

UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS
Escola de Engenharia - Departamento de Engenharia Nuclear
Programa de Pós-graduação em Ciências e Técnicas Nucleares

Isabella Rezende Magalhães

ANÁLISE FÍSICO-QUÍMICA E TÉRMICA DE REVESTIMENTOS NUCLEARES A
BASE DE FeCrAl TOLERANTES A ACIDENTES

Belo Horizonte
2020

Isabella Rezende Magalhães

**ANÁLISE FÍSICO-QUÍMICA E TÉRMICA DE REVESTIMENTOS NUCLEARES A
BASE DE FeCrAl TOLERANTES A ACIDENTES**

Versão Final

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares do Departamento de Engenharia Nuclear da Universidade Federal de Minas Gerais como requisito parcial para obtenção do título de Mestre em Ciências e Técnicas Nucleares.

Área de concentração: Engenharia Nuclear e da Energia

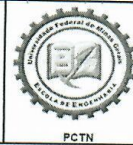
Linha de Pesquisa: Tecnologia de Reatores Nucleares e Ciclos do Combustível

Projeto de Pesquisa: Segurança de Reatores Nucleares

Orientadora: Profa. Dra. Cláudia Pereira Bezerra Lima

Belo Horizonte
2020

M188a	<p>Magalhães, Isabella Rezende. Análise físico-química e térmica de revestimentos nucleares a base de FeCrAl tolerantes a acidentes [recurso eletrônico] / Isabella Rezende Magalhães. - 2020. 1 recurso online (63 f. : il., color.) : pdf. Orientadora: Cláudia Pereira Bezerra Lima.</p> <p>Dissertação (mestrado) - Universidade Federal de Minas Gerais, Escola de Engenharia.</p> <p>Bibliografia: f. 59-63. Exigências do sistema: Adobe Acrobat Reader.</p> <p>1. Engenharia nuclear - Teses. 2. Análise térmica - Teses. 3. Reatores nucleares - Teses. I. Lima, Cláudia Pereira Bezerra. II. Universidade Federal de Minas Gerais. Escola de Engenharia. III. Título.</p> <p style="text-align: right;">CDU: 621.039(043)</p>
-------	---



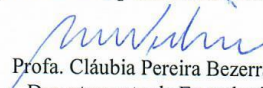
FOLHA DE APROVAÇÃO

ANÁLISE FÍSICO-QUÍMICO E TÉRMICA DE REVESTIMENTOS NUCLEARES A BASE DE FeCrAl TOLERANTES A ACIDENTES

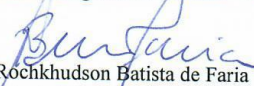
ISABELLA REZENDE MAGALHÃES

Dissertação submetida à Banca Examinadora designada pelo Colegiado do Programa de Pós-Graduação em CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES, como requisito parcial para obtenção do grau de Mestre em CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES, área de concentração ENGENHARIA NUCLEAR E DA ENERGIA.

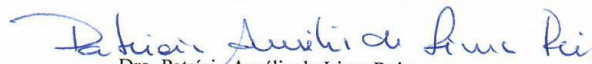
Aprovada em 05 de março de 2020, pela banca constituída pelos membros:


Profa. Cláudia Pereira Bezerra Lima - Orientadora
Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG


Profa. Antonella Lombardi Costa
Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG


Dr. Rochkudson Batista de Faria
Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG


Dra. Glaucia Danielle Leirose
Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG


Dra. Patricia Amélia de Lima Reis
UFMG

Belo Horizonte, 5 de março de 2020.

AGRADECIMENTOS

Tantas pessoas a agradecer, por tantos motivos que talvez eu me esqueça de algo ou alguém, neste caso já começo meus agradecimentos com um pedido de desculpas.

Agradeço aos meus pais pela compreensão, pela forma como me criaram, livre para fazer minhas escolhas profissionais e acadêmicas que me trouxeram aqui. Sou grata a eles pelo apoio, cada um à sua maneira. Meu pai mais quieto, porém, presente e minha mãe sempre questionadora, curiosa e ansiosa. Agradeço a minha irmã Bárbara por ser a luz da minha vida, que em momentos de fraqueza iluminou sempre o futuro que eu almejava e me apoia incondicionalmente para que eu o alcance.

Agradeço aos meus amigos e as pessoas que me querem bem como um todo. Muitos ouviram dezenas de reclamações repetitivas, sofreram com as promessas não cumpridas e mensagens não respondidas. Saliento meu agradecimento aos meus amigos e colegas do DEN, que me ensinaram tanto em tantos aspectos que eu não poderia encontrar palavras que descrevessem de forma fiel. Com ênfase a Patrícia Reis e ao Rochkhudson pelo imenso apoio e incentivo num momento de tantas dúvidas e insegurança.

Ainda no DEN agradeço aos professores, ao professor Clarysson pela paciência e os conselhos, a professora Dôra pelo show de cultura e otimismo e a Antonella pela sensatez e por me apoiar na criação do grupo de divulgação científica Pró-Fissão Nuclear.

Agradeço imensamente à minha orientadora, Cláudia. Pela orientação, sinceridade, dedicação e pela oportunidade de estar aqui hoje. O mestrado era o meu sonho e você entrou de cabeça nele comigo. Obrigada por comprar as minhas ideias, ouvir minhas reclamações, me levar a sério e confiar em mim para levar uma pesquisa que também tem o seu nome. Obrigada por me dar a oportunidade de vislumbrar hoje a pesquisadora que eu posso ser um dia. E acima de tudo, eu agradeço por você ser um exemplo, de mulher forte, independente e grande pesquisadora. Tenha com você toda a minha admiração.

Mesmo sendo repetitiva gostaria de agradecer mais uma vez a Patrícia Reis, pelo seu apoio na reta final, por me pegar pela mão, me dar todo o apoio possível e perder seu carnaval junto comigo para que este trabalho fosse concluído. MUITO obrigada Pati!

Por fim, agradeço à CAPES, FAPEMIG, CNEN e CNPq pelo suporte financeiro.

RESUMO

O objetivo deste trabalho é avaliar a viabilidade de substituição do revestimento atual, Zircaloy-4, por materiais considerados, *Accident Tolerant Fuels* (ATFs), em particular as ligas a base de FeCrAl. A princípio foram caracterizados compósitos de carbetos de silício e ligas metálicas a base de ferro, cromo e alumínio. Posteriormente foram comparadas quatro diferentes ligas a base de ferro com diferentes teores de cromo e alumínio além de acréscimos de outros elementos em menores teores. A comparação foi feita considerando a densidade, expansão térmica, condutividade térmica e calor específico. Essas mesmas características foram utilizadas para estabelecer um comparativo entre as ligas de FeCrAl e o Zircaloy-4. Também foi feita uma análise comparativa entre os mesmos considerando o comportamento térmico dos materiais. Para tanto foram utilizados dados obtidos por meio de simulações utilizando o código RELAP5-3D no qual foi utilizada a nodalização baseada nos dados do FSAR de ANGRA II e as propriedades térmicas obtidas neste trabalho. As simulações foram feitas no estado estacionário e no estado transitório *Loss of Flow Accident* - LOFA. As propriedades físico-químicas foram utilizadas para interpretar o comportamento térmico. As ligas a base de FeCrAl apresentaram comportamento físico-químico e térmico semelhantes e em certas propriedades apresentaram vantagens em relação ao Zircaloy-4. Foi possível concluir que mesmo em baixos teores, a adição de outros elementos causa mudanças nas propriedades térmicas do material. Por meio do estudo executado foi possível avaliar a viabilidade de acordo com as características das quatro ligas a base de FeCrAl estudadas para a substituição do Zircaloy-4; as ligas propostas foram consideradas promissoras enquanto substitutas do revestimento atual.

Palavras chave: LWR; ATF; Ligas a base de ferro, cromo e alumínio; Avaliações físico-químicas; Relap5-3D.

ABSTRACT

In order to increase safety for energy production in nuclear power reactors of the LWR type, new claddings, more efficient than the current one in terms of resistance to oxidation and chemical stability, are studied. In order to gather materials with these characteristics, the class of Accident Tolerant Fuel - ATF was created. The proposals are to replace the cladding or fuel pellet. The objective of this work is to evaluate the feasibility of replacing the current cladding, Zircaloy-4, with materials considered ATFs. Initially, composites of silicon carbide and metallic alloys based on iron, chromium and aluminum were characterized. Subsequently, 4 different iron-based alloys with different levels of chromium and aluminum were compared, as well as additions of other elements in lower levels. The comparison was made considering density, thermal expansion, thermal conductivity and specific heat. These same characteristics were used to establish a comparison between FeCrAl and Zircaloy-4 alloys. A comparative analysis was also carried out between FeCrAl and Zircaloy-4 alloys considering the thermal behavior of the materials. For this purpose, data obtained through simulations using the RELAP5-3D code were used, in which nodalization based on ANGRA II FSAR. The simulations were carried in steady state and in transient state of the *Loss of Flow Accident* - LOFA to evaluate the thermal behavior of the cladding and the fuel pellet. The physical-chemical properties were used to interpret the thermal behavior. The FeCrAl alloys presented similar results. Furthermore, it was possible to conclude that even at low levels the addition of other elements causes changes in the thermal properties of the material, in the case of FeCrAl alloys, compositions that also contained molybdenum, silicon and yttrium were studied. Through the study was possible to evaluate the viability for replace Zircaloy-4 by any of the 4 alloys proposed in the work because there are notable similarities in the behavior of the materials, the alloys presented promising results to replace the traditional material.

