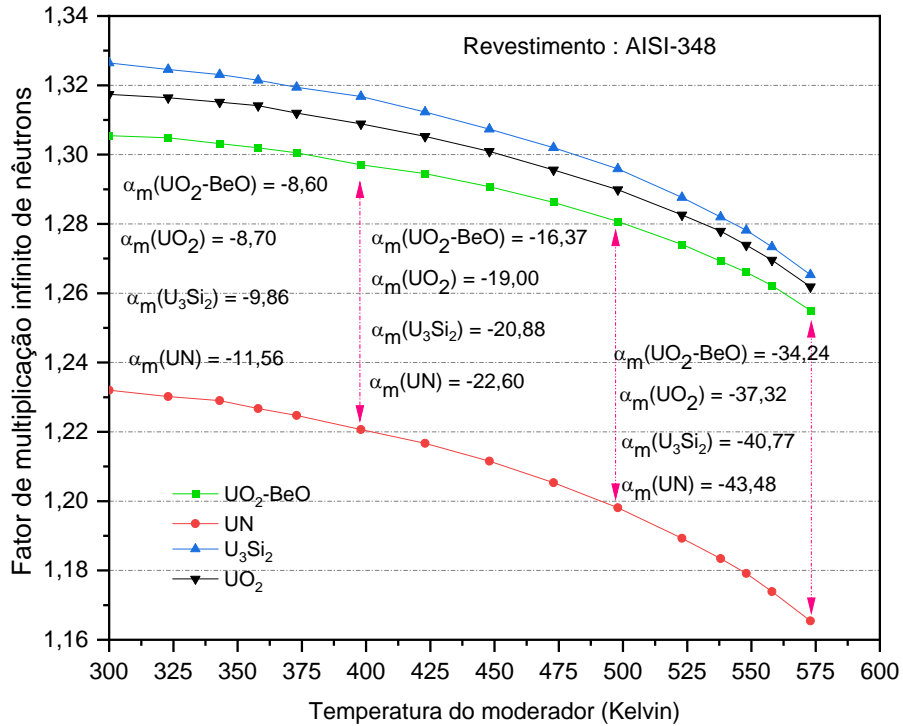
Figura 3.65 – Coeficiente de reatividade do moderador (pcm/K) com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento ZIRLOTM.



Fonte: Autor da Tese.

O combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ com o revestimento de ZIRLOTM possui menor valor (em módulo) do coeficiente de reatividade em relação aos demais combustíveis, enquanto o combustível UN com o revestimento de ZIRLOTM possui o maior valor (em módulo) dentre os demais combustíveis. Para todos os combustíveis, os valores dos coeficientes aumentam (em módulo) com o aumento da temperatura. Ressalta-se que os valores dos coeficientes apresentados são relativos ao moderador sem a presença de boro solúvel. A presença de boro solúvel tende a reduzir o valor (em módulo) do coeficiente do moderador, principalmente devido ao “endurecimento” do espectro de nêutrons na região de energia térmica dos nêutrons.

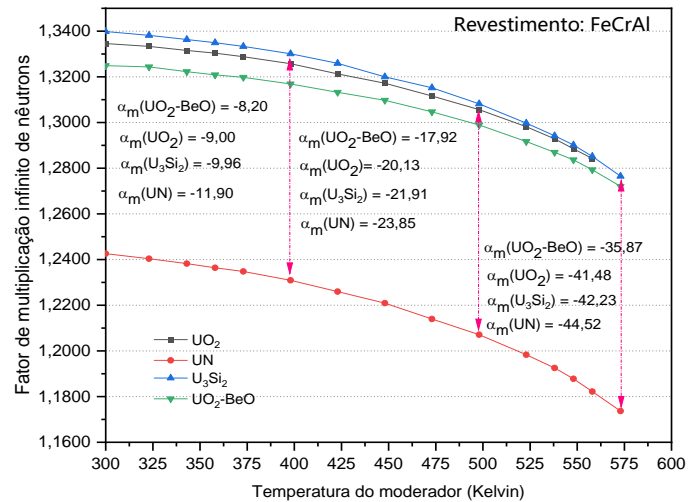
Figura 3.66 – Coeficiente de reatividade do moderador (pcm/K) com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento AISI-348.



Fonte: Autor da Tese.

O combustível U_3Si_2 com o revestimento de aço inoxidável AISI-348 possui menor valor (em módulo) do coeficiente de reatividade em relação aos demais combustíveis, enquanto o combustível UN apesar de possuir a menor reatividade em relação aos demais, possui o maior valor (em módulo) do coeficiente de reatividade entre os demais combustíveis com o revestimento de AISI-348.

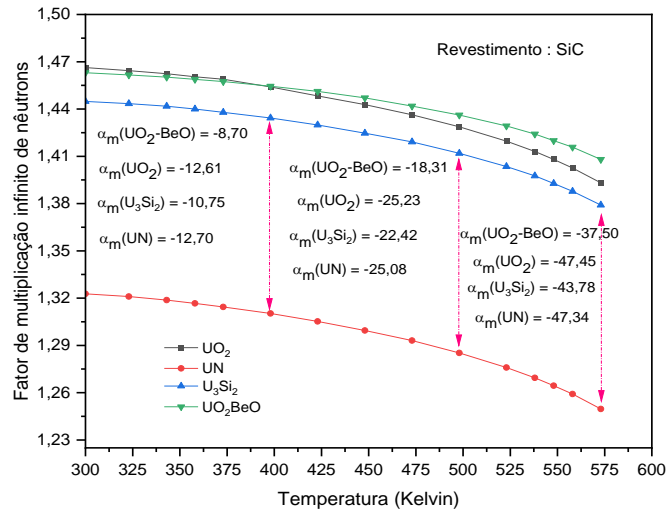
Figura 3.67 – Coeficiente de reatividade do moderador (pcm/K) com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e $\text{UO}_2\text{-BeO}$) com o revestimento FeCrAl.



Fonte: Autor da Tese.

O combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ com o revestimento FeCrAl possui menor valor (em módulo) do coeficiente de reatividade em relação aos demais combustíveis, enquanto o combustível UN apesar de possuir a menor reatividade em relação aos demais, possui o maior valor (em módulo) do coeficiente de reatividade entre os demais combustíveis com o revestimento de FeCrAl.

Figura 3.68 – Coeficiente de reatividade do moderador (pcm/K) com diferentes combustíveis (UO_2 , U_3Si_2 , UN e UO_2 -BeO) com o revestimento SiC.



Fonte: Autor da Tese.

Na Tabela 3.9 são apresentados de forma ordenada os valores dos coeficientes de reatividade do moderador dos diferentes sistemas combustível na faixa de temperatura superior (498 até 573 K).

Tabela 3.9 – Coeficiente de reatividade do moderador para o intervalo de temperatura de 498 até 573 K.