Keyword: LWR; Accident Tolerant Fuel - ATF; FeCrAl based alloys; Physical-chemical evaluations; Relap5-3D.

Lista de Abreviaturas e Siglas

ATF - *Accident Tolerant Fuel*

BWR - *Boiling Water Reactor*

C06M - Liga metálica de composição nominal Fe-10Cr-6Al-2Mo-0,2Si-0,05Y

C35M - Liga metálica de composição nominal Fe-13Cr-5Al-2Mo-0,2Si-0,05Y

C36M - Liga metálica de composição nominal Fe-13Cr-6Al-2Mo-0,2Si-0,05Y

CO₂ - Dióxido de Carbono

DEN - Departamento de Engenharia Nuclear da UFMG

DOE - *Department of Energy*

FeCrAl - Ferro, Cromo e Alumínio

FSAR - *Final Safety Analysis Report*

IAEA - *International Atomic Energy Agency*

INB - Indústrias Nucleares do Brasil

INEEL - *Idaho National Engineering & Environmental*

INL - *Idaho Nuclear Laboratory*

LOCA - *Loss of Coolant Accident*

LOFA - *Loss of Flow Accident*

LWR - *Light Water Reactor*

NRC - *National Regulatory Commission*

PWR - *Pressurized Water Reactor*

RELAP - *Reactor Excursion and Leak Analysis Program*

SiC - Carbetto de Silício

UFMG - Universidade Federal de Minas Gerais

UO₂ - Dióxido de Urânio

USNRC - *United States Nuclear Regulatory Commission*

WNA - *World Nuclear Association*

Lista de Figuras

Figura 1: Calor específico (J/kg-K) X Temperatura (K) dos compósitos SiC/SiC	24
Figura 2: Composição axial do combustível com potência zero	30
Figura 3: Calor específico (J/kg-K) X Temperatura (K) das ligas de FeCrAl	37
Figura 4: Condutividade térmica X Temperatura das ligas de FeCrAl	39
Figura 4a: Detalhe da condutividade térmica na temperatura de operação do reator das ligas de FeCrAl	39
Figura 5: Calor específico (J/kg-K) x Temperatura (K) das ligas de FeCrAl e do Zirc-4	40
Figura 6: Condutividade térmica X Temperatura das ligas de FeCrAl comparadas ao Zirc-4	41
Figura 6a: Detalhe da condutividade térmica na temperatura de operação do reator das ligas de FeCrAl comparadas ao Zirc-4	41
Figura 7: Nodalização geral RELAP5 para o PWR de Angra 2	48
Figura 7a: Ampliação da nodalização, onde estão localizados os canais 600 a 609.	49
Figura 8: Classificação dos meshes por nodo	49
Figura 9: Distribuição radial da temperatura considerando os diferentes revestimentos	50
Figura 9a: Detalhe da distribuição de temperatura dos meshes 1 ao 2, centro do combustível	51
Figura 9b: Detalhe da distribuição de temperatura dos meshes 5 ao 6, parte interna do revestimento	51
Figura 10: Temperatura na parte interna do revestimento x Nodos Axiais	51
Figura 10a: Detalhe da região de maior temperatura do revestimento, na região dos axiais 10 a 25	51
Figura 11: Circuito 2, onde está localizada a bomba 216	53
Figura 12: Velocidade das bombas de circulação do refrigerante em função do tempo	54
Figura 13: Vazão do refrigerante antes e após a parada da bomba 216	54
Figura 14: Temperatura do refrigerante na saída do canal termo-hidráulico	55
Figura 15: Variação da temperatura na parte interna do revestimento antes e após o LOFA	55
Figura 16: Temperatura do centro do combustível antes e após o LOFA	56

Lista de Tabelas

Tabela 0: Abundância isotópica e meia vida dos isótopos do zircônio	18
Tabela 1: Elementos das diferentes ligas denominadas Zircaloy	18
Tabela 2: Propriedades do Zirc-4	19
Tabela 3: Composição do Zirlo e OPT Zirlo	20
Tabela 4: Propriedade gerais e físico químicas dos compósitos SiC/SiC	22
Tabela 5: Variação da densidade considerando a expansão térmica dos compósitos SiC/SiC	23
Tabela 6: Propriedade gerais e físico-químicas das ligas a base de FeCrAl.	25
Tabela 7: Potenciais de oxidação para os principais componentes da liga de FeCrAl	28
Tabela 8: Constituição das ligas metálicas a base de FeCrAl	29
Tabela 9: Densidade das ligas de FeCrAl	31
Tabela 10: Constantes relacionadas ao coeficiente de expansão térmica das ligas de FeCrAl	32
Tabela 11: Coeficiente de expansão volumétrica, linear, volume e densidade da liga C06M na faixa de 300 a 1500K	32
Tabela 11a: Coeficiente de expansão volumétrica, linear, volume e densidade da liga C35M na faixa de 300 a 1500K	33
Tabela 11b: Coeficiente de expansão volumétrica, linear, volume e densidade da liga C36M na faixa de 300 a 1500K	34
Tabela 11c: Coeficiente de expansão volumétrica, linear, volume e densidade da liga Kanthal APMT na faixa de 300 a 1500K	35
Tabela 11d: Variação percentual da densidade das ligas de FeCrAl considerando expansão térmica	35
Tabela 12: Constantes para cálculo do calor específico das ligas de FeCrAl	37
Tabela 13: Coeficientes para o cálculo da condutividade térmica das ligas de FeCrAl	38
Tabela 14: Coeficientes de expansão térmica a aproximadamente 300K das ligas de FeCrAl	39
Tabela 15: Massa molar das ligas metálicas de FeCrAl e do Zirc-4	41

Tabela 16: Dados de entrada RELAP5-3D	44
Tabela 17: Informações do Zirc-4 utilizadas para as simulações no RELAP5-3D	45
Tabela 17a: Informações das ligas C06M e C35M utilizadas para as simulações no RELAP5-3D	46
Tabela 17b: Informações das ligas C36M e Kanthal APMT utilizadas para as simulações no RELAP5-3D	47
Tabela 18: Condutividade térmica para à faixa de temperatura apresentada na Fig. 14	52

SUMÁRIO

1.	Introdução	11
1.1.	Objetivos	14
1.2.	Organização da dissertação	15
2.	Combustíveis tolerantes a acidentes para <i>Light Water Reactor</i> – LWR	16
2.1.	<i>Light Water Reactor</i> – LWR	16
2.2.	Ligas a base de zircônio	18
2.2.1.	Oxidação e corrosão do Zircaloy-4	20
2.3.	Compósitos de carvão de silício	21
2.3.1.	Densidade e expansão térmica dos compósitos SiC/SiC	23
2.3.2.	Calor específico - c_p dos compósitos SiC/SiC	24
2.3.3.	Oxidação e corrosão dos compósitos SiC/SiC	24
2.4.	Ligas a base de ferro, cromo e alumínio	25
2.4.1.	Oxidação e corrosão das ligas a base de FeCrAl	26
2.4.1.1.	Alumina ou óxido de alumínio – Al_2O_3	26
2.4.1.2.	Óxido férrico – Fe_2O_3 e óxido ferroso – FeO	27
2.4.1.3.	Óxidos de cromo	27
3.	Análise físico-química comparativa	29
3.1.	Análise das diferentes ligas de FeCrAl	29
3.1.1.	Densidade e expansão térmica	30
3.1.2.	Calor específico	36
3.1.3.	Condutividade térmica	38
3.2.	Análise do Zircaloy-4 e das ligas de FeCrAl	39
3.2.1.	Expansão térmica	39
3.2.2.	Calor específico	40
3.2.3.	Condutividade térmica	41
4.	Análise térmica - FeCrAl x Zircaloy-4	43
4.1.	RELAP5-3D – Reactor Excursion and Leak Analysis Program	44
4.2.	Nodalização do PWR de Angra II	47
4.3.	Análise dos materiais no estado estacionário	50
4.3.1.	Análise térmica do revestimento	51
4.3.2.	Análise térmica do combustível	53

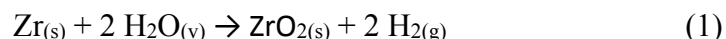
4.4.	Análise dos materiais no estado transitório denominado <i>Loss of Flow Accident</i> – LOFA	53
4.4.1.	Vazão e temperatura do refrigerante	54
4.4.2.	Análise térmica do refrigerante	55
4.4.3.	Análise térmica do revestimento	55
4.4.4.	Análise térmica do combustível	56
5.	Conclusões e trabalhos futuros	57
	Referências	59