Revestimento	Combustível (pcm/K)			
	UO_2	UN	UO_2 -BeO	U_3Si_2
ZIRLO™	- 41,64	- 47,82	- 39,20	- 44,80
SiC	- 47,45	- 47,34	- 37,50	- 43,78
FeCrAl	- 41,48	- 44,52	- 35,87	- 42,23
AISI-348	- 37,32	- 43,48	- 34,21	- 40,72

Fonte: Autor da Tese.

Os campos na Tabela 3.9 assinalados na cor cinza claro correspondem ao menor valor (em módulo) do coeficiente de reatividade do moderador para um determinado combustível, enquanto os campos assinalados na cor vermelha clara correspondem aos maiores valores (em módulo).

Os coeficientes com o menor valor (em módulo) correspondem ao sistema combustível com o revestimento de aço inoxidável AISI-348, enquanto que os maiores valores (em módulo) estão associados ao revestimento ZIRLO™ com exceção do sistema formado pelo $\text{UO}_2 + \text{SiC}$. O maior coeficiente de reatividade médio é observado no combustível UN e a menor média para o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$, ilustrando a influência do espectro de nêutrons, conforme observado nas Figuras 3.52 a 3.54.

A diferença entre o maior valor e o menor valor entre os coeficientes são observadas no combustível UO_2 , representando praticamente 10 unidades, enquanto para outras combinações as diferenças são aproximadamente de 4 unidades.

O valor do coeficiente de reatividade do moderador representa a reatividade que pode ser inserida ou retirada pela variação da temperatura do moderador. Nas situações envolvendo o aumento da temperatura do moderador, por exemplo, anomalia de potência, a realimentação atua de forma negativa impedindo a escalada no aumento da potência e favorecendo a segurança.

Dessa forma, nos transientes de aumento da potência seguido pelo aumento da temperatura do moderador, o coeficiente de temperatura do moderador atua no sentido de reduzir a potência. Na situação inversa, com a redução de temperatura do moderador, ocorre a inserção de reatividade positiva, ocasionando um aumento de potência.

A mudança de reatividade pelas variações da temperatura permite executar mudanças de potência do reator sem necessariamente executar movimentações do banco de controle, principalmente em reatores navais, uma vez que este tipo de reator opera em regime de transientes de potência mais acentuado. Por outro lado, o resfriamento da planta em situação de desligamento insere reatividade positiva, assim requerendo conjunto de bancos de desligamento mais efetivos.

No cenário de acidente da base de projeto, principalmente a ruptura da linha principal de vapor (*MSLB – Main Steam Line Break*) que ocorre no lado do circuito secundário ocasiona um aumento na taxa de resfriamento do circuito primário pelo lado que ocorreu a ruptura e a consequente redução da temperatura do moderador e inserção de reatividade positiva de forma assimétrica ocasionando picos de potência no núcleo do reator.

Dessa forma, no projeto do núcleo do reator é fundamental considerar os aspectos de segurança intrínseca do reator por meio dos coeficientes de reatividade adequados e efetivos para o controle do reator, seja nas condições operacionais ou em cenários de acidente da base de projeto.

3.3.7 Avaliação neutrônica quanto à espessura do revestimento

Dentre as diversas opções de revestimento para os combustíveis ATF, a inserção de camada de cromo no revestimento de liga de zircônio é a opção mais promissora pela simplicidade e menor dificuldade de implementação, incluindo-se os aspectos relacionados às adaptações no processo fabril e também no licenciamento. Portanto, esta opção de combustível ATF encontra-se na fase mais avançada dentre os combustíveis ATF evolucionários para fabricação e uso comercial nos reatores.

O impacto neutrônico relacionado com a inserção de diferentes espessuras de cromo no revestimento de liga de zircônio e a influência da espessura do revestimento na liga de FeCrAl serão avaliados de forma similar por meio dos modelos adotados e os dados utilizados nas avaliações da reatividade conforme a Seção 3.3.2.1.

3.3.7.1 Influência da camada de cromo no revestimento de ZIRLO™

A inserção da camada de cromo na parede externa do revestimento à base de zircônio representa a opção mais conservadora e contribui para melhorar a resistência a corrosão, principalmente em altas temperaturas, devido à formação da camada protetiva de óxido de cromo (Cr_2O_3).

A inserção da camada de cromo poderá implicar em perda de reatividade devido à absorção de nêutrons pela presença do elemento cromo. Este possui uma seção de choque de absorção de nêutrons aproximadamente 16 vezes maior que o elemento zircônio [54].

A Tabela 3.10 apresenta os resultados obtidos para os fatores de multiplicação infinito de nêutrons em função da espessura da camada de cromo. Observa-se pelos resultados que a penalidade na reatividade devido a presença

de cromo poderá impactar a duração do combustível significativamente para espessuras superiores a 30 micrometros.

Tabela 3.10 – Reatividade do sistema combustível (ZIRLO™ + UO₂) em função da espessura da camada de cromo.

Caso (ZIRLO™/UO ₂)	$K_{inf} \pm \sigma$	$\Delta (K_{ref} - K_i) \times 1,0^{+05}$ (pcm)
(referência)	1,38435 ± 0,00009	----
20 µm de Cromo	1,37806 ± 0,00009	691
50 µm de Cromo	1,36769 ± 0,00009	1666
60 µm de Cromo	1,36411 ± 0,00008	2024
100 µm de Cromo	1,35086 ± 0,00008	3349

Fonte: Autor da Tese.

Observa-se na Tabela 3.10 a redução na reatividade devido à absorção de nêutrons pela camada de cromo. A opção da inserção de uma camada de cromo na superfície externa no revestimento à base de zircônio deverá ser limitada para a menor espessura possível (abaixo de 20 micrometros) para que a penalidade neutrônica seja a menor possível.

3.3.7.2 Espessura do revestimento de FeCrAl

A liga de FeCrAl impõe uma penalidade na reatividade devido à absorção de nêutrons, conforme observado nas avaliações e verificações apresentadas nas Seções anteriores deste Capítulo. Neste contexto, será avaliada também a influência das diferentes espessuras do revestimento de FeCrAl na reatividade. Inicialmente, o sistema combustível com o revestimento de ZIRLO™ será utilizado como referência para comparação os diferentes valores de reatividade do FeCrAl para diferentes condições.

A Tabela 3.11 apresenta os resultados das simulações para diferentes condições e espessuras do revestimento para avaliar as possíveis formas de

redução da penalidade neutrônica visando obter a reatividade próxima do caso referência.

Tabela 3.11 – Reatividade em função da mudança da espessura do revestimento.