1. INTRODUÇÃO

O setor nuclear tem um histórico de adaptação no desenvolvimento e aprimoramento de parâmetros de segurança considerando os acidentes ocorridos. Exemplo disso foi o desenvolvimento do código *Reactor Excursion and Leak Analysis Program (RELAP5)*, que será tratado com mais detalhes no capítulo 4, pelo Laboratório Nuclear de Idaho, desenvolvido na metade da década de 70 e teve seu aprimoramento alavancado pelo patrocínio do Departamento de Energia dos EUA (*Department of Energy - DOE*) - no início dos anos 80, para ser empregado na avaliação de segurança de reatores. Após o acidente na Central Nuclear de Chernobyl em 1986, o DOE reavaliou toda a segurança dos reatores de teste e produção presentes nos EUA. (MESINA, 2016)

Levando em conta o histórico citado, o surgimento de propostas de mudanças e pesquisas não foi surpreendente após o acidente ocorrido na central nuclear de Fukushima em março de 2011. A central nuclear de Fukushima Daiichi foi atingida por um terremoto e posterior tsunami em 11 de março de 2011. De acordo com o relatório do diretor geral da Agência Internacional de Energia Atômica (*International Atomic Energy Agency - IAEA*), publicado em 2015, feito com base principalmente em documentos e relatórios do governo japonês, o acidente ocorreu resumidamente da seguinte forma: das 6 usinas presentes na central nuclear, as unidades 1, 2 e 3 sofreram aumento de pressão causado pela falta de refrigeração externa, nas unidades 2 e 3 foi necessário acionamento das válvulas de alívio de pressão. Na unidade 4, a piscina de descarga de combustível sofreu um aumento de temperatura causado pela perda de refrigeração necessária para manter o calor de decaimento sob controle. A unidade 5 também sofreu com o aumento de pressão, contudo não foi necessário ativar as bombas de alívio da mesma. Já a unidade 6 estava com pressão próxima da atmosférica e da temperatura ambiente e havia baixo calor de decaimento sendo gerado. Apesar dos esforços dos operadores da usina nuclear de Fukushima Daiichi para manter o controle, os núcleos dos reatores das unidades 1 a 3 superaqueceram, o combustível nuclear derreteu e os três vasos de contenção foram violados. Gás hidrogênio foi produzido nos vasos de pressão do reator, pela reação da água com o revestimento, explosões foram causadas no interior dos edifícios e nas unidades 1, 3 e 4, estruturas e equipamentos foram danificados e funcionários foram feridos. A produção de hidrogênio citada ocorreu pela oxidação, causada pela água, do zircônio contido no revestimento do combustível.

A reação ocorreu de acordo com a seguinte Eq. 1:



Baseado nestes dados, calculou-se neste trabalho a variação de entalpia da reação de acordo com os valores padrões de entalpia da formação de substâncias, e encontrou-se ser de aproximadamente -596 kJ. Essa variação mostra que a reação é exotérmica, com liberação de calor para o ambiente. Além disso, a produção de gás hidrogênio - H₂, um gás inflamável, pode ter sido responsável pela explosão ocorrida.

Diante deste cenário, mais uma vez tornou-se necessária a reinvenção do setor nuclear, com objetivo de garantir a segurança e a confiabilidade dos materiais usados em sistemas nucleares como um reator nuclear de potência. Apesar das dificuldades, o setor está em expansão, principalmente considerando a necessidade de busca por opções de geração de energia que tenham menor emissão de gás carbônico - CO₂, de forma que é de suma importância à execução de pesquisas que apoiem a evolução da implantação da produção de energia nuclear de forma segura e eficiente.

De acordo com a Associação Nuclear Mundial (*World Nuclear Association* - WNA) (2019) por meio de análises do atual cenário é esperado crescimento na capacidade global de produção de energia nuclear aumentando até 2040 a uma taxa mais rápida do que em qualquer época desde 1990. Este aumento se deve principalmente a extensos programas de construção de reatores na China, Índia e outros países da Ásia. Embora o crescimento projetado no cenário de referência seja moderado, com a capacidade crescendo para 569 GWe - Gigawatt elétrico - até 2040, em um cenário otimista, o nível atual de capacidade nuclear poderá quase duplicar, para 776 GWe. Para o cenário pessimista, a capacidade nuclear mantém essencialmente seu nível atual durante o período previsto em 402 GWe.

Levando em conta a expectativa de expansão da matriz nuclear mundial, pesquisas sobre todos os materiais que compõem os reatores são de suma importância para o aumento da eficiência, segurança, economia e respeito ao meio ambiente. Dentre os campos de pesquisa relacionados a estes materiais estão os ditos materiais/combustíveis tolerantes a acidentes (*Accident Tolerant Fuels* - ATFs) que terão suas características descritas de forma mais detalhada no capítulo 2 (BILLONE et al., 2016).

Tendo em vista o desenvolvimento e implantação de reatores da Geração IV, podem ocorrer mudanças fundamentais no cenário dos combustíveis e materiais estruturais utilizados no setor nuclear. Estes reatores oferecem a perspectiva de uso mais eficiente de uma variedade de fontes secundárias de suprimento. Em particular, o fechamento do ciclo de combustível nuclear, com o reprocessamento e posterior reciclagem do combustível queimado, já é uma realidade nos atuais reatores *Light Water Reactor* (LWR) (*Pressurized Water Reactor* (PWR) e *Boiling Water Reactor* (BWR) em funcionamento no mundo e será expandido com a inserção na matriz nuclear mundial dos reatores de Geração IV (WNA, 2019).

Contando com a possibilidade de implantação de reatores de Geração IV por volta de 2040, são necessários estudos sobre as diferenciações dos projetos destes em relação aos tradicionais. Tais diferenças incluem mudanças estruturais, de combustível, moderador, refrigerante e de outros materiais (WNA, 2019). Dentre as propostas que contemplam esse tipo de projeto estão as que não utilizam ligas metálicas a base de zircônio como revestimento e sim outros materiais (BILLONE et al., 2016).

O setor responsável pelo ciclo do combustível nuclear, desde a mineração e o beneficiamento, passando pela conversão, enriquecimento, reconversão, reprocessamento quando realizado, fabricação de pastilhas cerâmicas e fabricação do combustível nuclear, sendo esta última etapa a que inclui a implantação das pastilhas dentro da vareta de revestimento (INB, acessado em FEV/2020), é tradicionalmente caracterizado por um alto nível de competição entre diferentes fornecedores, o que espera-se que se intensifique cada vez mais com o aumento da demanda de combustível nuclear na Ásia e a diminuição no Ocidente (WNA 2019).

Uma maior demanda, além da quantidade, aumenta a possibilidade de implantação de outros tipos de combustíveis nucleares diferentes do tradicional, dióxido de urânio revestido de liga de zircônio. Sendo assim, mais do que nunca o mercado está aberto a propostas de diferenciação dos materiais tradicionais. Entretanto, deve-se ressaltar que qualquer mudança na área nuclear é acompanhada de sérios e restritos estudos para garantir a segurança das instalações, dos trabalhadores nela inseridos e de toda a comunidade local.

De acordo com a necessidade estabelecida anteriormente, vêm sendo desenvolvidos no Departamento de Engenharia Nuclear da UFMG diversos trabalhos relacionados a temática dos materiais resistentes a acidentes. Tais trabalhos geraram as seguintes

publicações: (Faria et al., 2015; Faria et al., 2015b; Faria et al., 2016, Faria et al., 2017, Faria et al., 2019; Faria et al., 2019b; Macieira et al., 2019, Magalhães et al., 2019). Em outros trabalhos, a central nuclear de Angra II, um reator do tipo PWR, foi modelado usando o código RELAP5-3D. Então, com objetivo de contribuir com a pesquisa desenvolvida pelo grupo, este trabalho avalia algumas propostas de ATF, e em particular estuda 4 ligas de FeCrAl, comparando suas características físico-químicas e térmicas com o atual material usado como revestimento, o Zircaloy-4. A avaliação térmica foi realizada utilizando o modelo de Angra II desenvolvido no RELAP5-3D, usando as propriedades físico-químicas obtidas nesta dissertação.

1.1. Objetivos

Inicialmente se avaliarão duas propostas de ATFs, compósitos de carbeto de silício (SiC/SiC ou compósito SiC) e diferentes ligas à base de FeCrAl. Serão apresentadas as características gerais e físico-químicas dos mesmos, que serão posteriormente comparadas com as propriedades do Zircaloy-4. As principais propriedades tratadas serão: densidade, expansão térmica, calor específico, oxidação, corrosão e condutividade térmica. Os materiais para estudo foram selecionados porque têm sido estudadas tanto pelos trabalhos do DEN citados anteriormente, quanto pela comunidade acadêmica como um todo.

Posterior à avaliação físico-química, e utilizando os valores obtidos neste trabalho, foi feita uma análise térmica do comportamento de 4 ligas a base de FeCrAl. Foi priorizado o estudo das ligas diante do material cerâmico considerando a possibilidade de comparação entre o comportamento das mesmas e posterior comparação com o comportamento do Zircaloy-4. A análise térmica foi feita considerando tanto o estado estacionário quanto transitório do tipo *Loss of Flow Accident* (LOFA).

Vale ressaltar que, em geral, os estudos já realizados sobre ligas a base de FeCrAl priorizam o comportamento neutrônico e dão foco a apenas uma das ligas. Neste trabalho, o objetivo é contribuir para a determinação das propriedades físico-químicas nas condições de trabalho de um reator do tipo LWR, e usar estas propriedades para avaliar o comportamento térmico dessas ligas comparadas ao Zircaloy-4, em condições de funcionamento em estado estacionário e transitório. O estudo térmico foi realizado para um reator PWR, em particular, o modelo da central nuclear de Angra II, usando o código termo-hidráulico RELAP5-3D.

1.2. Organização da dissertação

- Capítulo 1: trata-se de uma introdução do assunto de interesse, além da justificativa, objetivo e método de organização do trabalho subsequente.
- Capítulo 2: trata-se da descrição sucinta das diferentes classificações dos reatores nucleares; dos principais componentes do reator LWR, o reator de interesse no estudo; da importância e da necessidade da presença do revestimento; de um apanhado das principais propriedades das ligas a base de zircônio e do processo de oxidação do Zircaloy-4; dos tipos de materiais tolerantes a acidentes e das características que fazem com que os mesmos sejam classificados dessa forma e das duas propostas de ATFs abordadas no trabalho; do compósito de carbeto de silício e suas principais características gerais e físico-químicas; e das ligas à base de FeCrAl além de suas principais propriedades gerais e físico-químicas.
- Capítulo 3: Obtém as diversas propriedades gerais e físico-químicas para as 4 ligas de FeCrAl nas condições de trabalho de um reator LWR e as compara com o Zircaloy-4.
- Capítulo 4: Usando as propriedades obtidas no capítulo 3, faz-se uma análise do comportamento térmico das ligas a base de FeCrAl propostas como revestimento substituinte além das mesmas características em relação ao material padrão, em condições de estado estacionário e em estado transitório. Para o transitório escolheu-se o LOFA e os resultados foram comparados com os obtidos usando Zircaloy-4 como revestimento. Estes estudos foram realizados usando a modelagem de Angra II com RELAP5-3D.
- Capítulo 5: apresentam-se as conclusões de acordo com o objetivo do trabalho além de toda a discussão feita ao longo do mesmo e de perspectivas de trabalhos futuros.

2. COMBUSTÍVEIS TOLERANTES A ACIDENTES PARA *LIGHT WATER REACTOR* - LWR

O acidente ocorrido em Fukushima, em março de 2011, deixou o uso de ligas a base de zircônio em questionamento. A oxidação do zircônio tornou preocupante o uso de ligas a base deste metal em ambiente nuclear, gerando, portanto, uma área de pesquisa com foco na substituição de tal material. Vêm sendo estabelecidos parâmetros para descrição dos diferentes tipos de acidentes nucleares e consequente resposta de cada material diante deste tipo de eventos. Para tanto foi criada a seguinte denominação Materiais/Combustíveis Resistentes a Acidentes. Nesta classe, considerando a proposição de revestimentos, são tratados principalmente materiais livres de zircônio, sejam eles ligas metálicas ou materiais cerâmicos. Tais materiais são classificados como ATFs caso possuam as seguintes características: maior resistência à oxidação, principalmente em ambientes que contenham água; maior estabilidade química, que inclui baixa absorção de hidrogênio para formação de hidretos; maior resistência mecânica, além da manutenção das mesmas em caso de aumento de temperatura (YAMAMOTO et al., 2016).

Foi estabelecido pela Comissão Reguladora Nuclear dos EUA (*United States Nuclear Regulatory Commission* – USNRC) critérios para manutenção da segurança mesmo em situação de acidentes com perda de líquido refrigerante (*Loss Of Coolant Accident* – LOCA) previstos no projeto. Nestes casos o sistema de refrigeração de emergência do núcleo deve limitar a temperatura máxima do revestimento à 1204°C (BILLIONE et al., 2016). Sendo assim as análises serão feitas considerando que este critério será atendido. Ao longo do capítulo 2 serão tratadas as principais características de reatores LWR, as características principais do Zircaloy-4, dos compósitos SiC e das ligas de FeCrAl. Estes últimos materiais são considerados como ATF.

2.1. *Light Water Reactor* - LWR

Os reatores nucleares podem ser classificados de acordo com as seguintes especificações: energia dos nêutrons utilizados para fissão; propósito da instalação; e o tipo de combustível, moderador, quando houver, e refrigerante. O tipo de reator tratado nesta dissertação pode ser classificado como reator cujos nêutrons térmicos são os principais

responsáveis pelas fissões, sendo assim um reator térmico; com objetivo de produzir energia elétrica em larga escala, portanto um reator de potência; que utiliza como refrigerante água leve, classificado portanto como reator a água leve. Dentro deste conceito estão os reatores de água pressurizada (PWR - *Pressurized Water Reactor*), no qual a água em contato com o núcleo não entra em ebulição e o vapor é gerado por meio de um trocador de calor, e os reatores a água em ebulição (BWR - *Boiling Water Reactor*), nos quais não há pressurizador e o vapor gerado passa diretamente pelas turbinas geradoras de energia elétrica (LAMARSH e BARATTA, 2001).

Os principais materiais que compõem um LWR são: o combustível nuclear, que contém os isótopos físeis e férteis, urânio-238 com enriquecimento de até 5% de urânio-235, este último é o principal responsável pelas fissões em cadeia e consequente produção de energia; as estruturas, materiais utilizados como revestimento e pela composição estrutural em geral; moderadores, que têm como função diminuir a energia dos nêutrons produzidos pelas fissões até que os mesmos atinjam a faixa térmica de energia, também agem como refletores evitando a fuga de nêutrons; absorvedores, que absorvem parte dos nêutrons com objetivo de manter as reações em cadeia sob controle; e refrigerante, que tem a função de retirar o calor produzido pelas fissões do núcleo (LAMARSH e BARATTA, 2001).

É importante ressaltar que o revestimento utilizado para o combustível está inserido em um ambiente com alto potencial corrosivo e oxidante quando comparado às condições normais de temperatura e pressão. No reator, o revestimento está submetido ao contato direto com água a altas temperaturas, altas pressões e sofre com a radiação emitida pelas pastilhas que tendem a prejudicar a estrutura cristalina do revestimento.

Após a estrutura cristalina do combustível, a próxima barreira para impedir o escape dos produtos de fissão é o revestimento. Considerando a necessidade da existência do revestimento, o mesmo deve atuar como trocador de calor entre a pastilha combustível e o refrigerante. Sendo assim suas propriedades relacionadas à eficiência de transporte de calor têm relação direta com a produção de energia no reator.

Estabelecida a importância do revestimento, pesquisas que tratem do desenvolvimento de tais materiais com objetivo de aumentar a segurança e eficiência dos mesmos são requeridas. Atualmente, o revestimento padrão utilizado é composto de uma liga metálica que tem como base o zircônio. Dentre as diversas ligas deste material, a mais difundida é o Zircaloy-4, que terá suas propriedades apropriadamente descritas posteriormente.

2.2. Ligas a base de zircônio

O zircônio é um elemento químico, de número atômico 40 pertencente ao grupo dos metais de transição. A abundância isotópica deste elemento é apresentada na Tab. 0 a seguir:

Isótopo	Abundância	Meia vida	Decaimento	Produto
⁹⁰ Zr	51.45%	Estável		
⁹¹ Zr	11.22%	Estável		
⁹² Zr	17.15%	Estável		
⁹³ Zr	Traço	1.53x10 ⁶ anos	β·	⁹³ Nb
⁹⁴ Zr	17.38%	Estável		
⁹⁶ Zr	2.80%	2.0x10 ⁹ anos	β· β·	⁹⁶ Mo

Tabela 0: Abundância isotópica e meia vida dos isótopos do zircônio

Os elementos deste grupo são caracterizados, em sua maioria, por serem bons condutores de calor, dúcteis e sólidos a temperatura ambiente. Tais propriedades são de interesse em diversos setores industriais, inclusive o nuclear.

Em um ambiente de trabalho de reatores nucleares, um dos requisitos para o uso de materiais é a garantia de que os mesmos serão considerados seguros. Tal segurança está relacionada às propriedades mecânicas, térmicas, resistência à corrosão e oxidação. Além disso, para uma melhor economia de nêutrons, estes materiais não devem ser absorvedores de nêutrons (PEREIRA, 2014).

Dentre as ligas de zircônio há uma classe específica de interesse denominada Zircaloy, que é uma classe de ligas metálicas que possuem como constituinte principal o zircônio. Tais ligas têm composições distintas. Na Tab. 1 são apresentadas diferentes composições para o Zircaloy.