CASO	Espessura (mm)	K_{infinito}	$\Delta (K_{\text{ref}} - K_i) \times 1,0^{+05}$ (pcm)
Referência (ZIRLO™)	0,5715	1,38468 ± 0,00007	----
FeCrAl (A)	0,5715	1,29163 ± 0,00007	9305
FeCrAl (B)	0,5000	1,29285 ± 0,00008	9183
FeCrAl (C)	0,4500	1,30664 ± 0,00007	7804
FeCrAl (D)	0,4500	1,29674 ± 0,00008	8794
FeCrAl (E)	0,4500	1,29201 ± 0,00009	9267
FeCrAl (F)	0,4000	1,32079 ± 0,00008	6389
FeCrAl (G)	0,3500	1,33462 ± 0,00008	5006

Fonte: Autor da Tese.

Nota:

Caso A – espessura do revestimento de FeCrAl igual à espessura do revestimento e às demais dimensões iguais do combustível de referência (UO₂ + ZIRLO™);

Caso B – redução da espessura do revestimento de FeCrAl para 0,500 mm (aproximadamente 12,5% de redução) e as demais dimensões iguais do combustível de referência (UO₂ + ZIRLO™);

Caso C – redução no diâmetro externo do revestimento de FeCrAl para 0,450 mm (aproximadamente 21,0% de redução) mantendo as demais dimensões (diâmetro interno do revestimento, espessura do vazio (*gap*) e diâmetro da pastilha combustível) iguais do combustível de referência (UO₂ + ZIRLO™);

Caso D – redução da espessura com o aumento no diâmetro interno da vareta (parte interna do revestimento) mantendo as demais dimensões (diâmetro externo do revestimento, espessura do vazio (*gap*) e diâmetro da pastilha combustível) iguais do combustível de referência (UO₂ + ZIRLO™);

Caso E – redução da espessura com o aumento no diâmetro interno do revestimento e aumento no diâmetro do combustível mantendo as demais dimensões (diâmetro externo do revestimento, espessura do vazio (*gap*) iguais do combustível de referência ($\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$);

Caso F – redução da espessura do revestimento de FeCrAl para 0,400 mm (aproximadamente 30,0 % de redução) e as demais dimensões iguais do combustível de referência ($\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$); e

Caso G – redução da espessura do revestimento de FeCrAl para 0,350 mm (aproximadamente 38,0 % de redução) e as demais dimensões iguais do combustível de referência ($\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$).

As formas de redução da espessura do tubo de revestimento podem ser realizadas modificando a dimensão do raio externo ou do raio interno do tubo. Os casos C e D, apesar de possuírem a mesma redução da espessura do revestimento (0,45 mm), diferem quanto ao diâmetro externo e interno do tubo, enquanto o caso E difere no diâmetro interno do tubo e no diâmetro da pastilha de combustível (UO_2) para preservar a mesma dimensão do vazio (*gap*). Neste caso houve um aumento da massa de combustível.

A quarta coluna da Tabela 3.11 apresenta as reatividades de diferentes casos, observa-se:

- a simples mudança de material no revestimento de ZIRLO^{TM} para FeCrAl (caso A) representa a perda de reatividade de aproximadamente 9300 pcm;
- a redução de aproximadamente 12,5% (0,0715 mm) na espessura original (0,5715 mm) do FeCrAl (caso B) mantendo-se as demais dimensões do combustível representa um ganho na reatividade de aproximadamente 120 pcm em relação ao caso A;
- a redução de aproximadamente 21% (0,1215 mm) na espessura original (0,5715 mm) do FeCrAl (Caso C) mantendo-se as demais dimensões do combustível representa um ganho na reatividade de aproximadamente 1500 pcm em relação ao caso A;
- a perda de reatividade em relação ao ZIRLO^{TM} para o FeCrAl (caso C) com espessura de 0,450 mm (redução de aproximadamente 21%) mantendo-se as demais dimensões do combustível foi de aproximadamente 7800 pcm;

- a redução de aproximadamente 30% (0,1715 mm) apenas na espessura original (0,5715 mm) do FeCrAl (caso F) mantendo-se as demais dimensões do combustível representa um ganho na reatividade de aproximadamente 2900 pcm em relação caso A;
- a perda de reatividade em relação ao ZIRLO™ para o FeCrAl (caso F) com espessura de 0,400 mm (redução de aproximadamente 30%) mantendo-se as demais dimensões do combustível foi de aproximadamente 6400 pcm;
- a redução de aproximadamente 38% (0,2215 mm) na espessura original (0,5715 mm) do FeCrAl (caso G) mantendo-se as demais dimensões do combustível representa um ganho na reatividade de aproximadamente 4300 pcm em relação ao caso A; e
- a perda de reatividade em relação ao ZIRLO™ para o FeCrAl (CASO G) com espessura de 0,350 mm (redução de aproximadamente 38%) mantendo-se as demais dimensões do combustível foi de aproximadamente 5000 pcm.

A maior penalidade imposta é de 9300 pcm (espessura original) e a menor foi de 5006 pcm (redução de 38% da espessura original) em relação ao revestimento de ZIRLO™.

Os resultados obtidos ilustram a necessidade de reduzir a espessura do revestimento do FeCrAl comparado com a reatividade do revestimento de ZIRLO™. No entanto, a redução não pode ser efetuada de forma arbitrária apenas objetivando a minimização da penalidade neutrônica, uma vez que deve ser assegurada uma espessura mínima que garanta a integridade estrutural da vareta para as diversas condições operacionais. Neste contexto, essa limitação pode ser abordada de diferentes formas sem necessariamente comprometer a funcionalidade mecânico estrutural do revestimento.

A redução da espessura do tubo de revestimento pode ser obtida com mudança do diâmetro externo (casos A, B, C, F e G) do tubo e mantendo as demais dimensões, ou com o aumento do diâmetro interno do tubo preservando o diâmetro externo (caso D) e as demais dimensões com o conseqüente aumento da região de vazio (*gap*) entre a pastilha de combustível e o diâmetro interno do tubo da vareta de combustível.

O aumento da região de vazio em relação ao valor original pode proporcionar espaço adicional para o aumento do diâmetro da pastilha de combustível (caso E). O acréscimo no diâmetro do combustível pode representar um ganho adicional na reatividade além da redução da espessura sem impactar as demais dimensões do elemento de combustível.

Estas condições são apresentadas na Tabela 3.11 para os casos C, D e E, que possuem a mesma espessura (0,4500 mm). Adotando-se o caso C como referência para a verificação da mudança de reatividade em relação aos casos D e E, observa-se que ambos os casos (D e E) não apresentaram ganhos de reatividade em relação ao caso referência (caso C) e até mesmo para o caso D, com um pequeno aumento no diâmetro e na massa de combustível.

Os resultados obtidos evidenciam que o ganho ou perda de reatividade também está associado com a mudança do grau de moderação do sistema, portanto a simples redução da espessura não implica necessariamente em ganho na reatividade.