Denominação	Sn (%wt)	Fe (%wt)	Cr (%wt)	Ni (%wt)	Zr (%wt)
Zircaloy-1	2,5	-	-	-	97,5
Zircaloy-2	1,2 - 1,7	0,07 - 0,2	0,05 - 0,15	0,03 - 0,08	97,87 - 98,65
Zircaloy-3	0,25 - 0,5	0,07 - 0,2	0,05 - 0,15	0,03 - 0,08	99,07 - 99,6
Zircaloy-4	1,2 - 1,7	0,18 - 0,24	0,07 - 0,13	-	97,93 - 98,55

Tabela 1: Elementos das diferentes ligas denominadas Zircaloy (WHITMARSH, 1962, adaptada)

De acordo com Lustman (1955) o Zircaloy-1 foi descoberto pela contaminação do zircônio metálico com o estanho. A liga binária, a base de zircônio e estanho, apresentou bom comportamento em situações de corrosão. O Zircaloy-2 teve pequenas modificações em relação ao seu antecessor, com acréscimo de ferro, cromo e níquel, gerando melhora nas propriedades de resistência a oxidação e corrosão. Uma proposta, denominada Zircaloy-3, com menor teor de estanho não foi fabricada em escala comercial. Isso ocorreu considerando que ligas que não contivessem teor significativo de níquel seriam mais vantajosas. O níquel é um elemento reativo quimicamente em relação ao hidrogênio, formando hidretos, que são substâncias quimicamente instáveis.

Sendo assim, a proposta melhor aceita em comparação com as anteriores foi o Zircaloy-4, uma liga livre de níquel e que apresenta maior resistência à corrosão. A possibilidade de fabricação de ligas livres de níquel e com menor teor de estanho foram viabilizadas pela evolução no processo de fabricação; atualmente os riscos de contaminação por nitrogênio e oxigênio, por exemplo, são menores. O Zircaloy-4 é considerado um dos revestimentos mais utilizados em reatores de potência do tipo LWR. Na Tab. 2 são representadas algumas propriedades do Zircaloy-4 à temperatura ambiente de 25°C.

Propriedades do Zircaloy-4 à 25°C	
Densidade	6550 kg/m ³
Coefficiente de expansão térmica - α	$6 \times 10^{-6}/K$
Condutividade térmica - k	21,5 W/m-K
Temperatura de fusão	2123,15 K

Tabela 2: Propriedades do Zircaloy-4 (Allegheny Technologies Incorporated, 2015)

Ainda à base de zircônio existem propostas mais recentes, como o Zirlo, que apresenta teor de 0,1% de oxigênio. O Zirlo é composto basicamente por zircônio, nióbio, estanho e oxigênio além de precipitados de Zr Nb Fe. Tal liga apresenta melhor resistência à corrosão do que o material padrão, Zircaloy-4, possibilitando, portanto, um aumento no tempo de queima, já que o revestimento sofreria menos dano causado pelo refrigerante. A oxidação e possível corrosão são os principais danos a serem causados pelo refrigerante. Tais fenômenos causam alterações estruturais e podem levar a perdas de resistência mecânica do revestimento (LOBO e ANDRADE, 2010). Por fim, existe ainda o OPT Zirlo, ou Zirlo otimizado, na qual há diferenças nos teores de estanho, nióbio e ferro. Tal liga de zircônio

respondeu melhor aos testes de corrosão em ambientes de trabalho PWR (LOBO, 2002; DUAN et al., 2017). A Tab. 3 trata da composição do Zirlo e OPT Zirlo.

	Fe (%wt)	Nb (%wt)	Sn (%wt)	O (%wt)	Zr (%wt)
Zirlo	0,07 - 0,14	0,5 - 2	0,7 - 1,5	0,09 - 0,15	96,21 - 98,63
OPT Zirlo	0,1 - 0,4	0,5 - 2	0,77	1	95,83 - 97,63

Tabela 3: Composição do Zirlo e OPT Zirlo

Apesar das propostas, todas as ligas apresentadas anteriormente têm um componente em comum, o zircônio. Tal elemento mostrou uma de suas fragilidades em março de 2011, quando ocorreu um acidente na central nuclear de Fukushima, no Japão. Sendo assim, mesmo considerando as vantagens dos materiais propostos, o fato de que todos têm como principal constituinte o zircônio impulsiona a proposta de diferentes materiais que possam ser utilizados como revestimentos do combustível nuclear em reatores do tipo LWR

2.2.1. Oxidação e corrosão do Zircaloy-4

“Em um acidente com perda de líquido refrigerante, LOCA, em um reator refrigerado a água, a temperatura do revestimento deve aumentar em uma atmosfera de vapor. Assim, a oxidação a vapor do revestimento é um dos itens importantes na análise de segurança” (KAWASAKI et al., 1978, p. 37, tradução nossa). Em contato com água ou uma mistura de ar e água pode ocorrer a reação química representada anteriormente pela Eq. 1.

De acordo com Whitmarsh (1962), à medida que ocorre a oxidação e posterior corrosão das ligas a base de zircônio, dois períodos distintos de corrosão foram observados, pré-transição e pós-transição. O período de pré-transição é caracterizado por uma taxa de corrosão decrescente e um filme protetor e aderente com uma aparência brilhante em preto. O período pós-transição é caracterizado por uma taxa de corrosão constante, maior do que a anterior, e pela formação de um filme menos protetor que apresenta uma aparência escamosa branca. O tempo necessário para alcançar a transição depende da temperatura.

De acordo com Medeiros (1975) o óxido de zircônio formado age como um filme protetor até 473K de forma que o progresso de oxidação da liga é dificultado. Contudo, acima de 773K o óxido perde tal propriedade e a oxidação segue aumentando. No caso da formação do óxido, já em temperaturas maiores do que 773K, o mesmo não chega a atuar como protetor e a oxidação segue aumentando enquanto houver suprimento de oxigênio.

Além da formação do óxido também é possível a formação de uma mistura de Zr-O; contudo tal solução só ocorre quando o zircônio se encontra em sua fase alfa, que ocorre a temperaturas entre a ambiente e 1173K (MEDEIROS, 1975). Sendo assim, no evento ocorrido em Fukushima, no qual a temperatura era próxima dos 1273K, a formação da solução sólida foi desprezível, favorecendo a formação do óxido de zircônio.

O processo de oxidação do Zircaloy-4 em presença de vapor de água foi detalhado por Kawasaki et al. (1978). Em uma faixa de temperatura de 1173 a 1603K foram obtidos os seguintes resultados.

1. O filme de óxido produzido em água a alta temperatura diminui as taxas de reação de Zircaloy-vapor a 1173K e 1223K, mas não é eficaz acima de 1273K.
2. Para a mesma quantidade de oxidação, a perda de ductilidade pela reação com vapor geralmente é maior para amostras reagidas em temperaturas mais altas do que para aquelas em temperaturas mais baixas.

Considerando a gravidade da ocorrência de oxidação do zircônio presente no Zircaloy-4 e ligas a base do mesmo, neste trabalho serão tratados materiais livres de zircônio que possam ser utilizados como revestimento em PWR. As duas propostas são: compósitos de carbetos de silício, um material cerâmico; e ligas à base de FeCrAl, com adição, em teores menos significativos, de outros elementos. Contudo, como será abordado mais adiante o foco do trabalho é a comparação do Zircaloy-4 com as ligas a base de FeCrAl.

2.3. Compósitos de carbetos de silício

Os materiais cerâmicos a base de carbetos de silício - SiC, em particular os compósitos cerâmicos de matriz SiC reforçados com fibras contínuas de SiC, compósitos SiC/SiC ou apenas compósitos SiC. De acordo com Neto e Pardini (2016) os compósitos são uma classe de materiais desde polímeros reforçados com fibras, materiais híbridos metal/compósito e concretos estruturais, e compósitos que incorporam matriz metálica ou cerâmica. Portanto a característica básica dos compósitos é combinar, em geral em nível macroscópico, duas fases distintas ou mais, denominadas como matriz e reforço. Estes materiais estão entre os possíveis materiais alternativos para revestimento de combustível PWR, considerando os mesmos como materiais tolerantes a acidentes.

Prevê-se que os compósitos SiC/SiC forneçam benefícios adicionais sobre as ligas a base de Zr: menores seções de choque de absorção de nêutrons, estabilidade química,

capacidade de suportar temperaturas mais altas e resistência à radiação inerente excepcional. Embora o revestimento a base de SiC tenha vantagens consideráveis, existem questões críticas de viabilidade, como corrosão hidrotérmica e perda potencial de retenção de gás de fissão devido a trincas em condições normais de operação (KOYANAGI et al., 2017).

“Os reforços para compósitos podem se apresentar na forma de fibras contínuas, picadas e na forma de partículas. As fibras e filamentos são elemento de reforço dos compósitos estruturais que efetivamente suportam carregamento mecânico.” (NETO e PARDINI, 2016, p.77). Entretanto as fibras não têm real efetividade no reforço estrutural se não estiverem fixadas por uma matriz; em geral a matriz utilizada no caso dos compósitos de carbetto de silício é o carbono pirolítico (KOYANAGI et al., 2017). De acordo com Silva (2002) o carbono pirolítico possui estrutura metaestável com características turbostráticas onde os cristalitos hexagonais possuem grande desordem orientacional e translacional e ligações covalentes entre os carbonos localizados em diferentes planos. Estes materiais, devido à desordem mencionada, possuem excelentes propriedades mecânicas.