As análises com a redução de espessura indicam que apenas esta mudança não será suficiente para compensar a perda da reatividade. Dessa forma avaliou-se também o aumento no teor de enriquecimento do combustível.

A Tabela 3.12 ilustra os resultados obtidos de reatividade em função do teor de enriquecimento para a espessura de referência, uma espessura reduzida e com duas condições distintas do grau de moderação (distância centro a centro).

Tabela 3.12 – Fatores de multiplicação infinito de nêutrons em função da mudança da espessura do revestimento de FeCrAl, o espaçamento centro a centro entre as varetas e o teor de ^{235}U no combustível.

Enriquecimento (% ^{235}U)	Distância centro a centro (1,2598 cm)		Distância centro a centro (1,30 cm)
	K_{infinito} (esp. : 0,5715 mm)	K_{infinito} (esp. : 0,450 mm)	K_{infinito} (esp. : 0,450 mm)
5,0	1,29596 ± 0,00012	1,32981 ± 0,00011	1,34979 ± 0,00010
5,5	1,31604 ± 0,00010	1,34830 ± 0,00012	1,36805 ± 0,00013
6,0	1,33271 ± 0,00011	1,36423 ± 0,00011	1,38461 ± 0,00011
6,5	1,34788 ± 0,00012	1,37799 ± 0,00013	1,39889 ± 0,00012
7,0	1,36087 ± 0,00010	1,39038 ± 0,00012	1,41101 ± 0,00013
7,5	1,37252 ± 0,00011	1,40154 ± 0,00012	1,42190 ± 0,00013
8,0	1,38528 ± 0,00012	1,41090 ± 0,00011	1,43218 ± 0,00013
8,5	1,39294 ± 0,00012	1,42001 ± 0,00011	1,44067 ± 0,00012
9,0	1,40122 ± 0,00010	1,42807 ± 0,00012	1,4491 ± 0,00012
9,5	1,40969 ± 0,00011	1,43529 ± 0,00011	1,45653 ± 0,00011
10,0	1,41718 ± 0,00012	1,44277 ± 0,00011	1,46350 ± 0,00011

Valor de referência: 1,38468 ± 0,00007 ($\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$)

Fonte: Autor da Tese.

Considerando o valor da reatividade (fator de multiplicação infinito de nêutrons) de referência do sistema $\text{UO}_2 + \text{ZIRLO}^{\text{TM}}$ de 1,38468 ± 0,00007, conforme a Tabela 3.11, o sistema $\text{UO}_2 + \text{FeCrAl}$ deve possuir o combustível com o teor de enriquecimento em ^{235}U de aproximadamente 8%, para igualar-se ao fator de multiplicação infinito do revestimento ZIRLO^{TM} de mesma espessura.

Este teor representa praticamente um aumento de 80% no enriquecimento do urânio em relação ao valor de referência (4,45% em ^{235}U). Um aumento significativo dessa ordem representa custos maiores tornando uma opção pouco atrativa comercialmente. No entanto, com a redução da espessura juntamente com a mudança de espaçamento entre as varetas de combustível, o teor de enriquecimento necessário será aproximadamente de 6,0% em ^{235}U ,

representando um aumento no teor de enriquecimento de aproximadamente 1,45% em relação ao valor de referência.

Especificamente para o revestimento de FeCrAl, a utilização de outro combustível diferente de UO_2 não traduz em ganho de reatividade, uma vez que a reatividade do combustível com maior reatividade, o U_3Si_2 assemelha ao UO_2 , assim como o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$, que possui uma reatividade pouco inferior ao UO_2 , conforme os valores de reatividade apresentados na Tabela 3.7 .

Conclui-se que para o revestimento de FeCrAl a forma mais eficiente para a minimização da penalidade neutrônica deve ser estratégia combinada envolvendo necessariamente o aumento o teor de enriquecimento do ^{235}U .

3.4 Espessura do revestimento de FeCrAl e a integridade estrutural

A espessura do revestimento de FeCrAl não pode ser reduzida apenas objetivando a minimização da absorção de nêutrons, uma vez que a espessura desempenha uma função estrutural na vareta de combustível. A espessura adequada da parede do revestimento garante a rigidez estrutural evitando possíveis deformações e desgastes durante a utilização no ambiente do reator.

O carregamento inicial a ser considerado no projeto do revestimento é a pressão externa do circuito primário da ordem de 130 bar para reatores tipo PWR. Este carregamento associado à fluência térmica poderá colapsar o revestimento forçando o fechando do vazio (*gap*) existente entre o combustível e o revestimento. O fechamento do vazio (*gap*) de forma prematura e concomitante com o inchamento da pastilha de combustível poderá contribuir para a falha do revestimento pelo fenômeno PCI (*Pellet Cladding Interaction*).

Além da condição de operação normal, no caso de acidente de perda de refrigerante (LOCA), o revestimento sofre um carregamento no sentido oposto do carregamento da pressão do circuito primário, uma vez que, a pressão interna da vareta de combustível será superior à pressão externa após o rompimento postulado da tubulação do circuito primário.

A diferença de pressão poderá ocasionar inchamento do revestimento (*balloning*) obstruindo o canal de refrigeração com conseqüente rompimento e a liberação dos produtos de fissão. Portanto, a espessura do revestimento também necessita ser avaliada em condições do desempenho mecânico-estrutural.

A espessura do revestimento de FeCrAl será avaliada baseada no experimento de efeito separado PUZRY. Este experimento originalmente foi concebido para verificar o desempenho mecânico do revestimento de liga de zircônio em condições de acidente de perda de refrigerante. As amostras de revestimentos foram submetidas para diferentes taxas de pressurização em diferentes temperaturas até a ocorrência da falha do revestimento. As condições experimentais foram similares à fase de aquecimento do revestimento em um acidente de perda de refrigeração (LOCA).

A avaliação do desempenho estrutural do revestimento de FeCrAl consistirá em executar a simulação do experimento PUZRY com diferentes espessuras de revestimento para os 31 casos experimentais com o programa TRANSURANUS (versão **v1m3j19**) modificado com a inclusão das propriedades termo-mecânica da liga de FeCrAl, conforme descrito na Seção 3.3.1 deste trabalho. A modelagem a ser adotada e as condições de contorno e iniciais serão as mesmas da Seção 3.2.1, diferindo apenas nas espessuras do revestimento de FeCrAl.

A Tabela 3.13 apresenta os resultados dos tempos de ruptura obtidos para os 31 casos do experimento PUZRY com cinco diferentes espessuras de FeCrAl (0,350 mm, 0,400 mm, 0,45 mm, 0,50 mm e 0,725 mm).

Adotando-se como referência de comparação o revestimento de Zircaloy-4 com a espessura de 0,725 mm quanto ao desempenho estrutural em condição de acidente, qualquer tempo de ruptura inferior ao tempo experimental do caso referência (tubo de Zircaloy-4) indica que a espessura do tubo de revestimento de FeCrAl possui uma condição estrutural inferior. Essa comparação permite identificar a menor espessura do revestimento de FeCrAl para manter o mesmo desempenho ou superior ao revestimento de Zircaloy-4.

Tabela 3.13 – Desempenho mecânico do revestimento FeCrAl com diferentes espessuras.

Caso	dP/dt (bar/s)	Temp (°C)	Exp. T _{arreb.} (s)	T _{ruptura} (s)				
				Espessura (0,35mm)	Espessura (0,40mm)	Espessura (0,45mm)	Espessura (0,50mm)	Espessura (0,725mm)
1	0,0064	1.201,3	531,90	998,12	1.139,27	1.281,25	1.422,21	1.851,87
2	0,0065	1.154,4	566,00	1.269,74	1.449,36	1.629,68	1.810,01	2.355,01
3	0,0063	1.102,1	607,80	1.739,85	1.985,50	2.230,35	2.473,87	3.211,41
4	0,0062	1.053,2	705,30	2.294,30	2.613,44	2.930,22	3.243,94	4.173,12
5	0,0062	997,9	810,70	3.020,76	3.426,73	3.824,93	4.217,58	5.362,54
6	0,0048	950,5	1.805,40	4.740,45	5.345,23	5.936,53	6.514,33	8.207,07
7	0,0759	952,9	208,20	329,11	375,55	421,33	466,81	603,07
8	0,0763	1.001,0	116,70	252,81	288,52	323,79	359,44	466,37
9	0,0712	1.051,6	104,70	204,77	233,97	263,27	292,18	380,33
10	0,0710	1.102,6	92,00	156,75	178,49	200,50	221,19	288,50
11	0,0717	1.149,8	84,10	121,01	138,16	153,17	170,59	221,61
12	0,0723	1.197,7	80,00	90,64	103,74	115,49	129,74	170,09
13	0,0314	698,8	2.828,00	2.664,42	2.991,38	3.310,28	3.621,69	4.525,28
14	0,1190	702,2	892,40	773,90	873,50	970,68	1.065,95	1.343,21
15	0,1173	802,1	538,40	469,93	532,32	593,65	653,84	829,93
16	0,1224	750,3	678,50	586,90	663,39	738,21	811,74	1.025,71
17	0,1162	850,1	342,30	371,55	422,16	471,98	521,04	665,52
18	0,1151	900,2	233,70	289,048	329,23	369,04	408,29	525,44
19	0,0243	900,6	801,30	1.296,745	1.467,51	1.635,14	1.799,56	2.280,26
20	0,0225	849,7	1.211,10	1.760,195	1.984,07	2.202,43	2.416,23	3037,21
21	0,0168	800,8	2.693,30	2.859,815	3.212,2	3.555,80	3.891,64	4.866,87
22	0,0148	749,9	4.105,10	4.052,566	4.545,02	5.025,27	5.493,92	6.856,35
23	0,0717	748,6	1.011,80	974,78	1.098,97	1.220,30	1.338,93	1.683,56
24	0,0179	698,8	4.522,20	4.408,203	4.943,01	5.464,15	5.973,07	7.449,00
25	0,0173	698,3	4.623,50	4.555,33	5.107,75	5.646,09	6.171,61	7.698,73
26	0,1193	698,4	888,80	787,799	888,99	988,10	1.085,06	1.366,96
27	0,0248	801,4	1.946,00	2.003,569	2.253,51	2.497,24	2.735,58	3.427,77
28	0,0425	800,0	1.244,70	1.230,717	1.387,26	1.540,03	1.689,51	2.123,94
29	0,0720	799,9	804,50	753,789	851,67	947,51	1.041,52	1.315,26
30	0,2630	800,4	275,70	217,867	247,66	277,14	306,17	391,84
31	0,1961	800,4	346,20	289,532	328,67	367,34	405,41	517,35

Fonte: Autor da Tese.

Na Tabela 3.13, os campos assinalados na cor amarela (espessuras de 0,350 mm e 0,400 mm) correspondem os casos onde os tempos de ruptura dos tubos obtidos com a simulação foram inferiores aos tempos experimentais para as mesmas condições (temperatura e taxa de pressão) da liga de zircônio (Zircaloy-4).

Dessa forma, para o revestimento apresentar o desempenho no mínimo similar ao revestimento de Zircaloy-4 com a espessura de 0,750 mm, o revestimento de FeCrAl deve ter uma espessura mínima de 0,450 mm.

A simulação realizada permitiu estimar uma espessura mínima do revestimento de FeCrAl para garantir a estabilidade mecânico-estrutural da vareta de combustível em condição similar do revestimento de Zircaloy-4.

Conforme mencionado, as propriedades mecânicas da liga de FeCrAl são superiores às ligas à base de zircônio. Dessa forma é possível reduzir a espessura e manter o mesmo desempenho da liga de zircônio.

A avaliação da espessura mínima e a avaliação do desempenho neutrônico, conforme apresentado na Seção 3.3.7 são atividades necessárias para definir a melhor espessura para os futuros combustíveis ATF com revestimento de FeCrAl.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] LEPPÄNEN, J. et al. The Serpent Monte Carlo code: Status, development and applications in 2013, *Annals of Nuclear Energy*, 82, p. 142-150, 2015.
- [2] LASSMANN, K. TRANSURANUS: a fuel rod analysis code ready for use, *Journal of Nuclear Materials*, 188, p. 295, 1992.
- [3] PARK, D. J.; KIM, H. G.; JUNG, Y.; PARK, J. H.; YANG, J. H. e KOO, Y. H. Behavior of an improved Zr fuel cladding with oxidation resistant coating under loss-of-coolant accident conditions, *Journal of Nuclear Materials*, 482, p. 75–82, 2016.
- [4] PACIFIC NORTHWEST NATIONAL LABORATORY. GEELHOOD, K. G. e LUSCHER, W. G. *Degradation and failure phenomena of accident tolerant fuel concepts chromium coated zirconium alloy cladding*, 2019, (PNNL-28437).
- [5] CHEN, H.; WANG, X. e ZHANG, R. Application and development progress of Cr-based surface coatings in nuclear fuel element: selection, preparation, and characteristics of coating materials, *Coatings*, 10, p. 808, 2020.
- [6] DUMERVAL, M.; HOUMAIRE, Q.; BRACHET, J. C.; PALANCHER, H.; BISCHOFF, J. e POUILLIER, E. Behavior of Chromium coated M5 claddings upon thermal ramp tests under internal pressure (Loss-of-Coolant Accident Conditions), Setembro 2018, Praga, República Tcheca, *Proceedings of the TopFuel 2018*.
- [7] BRACHET, J. C.; IDARRAGA-TRUJILLO, I.; FLEM, M. L.; SAUX, M. L.; VANDENBERGHE, V.; URVOY, S.; ROUESNE, E.; GUILBERT, T.; TOFFOLON-MASCLET, V. e TUPIN, M. Early studies on Cr-Coated Zircaloy-4 as enhanced accident tolerant nuclear fuel claddings for light water reactors. *Journal of Nuclear Material*, 517, p. 268–285, 2019.
- [8] KIM, H. G.; KIM, I. H.; JUNG, Y. I.; PARK, D. J.; PARK, J. Y. e KOO, Y. H. Adhesion property and high-temperature oxidation behavior of Cr-coated Zircaloy-4 cladding tube prepared by 3D laser coating, *Journal of Nuclear Materials*, 465, p. 531-539, 2015.
- [9] BISCHOFF, J. e POUILLIER, E. Behavior under LOCA conditions of enhanced accident tolerant chromium coated zircaloy-4 claddings, Setembro 2016, Boise, Estados Unidos, *Proceedings of Topfuel2016 - Light Water Reactor (LWR) Fuel Performance Meeting*.
- [10] JOSHI, P.; KOMBALIAH, B.; CINBIZ, M. N. e MURTY, K. L. Characterization of stress rupture behavior of nuclear-grade C26M2 FeCrAl alloy for accident-tolerant fuel cladding via burst testing, *Materials Science & Engineering*, 791, 2020.
- [11] OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY. Field, K. G. *Handbook on the material properties of FeCrAl alloys for nuclear power production applications*, 2018, (ORNL/SPR-2018/905 Rev. 1).