A fibra de SiC utilizada para aplicações no setor nuclear é considerada quase estequiométrica e cristalina devido a sua estabilidade dimensional. Essa classe de geração III de fibras de SiC inclui: Hi-Nicalon Tipo S - HNS fabricada pela Nippon Carbon Co., Tóquio, Japão; Tyranno SA3 - SA3 fabricada pela Ube Industries Ltd., Ube, Japão; e Sylramic - IBN fabricada pela COI Ceramics, San Diego. Resumidamente, as fibras utilizadas para reforço têm propriedades mecânicas semelhantes: módulo de Young, que está relacionado à rigidez do material e define a relação entre tensão e deformação em um material no regime de elasticidade linear, de aproximadamente 400GPa e resistência à tração a temperatura ambiente maior do que 2GPa. O efeito da fibra nas propriedades do tubo é altamente dependente da arquitetura da fibra (KOYANAGI et al., 2017). Propriedades gerais e físico-químicas dos compósitos de carbetto de silício são dadas na Tab. 4.

Propriedades gerais e físico-químicas	
Temperatura de fusão	Aproximadamente 3000K
Densidade	2600 a 2800kg/m ³ de acordo com o tipo de fibra utilizada
Varição percentual da densidade considerando a expansão térmica	aproximadamente 0,20%
Condutividade térmica	70W/m-K

Tabela 4: Propriedades gerais e físico-químicas dos compósitos SiC/SiC. (KOYANAGI et al., 2017; KOWBEL et al., 2000)

2.3.1. Densidade e expansão térmica dos compósitos SiC/SiC

A densidade dos compósitos de carvão de silício varia entre 2600 e 2800kg/m³ de acordo com o tipo de fibra utilizada. A variação da densidade está relacionada a expansão térmica; do ponto de vista atômico, a expansão térmica é compreendida como o aumento da distância média entre átomos. Tal aumento da distância ocorre devido ao crescimento da energia vibracional dos átomos causado pelo aumento da temperatura do meio que por consequência aumenta a energia cinética dos átomos. O aumento da temperatura pode tanto causar um aumento na energia vibracional quanto uma mudança de fase, no caso das ligas metálicas a fusão (CALLISTER, 2011). O coeficiente de expansão linear é calculado de acordo com a Eq. 2.

$$\alpha = -0,7765 + 1,4350 \times 10^{-2}T - 1,2209 \times 10^{-5}T^2 + 3,8289 \times 10^{-9}T^3 \quad (2)$$

Onde α é dado em 10⁻⁶/K. A Eq. 2 é válida quando 273K < T < 1273K, e T é a temperatura, dada em Kelvin (KOYANAGI et al., 2017). O coeficiente de expansão volumétrica (γ) foi calculado a partir do coeficiente de expansão linear (α) considerando que

$$\gamma = 3\alpha \quad (3)$$

E o aumento de volume foi calculado de acordo com a Eq. 4:

$$\Delta V = V_{\text{inicial}}\gamma(\Delta T) \quad (4)$$

Onde ΔV é a variação de volume, V_{inicial} é o volume inicial, ambos dados em m³ e ΔT é a variação de temperatura. A variação percentual da densidade foi calculada utilizando a densidade a temperatura ambiente e à 1500K são apresentadas na Tab. 5.

Varição % da densidade, considerando a densidade mínima, 2600kg/m ³	Varição % da densidade, considerando a densidade mínima, 2800kg/m ³
0,18	0,17

Tabela 5: Variação da densidade considerando a expansão térmica dos compósitos SiC/SiC

A expansão térmica tem baixa influência na densidade. Tal característica é um impacto positivo considerando que existe menos probabilidade de perda de resistência mecânica causada pela mesma.

2.3.2. Calor específico - c_p dos compósitos SiC/SiC

De acordo com Çengel e Ghajar (2009), o calor específico pode ser definido como a energia necessária para aumentar a temperatura em um grau de uma unidade de massa de algum material. Geralmente é dado em $\text{kJkg}^{-1}\text{°C}^{-1}$ ou $\text{kJkg}^{-1}\text{K}^{-1}$. Portanto o calor específico é uma das propriedades que influenciam diretamente na capacidade de um material em transportar calor.

Na literatura não foram encontrados até então grandes pesquisas a respeito do calor específico dos compósitos de carbetos de silício. Contudo a expectativa é que o comportamento do mesmo seja análogo ao do carbetos de silício de alta pureza, considerando negligenciável o efeito da interface de carbono pirolítico. A Fig. 1 trata do comportamento do calor específico de diversos compósitos de acordo com Snead et al., 2007.

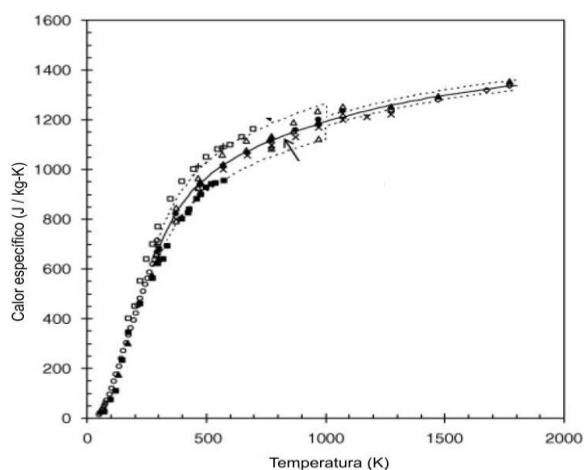


Figura 1: Calor específico (J/kg-K) X Temperatura (K) dos compósitos SiC/SiC (KOYANAGI et al., 2017)

2.3.3. Oxidação e corrosão dos compósitos SiC/SiC

A reação de oxidação do carbetos de silício forma dois óxidos, o gás carbônico - CO_2 e a sílica - SiO_2 . Ambos são solúveis em água, de forma que a oxidação do revestimento causa a corrosão imediata do mesmo.

Os testes de oxidação do SiC foram realizados por Lee et al. (2013) com amostras monolíticas da fase alfa tubular à pressão atmosférica nas temperaturas de 1413K e 1773K. A perda de massa linear, causada pela corrosão, das amostras de SiC devido a formação da camada de SiO_2 foi observada experimentalmente. A taxa de perda de massa aumentou juntamente com o fluxo de vapor e além da temperatura. As taxas de oxidação de SiC durante os testes realizados foram cerca de três ordens de magnitude inferiores às taxas de oxidação do Zircaloy-4. Assim, a substituição do Zircaloy-4 pelo material cerâmico mencionado acima

é vantajosa neste quesito que é a principal motivação para a pesquisa de materiais substitutos ao revestimento atual.

A escassa quantidade de dados físico-químicos a respeito dos diferentes tipos de compósitos de carbetos de silício, comparada à quantidade de dados de outros materiais, é uma grande motivação para desenvolvimento de pesquisas a respeito do material cerâmico. O Departamento de Engenharia Nuclear da UFMG vem dedicando esforços ao desenvolvimento de trabalhos que tratam do comportamento do carbetos de silício como por exemplo os trabalhos de Faria et al., 2017, Faria et al., 2015 e Faria et al., 2015b; tais trabalhos tratam principalmente do comportamento neutrônico do carbetos de silício.

2.4. Ligas a base de ferro, cromo e alumínio - FeCrAl

De acordo com Kiminami et al., (2013) as ligas metálicas são formadas por combinações de elementos metálicos e ainda por teores menores de elementos não metálicos. O desenvolvimento de ligas possibilita a ampliação do alcance de propriedades como aumento de dureza, resistência a corrosão e oxidação. As principais classes de ligas metálicas são as ferrosas e não ferrosas. Neste trabalho serão tratadas 4 diferentes ligas ferrosas contendo cromo e alumínio cujas propriedades gerais são apresentadas na Tab. 6.

Propriedades gerais e físico-químicas	
Temperatura de fusão	Aproximadamente 1800K
Densidade	Aproximadamente 7500kg/m ³ de acordo com o tipo de fibra utilizada
Variação percentual da densidade considerando a expansão térmica de 300 a 1500K	Aproximadamente 0,50%

Tabela 6: Propriedades gerais e físico-químicas das ligas a base de FeCrAl. (ROBB et al., 2017)

Ligas a base de ferro, contendo diferentes teores de cromo e alumínio, com adição ou não de outros elementos são utilizadas industrialmente em situações nas quais resistência à oxidação em altas temperaturas é requerida. Tais propriedades também são desejadas quando se trata do setor nuclear, sendo assim tal classe de ligas é proposta como substituinte às ligas a base de zircônio enquanto revestimento do combustível (FIELD et al., 2018).

Considerando que a principal reação indesejada no caso do acidente de Fukushima, 2011, foi exatamente a oxidação do zircônio pela água, ocorrida na piscina de descarga do combustível irradiado, materiais que resistam a tal fenômeno são de grande interesse para prevenção de acidentes (YAMAMOTO et al., 2016).

A principal causa para a resistência à oxidação citada é a formação de alumina (Al_2O_3) na superfície. Sendo assim, sugere-se tratar a liga antes de seu uso enquanto revestimento para evitar grandes mudanças estruturais ao longo do funcionamento do reator. No entanto, a adição de oxigênio, que é proposta como parte do tratamento da liga, pode causar alterações no comportamento neutrônico, como, por exemplo, aumento na seção de choque de absorção de nêutrons, e tal fato deve ser levado em consideração. Pequenas adições de ítrio - Y - também foram eficazes em aumentar a resistência à oxidação. Quando as concentrações de alumínio são mantidas e há diminuição do teor de cromo, a cinética de oxidação é aumentada, isto é, a reação de oxidação ocorre com maior velocidade; no entanto, o resultado, para a quantidade de material oxidado é o mesmo (FIELD et al., 2018).