- [12] QIU, B.; WANG, J.; DENG, Y.; WANG, M.; WU, Y. e QIU, S. Z. A review on thermohydraulic and mechanical-physical properties of SiC, FeCrAl and Ti_3SiC_2 for ATF cladding, ***Nuclear Engineering and Technology***, 52, p. 1-13, 2020.
- [13] FIELD, K. G.; HOWARD, R. H.; PETRIE, C. M. e TERRANI, K. A. Irradiation testing of accident tolerant fuel FeCrAl cladding, Setembro 2017, Jeju, Coréia do Sul, ***Proceedings of the 2017 Water Reactor Fuel Performance Meeting***.
- [14] PACIFIC NORTHWEST NATIONAL LABORATORY. GEELHOOD, K. J.; LUSCHER, W. G.; RAYNAUD, P. A. e PORTER, I. E. ***FRAPCON-4.0: A computer code for the calculation of steady-state, thermal-mechanical behavior of oxide fuel rods for high burnup***, 2015, (PNNL-19400, Vol.1 Rev2).
- [15] UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION. CUNNINGHAM, M. E.; BEYER, C. E.; MEDVEDEV, P. G. e BEMA, G. A. ***FRAPTRAN: A Computer Code for the Transient Analysis of Oxide Fuel Rods***, 2001, (NUREG/CR-6739, Volume 1).
- [16] RASHID, J.; MONTGOMERY, R.; YAGNIK, S. e YANG, R. Behavioral modeling of LWR fuel as represented in the FALCON code, 2003, New Orleans, Estados Unidos, ***Proceedings of Workshop on Materials Modelling and Simulations for Nuclear Fuel (MMSNF)***.
- [17] IDAHO NATIONAL LABORATORY. HALES, J. D.; WILLIAMSON, R. L.; NOVASCONE, S. R.; PASTORE, G.; SPENCER, B. W.; STAFFORD, D. S.; GAMBLE, K. A.; PEREZ, D. M.; GARDNER, R.J.; LIU, W.; GALLOWAY, J.; MATTHEWS, C.; UNAL, C. e CARLSON, N. ***BISON theory manual: the equations behind nuclear fuel analysis***, (INL/EXT-13-29930 Rev. 3).
- [18] BAURENS, B.; SERCOMBE, J.; RIGLET-MARTIAL, C.; DESGRANGES, L.; TROTIGNON, L. e MAUGIS, P. 3D thermo-chemical-mechanical simulation of power ramps with ALCYONE fuel code, ***Journal of Nuclear Materials***, 452, p. 578-594, 2014.
- [19] JACKSON, P. A.; TURNBULL, J. A. e WHITE, R. J. A description of the ENIGMA fuel performance code, 1988, Preston, Reino Unido, ***Proceedings of Technical Committee Meeting on Water Reactor Fuel Element Computer Modelling in Steady State, Transient and Accident Conditions***.
- [20] JIN, X.; WEI, X.; LIU, X. e DENG, Y. JASMINE: A fuel Rod thermal-mechanical performance code, 2016, Boise, Estados Unidos, ***Proceedings of TopFuel 2016***.
- [21] SMITH, R. W. e WAS, G. S. FCODE-BETA/SS: A fuel performance code for stainless steel clad pressurized water reactor fuel, ***Nuclear Technology***, 69, p. 2, 1985.
- [22] VIOUJARD, N.; BESSIRON, V.; GARNIER, C.; GEORGET, V.; MAILHÉ, P.; BARBIER, B.; DEUBLE, D.; LANDSKRON, H.; BELLANGER, P. e ARIMESCU, V. I. GALILEO AREVA's advanced fuel rod performance code and associated

realistic methodology, 2012, Manchester, Reino Unido, **Proceedings of TopFuel2012**.

[23] INTERNATIONAL ATOMIC AGENCY. **Fuel Modelling in Accident Conditions (FUMAC) Final Report of a Coordinated Research Project**, 2019, IAEA-TECDOC-1889.

[24] INTERNATIONAL ATOMIC AGENCY. **Analysis of Options and Experimental Examination of Fuels for Water Cooled Reactors with Increased Accident Tolerance (ACTOF)**, 2020, (IAEA-TECDOC-1921).

[25] MENUT, P.; SARTORI, E. e TURNBULL, J. A. The public domain database on nuclear performance experiments (IFPE) for the purpose of code development and validation, **International Seminar on Fission Gas Behaviour in Water Reactor Fuel**, Cadarache, França, Setembro 2000.

[26] CENTRE FOR ENERGY RESEARCH, HUNGARIAN ACADEMY OF SCIENCES. PEREZ-FERÓ, E.; HÓZER, Z.; NOVOTNY, T.; KRACZ, G.; HORVÁTH, M.; NAGY, I.; VIMI, A.; PINTÉR-CSORDÁS, A.; GYŐRI, CS.; MATUS, L.; VASÁROS, L.; WINDBERG, P. e MARÓTI, L. **Experimental Database of E110 Claddings under Accident Conditions**, 2013, (EK-FRL-2012-255-01/02).

[27] INSTITUTE FOR TRANSURANIUM ELEMENTS. LASSMANN, K. **The TRANSURANUS Code – Past, Present and Future, Review Article**, 2001, (EUR 20252).