Apesar das vantagens mecânicas, é importante ressaltar a existência de desvantagens neutrônicas para a substituição de ligas a base de zircônio por outras a base de FeCrAl. Isso afetaria a população de nêutrons e conseqüentemente a produção de energia seria menor considerando a manutenção do enriquecimento (CHEN e YUAN, 2017).

2.4.1. Oxidação e corrosão das ligas a base de FeCrAl

A oxidação ocorre à medida que o revestimento reage com oxigênio, neste caso presente na água, utilizada como refrigerante. A oxidação causa mudanças no comportamento físico-químico, mecânico, térmico e neutrônico do material. Os óxidos formados diferem tanto do material original, antes da oxidação, quanto uns dos outros.

2.4.1.1. Alumina ou óxido de alumínio - Al_2O_3

A alumina, óxido de alumínio - Al_2O_3 - pode ser classificada como um material cerâmico. Os compostos cerâmicos são, em sua maioria, formados por elementos metálicos e não-metálicos, para os quais as ligações inter-atômicas são total ou predominantemente iônicas com alguma natureza covalente (CALLISTER, 2002). A alumina é formada por um metal, alumínio (Al), e um ametal, oxigênio (O) e tem suas ligações predominantemente

iônicas, com uma diferença de eletronegatividade igual a 2, considerando a escala de Linus Pauling.

A alta aplicabilidade da alumina em diversos setores está relacionada às suas propriedades que incluem: alta resistência à corrosão mesmo em ambientes extremos, com exceção quando em contato com ácido fluorídrico - HF - e bissulfato de potássio - KHSO_4 -, além do fato de manter suas propriedades mecânicas mesmo à altas temperaturas, 1773,15K - 1973,15K (CAMARGO, 1993). Tais características também tornam a formação da alumina interessante como filme protetor contra oxidação para as ligas de FeCrAl. Contudo essa formação pode causar prejuízos neutrônicos considerando que a seção de choque de absorção de nêutrons do isótopo majoritário do oxigênio é próxima do dobro da seção de choque de absorção de nêutrons do alumínio.

2.4.1.2. Óxido férrico - Fe_2O_3 e Óxido ferroso - FeO

Os dois tipos mais comuns de óxido de ferro são com o íon bivalente e trivalente. Dentre os dois tipos o segundo é mais estável eletronicamente, sendo assim o mais comum. O óxido férrico - Fe_2O_3 - tem duas fases, gama e alfa, sendo a segunda mais comum, principalmente a altas temperaturas. O óxido formado é quebradiço e, portanto, não serve como filme protetor para a liga, de forma que o metal permanece exposto à oxidação e a formação do óxido é cada vez maior. (OLIVEIRA, 2013)

A formação de óxido férrico altera as propriedades mecânicas da liga sendo assim indesejável; contudo, tal oxidação ocorre normalmente em ambiente no qual haja água e ar, raramente ocorre quando o ferro está em contato apenas com água. Com exceção de ambientes alcalinos, nos quais podem ser formados tanto o óxido férrico hidratado quanto o hidróxido férrico.

2.4.1.3. Óxidos de cromo

Apesar de apresentar possíveis estados de oxidação de 0 à +6 o óxido mais comum é formado pelo cromo trivalente - Cr_2O_3 -, que se apresenta na forma eletrônica mais estável. Dentre os possíveis óxidos de cromo é o único no estado sólido e praticamente insolúvel em água (MARASCO e YOUNG, 1991).

Considerando os óxidos tratados de ferro, alumínio e cromo, o que tem maior probabilidade de formação de acordo com os padrões de potencial de oxidação é o óxido de alumínio. Os potenciais padrões de oxidação são apresentados na Tab. 7.

Semi reação anódica	Potencial padrão de oxidação (volts)*
$\text{Al}^{+3} \rightarrow \text{Al}$	+1,66
$\text{Fe}^{+3} \rightarrow \text{Fe}$	-0,33
$\text{Cr}^{+3} \rightarrow \text{Cr}$	+0,74

*Esses valores foram obtidos para o estado padrão, isto é, concentração 1 mol/L para espécies em solução e 1 atm para espécies gasosas a 25°C.

Tabela 7: Potenciais de oxidação para os principais componentes da liga de FeCrAl (IQ/UFRJ, acessado em FEV/2020)

Como visto anteriormente, as características da alumina são favoráveis à estrutura da liga, que atua como um filme protetor que evita inclusive a formação de óxidos dos outros elementos. Apesar das ligas propostas serem formadas por outros elementos como ítrio, molibdênio e silício os óxidos destes. Os mesmos não serão tratados porque os elementos estão presentes em baixa concentração nas ligas, em geral menores do que 3% em massa. Também é importante ressaltar que a seção de choque de absorção de nêutrons dos isótopos de maior abundância destes elementos, em geral, é menor do que a seção de choque de absorção de nêutrons dos isótopos do próprio ferro, principal componente da liga. Sendo assim não há um aumento significativo da seção de choque de absorção de nêutrons causado pela adição destes elementos.

As ligas a base de FeCrAl foram selecionadas para comparações físico-químicas e térmicas com o Zircaloy-4 considerando a disponibilidade da maior quantidade de dados a respeito das mesmas quando comparado aos compósitos de carbetos de silício, além da possibilidade de comparação entre as diferentes ligas metálicas, que normalmente têm propriedades semelhantes. Em trabalhos posteriores, comparações do Zircaloy-4 com os compósitos a base de carbetos de silício serão realizadas.

3. ANÁLISE FÍSICO-QUÍMICA COMPARATIVA

De acordo com Pila (2006), a Físico-Química pode ser classificada de maneira genérica como o ramo da ciência que estuda as relações entre as propriedades físicas e a estrutura da matéria, entre as leis de interação química e as teorias que as governam. O objetivo é a descrição dos sistemas materiais e de suas transformações, tanto do ponto de vista macroscópico quanto microscópico.

Neste trabalho o objetivo é, comparando as propriedades físico-químicas, avaliar a viabilidade, ou não, da substituição do Zircaloy-4 por uma liga de FeCrAl, considerando a avaliação dos sistemas metálicos macro e microscopicamente, seja ela uma das 4 propostas ou outra da mesma classe. A princípio serão feitas comparações entre as 4 ligas a base de FeCrAl e posteriormente, destas com o Zircaloy-4. Além disso, também serão avaliadas diferenças que possam tornar o material padrão ou os substituintes mais vantajosos também na aplicabilidade para reatores de nova geração. Tais reatores já seriam fabricados de acordo com os novos revestimentos avaliados, de forma que a não utilização do revestimento padrão não seria grande empecilho.

3.1. Análise das diferentes ligas de FeCrAl

Existem diversas composições diferentes para ligas a base de FeCrAl. Tais diferenças estão relacionadas com o percentual de teor de inserção na composição de cada um de seus componentes: cromo, que estão em sua maioria entre 5 e 25% em massa; alumínio, variando entre 3 e 8%; e adição, ou não de outros elementos como silício, molibdênio, ítrio e nióbio. A composição das ligas que serão estudadas é dada na Tab. 8.

Denominação	Fe (%wt)	Cr (%wt)	Al (%wt)	Mo (%wt)	Si (%wt)	Y (%wt)
C06M	81,75	10	6	2	0,2	0,05
C35M	79,75	13	5	2	0,2	0,05
C36M	78,75	13	6	2	0,2	0,05
Kanthal APMT	71	21	5	3	-	-

Tabela 8: Constituição das ligas metálicas a base de FeCrAl (FIELD et al., 2018)

As ligas dadas na Tab. 8 foram selecionadas considerando a possibilidade de comparação entre diferentes propriedades e relacionando-as aos teores dos elementos apresentados. A seguir serão apresentadas as propriedades das ligas.

3.1.1. Densidade e expansão térmica

O estudo da variação da densidade das ligas de acordo com o aumento de temperatura justifica-se considerando a expansão térmica sofrida pelo material. A expansão térmica ocasiona conseqüente aumento no volume da liga e, considerando que não há alterações na quantidade de massa do revestimento há diminuição da densidade da liga à medida que ocorre o ganho de volume. Uma breve explicação que trata da expansão da liga metálica é dada a seguir.

Considerando o cilindro que forma o revestimento metálico onde estão contidas as pastilhas de dióxido de urânio como um cilindro de 0,5385cm de raio do qual foi removido um cilindro concêntrico de raio 0,4663cm, para melhor compreensão dos valores dos raios apresentados vide figura 2, representando os dados disponíveis no FSAR, 2013.

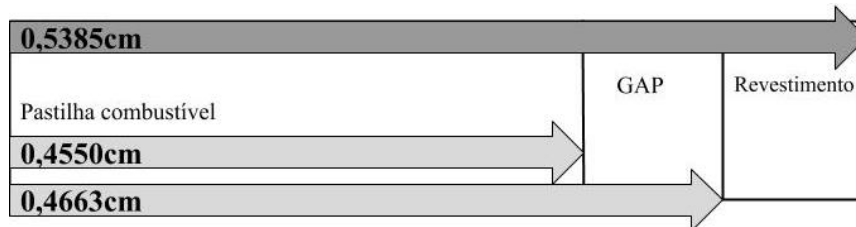


Figura 2: Composição axial do combustível com potência zero.