[28] PASTORE, G. et al. Modeling of fuel behavior during loss-of-coolant accidents using the BISON Code, 2015, Zurique, Suíça, **Proceeding of the Reactor Fuel Performance Meeting – Top Fuel 2015**.

[29] WANG, P.; QIAO, Y.; QI, W.; DU, S.; LIU, Z.; MENG, F.; ZHANG, X.; WANG, K.; LI, Q.; YAO, Z.; BAI, C. e WANG, X. Preparation and Properties Study of Cr on FeCrAl Cladding Materials, **Frontier in Materials**, 8, p. 1-11, 2021.

[30] OECD HALDEN REACTOR PROJECT. VITANZA, C.; GRAZIANI, U.; FORDESTROMMEN, N. T. e VILPPONEN, K. O. Fission Gas Release from in pile Measurements, 1978, (HPR-221.10).

[31] VITANZA, C.; KOLSTAD, E. e GRAZIANI, C. Fission gas release from UO₂ pellet at high burnup, Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, Portland, Estados Unidos, Maio, 1979.

[32] MIYASHITA T. et. al. Corrosion and hydrogen pick-up behaviour of Zircaloy component of BWR high burnup 9x9 Lead Use Assemblies, **IAEA Technical Meeting on High Burnup fuel Experience and Economics**, Sofia, Bulgaria, 2006.

[33] ORGANISATION FOR ECONOMIC CO-OPERATION AND DEVELOPMENT - NUCLEAR ENERGY AGENCY. DOS SANTOS, A. et al. **Critical loading**

configurations of the IPEN/MB-01 reactor considering temperature variation from 14 °C to 85 °C, (LEU-COMPTHERM-046).

[34] REITER, C.; BREITKREUTZ, H.; RÖHRMOSER, A.; SEUBERT, A. e PETRY, W. Neutronic simulations for the FRM II, **Annals of Nuclear Energy**, 131, p. 1-8, 2019.

[35] PUSA, M. e LEPPÄNEN, J. Computing the Matrix Exponential in Burnup Calculations, **Nucl. Sci. Eng.**, 164, p. 140-150, 2010.

[36] PUSA, M. Rational Approximations to the Matrix Exponential in Burnup Calculations., **Nucl. Sci. Eng.**, 169, p. 155-167, 2011.

[37] LEPPÄNEN, J. Performance of Woodcock delta-tracking in lattice physics applications using the Serpent Monte Carlo reactor physics burnup calculation code, **Annals of Nuclear Energy**, 37, p. 715–722, 2010.

[38] VALTAVIRTA, V.; LEPPÄNEN, J. e VIITANEN, T. Coupled neutronics–fuel behavior calculations in steady state using the Serpent 2 Monte Carlo code, **Annals of Nuclear Energy**, 100, p. 50–64, 2017.

[39] MARGULIS, M. e GILAD, E. Monte Carlo and nodal neutron physics calculations of the IAEA MTR benchmark using Serpent/DYN3D code system, **Progress in Nuclear Energy**, 88, p. 118-133, 2016.

[40] FRIDMAN, E. e HUO, X. Dynamic simulation of the CEFR control rod drop experiments with the Monte Carlo code Serpent, **Annals of Nuclear Energy**, 148, p. 1-7, 2020.

[41] ALQAHTANIA, M.; BUIJSA, A. e DAYA, S. E. Experimental measurement and Monte Carlo code simulation of the gamma heating at different irradiation sites in a nuclear research reactor, **Nuclear Engineering and Design**, 364, p. 1-9, 2020.

[42] ČALIĆ, D.; ŽEROVNIK, G.; TRKOV, A. e SNOJ, L. Validation of the Serpent 2 code on TRIGA Mark II benchmark experiments, **Applied Radiation and Isotopes**, 107, p. 165–170, 2016.

[43] ČALIC, D.; ŠTANCAR, Z. e SNOJ, L. Analysis of VENUS-2 benchmark using Serpent 2 code, **Annals of Nuclear Energy**, 116, p. 334–346, 2018.

[44] PECCHIA, M.; WICAKSONO, D.; GRIMM, P.; VASILIEV, A.; PERRET, G.; FERROUKHI, H. e PAUTZ, A. Validation of Monte Carlo based burnup codes against LWR-PROTEUS Phase-II experimental data, **Annals of Nuclear Energy**, 97, p. 153–164, 2016.

[45] MERCATALI, L.; BEYDOGAN, N. e SANCHEZ-ESPINOZA, V. H. Simulation of low-enriched uranium burnup in Russian VVER-1000 reactors with the Serpent Monte-Carlo code, **Nuclear Engineering and Technology**, 53, p. 2830-2838, 2021.

[46] FRIDMAN, E.; KOCHETKOV, A. e KRÁSA, A. Modeling of FREYA fast critical experiments with the Serpent Monte Carlo code, **Annals of Nuclear Energy**, 108, p. 239–252, 2017.

- [47] FERRARO, D. e VILLARINO, E. Full 3-D core calculations with refueling for the OPAL Research Reactor using Monte Carlo Code Serpent 2, *Annals of Nuclear Energy*, 92, p. 369–377, 2016.
- [48] ALAMA, S. B.; KUMARC, D.; ALMUTAIRID, B.; RIDWANA, T.; GOODWIN, C. e PARKS, G. T. Lattice benchmarking of deterministic, Monte Carlo and hybrid Monte Carlo reactor physics codes for the soluble-boron-free SMR cores, *Nuclear Engineering and Design*, 356, p. 1-5, 2020.
- [49] UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION. POWERS, D, **4.3 – Nuclear Design** (*AP1000 Design Control Document*), disponível em <<https://www.nrc.gov/reactors/new-reactors/design-cert/ap1000.html>>, acessado em 12 março 2021.
- [50] WESTINGHOUSE ELECTRIC COMPANY. LAHODA, E. J. **Development of LWR fuels with enhanced accident tolerance**, 2015, (Technical report RT-TR-15-34).
- [51] LOS ALAMOS NATIONAL LABORATORY. **Advanced Moderator Material Handbook**, 2020, (LA-UR 20-27683).
- [52] BROOKHAVEN NATIONAL LABORATORY. National Nuclear Data Center, disponível em :<<https://www.nndc.bnl.gov/>> , acessado em 22 abril 2022.
- [53] OETTINGEN, M. e CETNAR, J. Validation of gadolinium burnout using PWR benchmark specification, *Nuclear Engineering and Design*, 273, p. 359–366, 2014.
- [54] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **INDC International Nuclear Data Committee, Thermal Neutron Capture Cross Sections Resonance Integrals And G-Factors**, 2003, (INDC(NDS)-440).
- [55] BENEDICT, M. e PIGFORD, T. H. **Nuclear Chemical Engineering**, McGraw Hill Book Company, New York, Second Edition, 1981, ISBN-13: 978-0070045316.
- [56] TANG, C.; STUEBER, M.; JUERGEN, H. e STEINBRUECK, M. Protective coatings on zirconium-based alloys as accident-tolerant fuel (ATF) claddings *Corrosion Reviews*, p. 141–165, 35(3), 2017.

4 CONCLUSÕES e TRABALHOS FUTUROS

Este trabalho visou por meio de simulações computacionais executar avaliações e análises de potenciais candidatos a combustíveis tolerantes a falha considerando duas disciplinas distintas e complementares importantes no projeto do núcleo de reatores: desempenho de combustível e neutrônica.

Destacam-se a seguir as principais as conclusões deste Trabalho:

- o programa TRANSURANUS versões 2017 e 2019 utilizadas neste trabalho foram modificadas com o objetivo de considerar a liga FeCrAl como opção de revestimento. As modificações realizadas foram avaliadas por meio de dois experimentos distintos e os resultados obtidos foram coerentes e qualitativamente concordantes;
- todas as simulações do experimento relacionado com o desempenho mecânico-estrutural em condições de acidente (LOCA) com as duas versões (2017 e 2019) do programa TRANSURANUS apresentaram os tempos de ruptura do revestimento de FeCrAl superiores quando comparado com o revestimento de Zircaloy-4, evidenciando a superioridade das propriedades mecânicas quando comparado com Zircaloy-4;
- os resultados das simulações do experimento teórico (*Benchmark INL*) representativo de uma condição estacionária com acúmulo de queima evidenciaram desempenho superior do revestimento formado com a liga de FeCrAl quanto a temperatura central do combustível, o tamanho do vazio (*gap*), pressão interna da vareta e menor formação da camada óxido;
- as simulações tanto nas condição de operação normal e acidente evidenciaram o desempenho superior do revestimento formado com a liga de FeCrAl comparado ao Zircaloy-4;
- as modificações implementadas no programa TRANSURANUS realizadas para a inclusão do FeCrAl como revestimento devem ser futuramente avaliadas e validadas por meio de experimentos e ensaios;

- as simulações neutrônica evidenciam a viabilidade de um projeto de núcleo de reator formado de combustíveis tolerantes a falha;
- o coeficiente de reatividade do moderador que é associado a segurança inerente do reator atende o critério de licenciamento;
- a espessura da camada de cromo no revestimento à base da liga de zircônio deve ser menor que 20 micrometros;
- a utilização do revestimento de FeCrAl com outros tipos de combustíveis diferente do UO_2 não apresenta vantagem significativa quanto ao ganho de reatividade; e
- a melhor estratégia para compensar a penalidade neutrônica do FeCrAl consiste no aumento do enriquecimento do combustível combinado com a otimização dos parâmetros geométricos: espessura e distância centro a centro entre as varetas.

As análises, avaliações e as respectivas conclusões podem contribuir para subsidiar as ações e estratégias voltadas para o desenvolvimento do futuro de um núcleo de reator constituído com combustíveis tolerantes as falhas.

4.1- Trabalhos Futuros

O dinamismo da pesquisa e o desenvolvimento de combustíveis ATF decorrem da necessidade e busca constante da segurança na área nuclear, especialmente pós-acidente de Fukushima. A necessidade de um combustível tolerante a falhas com desempenho superior ao atual sistema combustível já é amplamente reconhecida e consolidada do ponto de vista dos desenvolvedores e projetistas de combustíveis, das indústrias e fabricantes de combustíveis, dos operadores de reatores e dos órgãos licenciadores.

Neste contexto, citam-se a seguir algumas sugestões de trabalhos futuros com foco no escopo de atividades de análise e verificação de combustíveis ATF similares aos desenvolvidos nesta Tese.

- 1) Para o revestimento com camada protetiva baseados nas propriedades termo-mecânicas existentes, podem ser desenvolvidos modelos e correlações voltados para: cinética de oxidação, arrebentamento (*burst*), fluência, hidratação, delaminação, formação de CRUD, corrosão na fase de remolhamento (*quenching*), formação de inter-metálico entre Cr e Zr baseados em modelo de multicamada para as ferramentas computacionais de desempenho do combustível.
- 2) Para o revestimento de FeCrAl baseado nas propriedades termo-mecânicas existentes, podem ser desenvolvidos modelos e correlações voltadas para: oxidação em altas temperaturas, formação de CRUD, fenômeno de PCI, fluência e danos de irradiação para as ferramentas computacionais de desempenho de combustível.

Além da implementação dos novos modelos e correlações, estes após a implementação necessitam ser verificados e validados, para posteriormente subsidiar o desenvolvimento de novos critérios e limites de aceitação de projeto e licenciamento. Neste contexto, novos experimentos e bancadas experimentais ainda devem ser desenvolvidos e realizados.

- 3) Quanto às atividades complementares de neutrônica, destaca-se a necessidade de avaliações quanto a: efetividade de diferentes materiais de veneno queimável ($\text{UO}_2\text{-Gd}_2\text{O}_3$, Gd_2O_3 , Erbó, Háfnio, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-B}_4\text{C}$, Diboreto de zircônio e outros), possíveis impactos na dose ocupacional devido a ativação do FeCrAl e à presença de radionuclídeos na água do circuito primário, tais como : ^{28}Al , ^{27}Mg , ^{24}Na , ^{55}Fe , entre outros, impacto no ciclo do combustível com o aumento do teor do enriquecimento de ^{235}U ;
- 4) Para os combustíveis diferentes de UO_2 , (ex: UO_2 -aditivo, U_3Si_2 , UN, $\text{UO}_2\text{-BeO}$, TRISO, etc) é necessário desenvolver modelos para: difusão e liberação de gases de fissão, inchamento, densificação, interações com o revestimento. Igualmente para os novos revestimentos necessitam ser definidos e estabelecidos os critérios de projeto e os limites aplicáveis ao licenciamento. Especificamente para o combustível $\text{UO}_2\text{-BeO}$ é necessário avaliar impacto na reatividade devido as reações nucleares no isótopo ^9Be e a formação de ^7Li e ^3H .

Complementa-se com as necessidades de desenvolvimento e avaliações de análise de segurança para o processo de licenciamento.

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Diretoria de Pesquisa, Desenvolvimento e Ensino
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242 – Cidade Universitária CEP: 05508-000
Fone/Fax(0XX11) 3133-8908
SÃO PAULO – São Paulo – Brasil
<http://www.ipen.br>

O IPEN é uma Autarquia vinculada à Secretaria de Desenvolvimento, associada à Universidade de São Paulo e gerida técnica e administrativamente pela Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão do Ministério da Ciência, Tecnologia, Inovações e Comunicações.