Onde se localizava o cilindro de raio menor agora estão a pastilha combustível e o GAP. Considerando que o cilindro inicial, teria um ganho de volume positivo com o aumento da temperatura é justo concluir que mesmo após a retirada do cilindro menor a parte restante teria expansão externa, causando o aumento do raio externo do revestimento (MORS, 2016).

Existe uma correlação entre o coeficiente de expansão térmica (α) e a energia das ligações químicas das substâncias, que indica que há uma tendência de que quanto mais forte for a energia de uma ligação química menor será seu α . Isso ocorre porque a expansão ou dilatação térmica está associada à variação da energia de ligação e conseqüentemente com a distância entre os átomos. Sendo assim, ao longo do processo de aquecimento, os átomos do material aumentam a frequência e a amplitude de vibração e a distância média entre os átomos também aumenta (PADILHA, 1997).

O aumento no volume da liga é desejado quando consideramos a formação de produtos de fissão gasosos, à medida que ocorre a queima do combustível. Contudo, é

indesejável uma perda de densidade expressiva. Como dito anteriormente a retenção dos produtos de fissão é feita primariamente nas próprias pastilhas cerâmicas de dióxido de urânio, cuja estrutura molecular acomoda parte dos produtos de fissão do urânio. A segunda barreira de contenção é o revestimento, em geral de Zircaloy-4, que isola o combustível da água do circuito primário do reator, que tem o papel tanto de moderador quanto de refrigerante.

Neste trabalho, a densidade inicial foi calculada de acordo com a densidade de cada um dos elementos, a temperatura ambiente, e o teor que cada um deles representa nas respectivas ligas. A Eq. 6 foi utilizada para o cálculo da densidade.

$$\rho = x_1\rho_1 + x_2\rho_2 + x_3\rho_3 \dots x_n\rho_n \quad (5)$$

Sendo ρ a densidade da liga, ρ_1 , ρ_2 , ρ_3 e ρ_n as densidades dos metais que compõem a liga e x_1 , x_2 , x_3 e x_n os teores de cada um dos elementos. Os resultados são dados na Tab. 9.

Denominação da Liga	Densidade - kg/m ³
C06M	7522,62
C35M	7579,53
C36M	7500,72
Kanthal APMT	7531,10

Tabela 9: Densidade das ligas de FeCrAl

Contudo, considerando que em um ambiente de trabalho de um PWR, o material está submetido a temperaturas mais altas do que a ambiente, é necessário considerar a expansão térmica que ocorre. O coeficiente de expansão térmica (α), dado em $\mu\text{m}/\text{m}\cdot\text{K}$ ou $\times 10^{-6}/\text{K}$, foi calculado de acordo com a Eq. 7.

$$\alpha = A_1T^3 + A_2T^2 + A_3T + A_4 \quad (7)$$

Onde T é temperatura dada em Kelvin e as constantes médias A_1 , A_2 , A_3 e A_4 para as ligas C06M, C35M, C36M e Kanthal APMT são dadas na Tab. 10 (FIELD et al., 2018).

	A_1 ($\mu\text{m-K}^3/\text{m-K}^4$)	A_2 ($\mu\text{m-K}^2/\text{m-K}^3$)	A_3 ($\mu\text{m-K}/\text{m-K}^2$)	A_4 ($\mu\text{m}/\text{m-K}$)
C06M	$1,07 \times 10^{-9}$	$-2,14 \times 10^{-6}$	$4,69 \times 10^{-3}$	10,03
C35M	$9,10 \times 10^{-10}$	$-1,75 \times 10^{-6}$	$4,53 \times 10^{-3}$	9,81
C36M	$3,08 \times 10^{-10}$	$2,72 \times 10^{-7}$	$2,54 \times 10^{-3}$	10,56
Kanthal APMT	$1,77 \times 10^{-10}$	$9,56 \times 10^{-7}$	$1,94 \times 10^{-3}$	10,27

Tabela 10: Constantes relacionadas ao coeficiente de expansão térmica das ligas de FeCrAl

A partir das constantes apresentadas foram calculados os valores do coeficiente de expansão linear (α) e do consequente coeficiente de expansão volumétrica (γ), sendo o coeficiente de expansão volumétrica o triplo do valor do coeficiente de expansão linear pois o mesmo considera a expansão em 3 dimensões e o primeiro em apenas 1 dimensão. Posteriormente a expansão ocorrida foi considerada como um aumento no volume inicial da liga metálica e um novo valor para densidade da liga metálica foi calculado. Os valores obtidos são dados nas Tab. 11, 11a, 11b e 11c a seguir.

Temperatura (K)	Coeficiente de expansão linear (α) ($\times 10^{-6}/\text{K}$)	Coeficiente de expansão volumétrica (γ) ($\times 10^{-5}/\text{K}$)	Volume Final (m^3)	ρ (kg/m^3)
300.15	11.28	3.38	1.0000	7522.62
400.15	11.64	3.49	1.0035	7496.45
500.15	11.98	3.59	1.0036	7495.69
600.15	12.31	3.69	1.0037	7494.94
700.15	12.64	3.79	1.0038	7494.21
800.15	12.97	3.89	1.0039	7493.47
900.15	13.31	3.99	1.0040	7492.71
1000.15	13.66	4.10	1.0041	7491.91
1100.15	14.04	4.21	1.0042	7491.07
1200.15	14.44	4.33	1.0043	7490.16
1300.15	14.88	4.46	1.0045	7489.18
1400.15	15.36	4.61	1.0046	7488.11
1500.15	15.89	4.77	1.0048	7486.93

Tabela 11: Coeficiente de expansão volumétrica, linear, volume e densidade da liga C06M na faixa de 300 a 1500K

Temperatura (K)	Coefficiente de expansão linear (α) ($\times 10^{-6}/K$)	Coefficiente de expansão volumétrica (γ) ($\times 10^{-5}/K$)	Volume Final (m^3)	ρ (kg/m^3)
300.15	11.04	3.31	1.0000	7579.54
400.15	11.40	3.42	1.0034	7553.70
500.15	11.75	3.53	1.0035	7552.90
600.15	12.10	3.63	1.0036	7552.13
700.15	12.44	3.73	1.0037	7551.36
800.15	12.78	3.83	1.0038	7550.58
900.15	13.14	3.94	1.0039	7549.78
1000.15	13.50	4.05	1.0041	7548.95
1100.15	13.89	4.17	1.0042	7548.08
1200.15	14.30	4.29	1.0043	7547.15
1300.15	14.75	4.42	1.0044	7546.15
1400.15	15.23	4.57	1.0046	7545.07
1500.15	15.75	4.72	1.0047	7543.90

Tabela 11a: Coeficiente de expansão volumétrica, linear, volume e densidade da liga C35M na faixa de 300 a 1500K

Temperatura (K)	Coefficiente de expansão linear (α) ($\times 10^{-6}/K$)	Coefficiente de expansão volumétrica (γ) ($\times 10^{-5}/K$)	Volume Final (m^3)	ρ (kg/m^3)
300.15	11.35	3.41	1.0000	7500.72
400.15	11.64	3.49	1.0035	7474.62
500.15	11.93	3.58	1.0036	7473.96
600.15	12.25	3.67	1.0037	7473.27
700.15	12.57	3.77	1.0038	7472.53
800.15	12.92	3.88	1.0039	7471.76
900.15	13.29	3.99	1.0040	7470.94
1000.15	13.68	4.10	1.0041	7470.07
1100.15	14.09	4.23	1.0042	7469.15
1200.15	14.53	4.36	1.0044	7468.17
1300.15	14.99	4.50	1.0045	7467.14
1400.15	15.49	4.65	1.0046	7466.03
1500.15	16.01	4.80	1.0048	7464.86

Tabela 11b: Coeficiente de expansão volumétrica, linear, volume e densidade da liga C36M na faixa de 300 a 1500K

Temperatura (K)	Coefficiente de expansão linear (α) ($\times 10^{-6}/K$)	Coefficiente de expansão volumétrica (γ) ($\times 10^{-5}/K$)	Volume Final (m^3)	ρ (kg/m^3)
300.15	10.94	3.28	1.0000	7531.10
400.15	11.21	3.36	1.0034	7505.86
500.15	11.50	3.45	1.0035	7505.21
600.15	11.82	3.54	1.0035	7504.50
700.15	12.16	3.65	1.0036	7503.74
800.15	12.52	3.76	1.0038	7502.91
900.15	12.92	3.88	1.0039	7502.03
1000.15	13.34	4.00	1.0040	7501.08
1100.15	13.79	4.14	1.0041	7500.06
1200.15	14.28	4.28	1.0043	7498.98
1300.15	14.79	4.44	1.0044	7497.82
1400.15	15.34	4.60	1.0046	7496.60
1500.15	15.92	4.78	1.0048	7495.29

Tabela 11c: Coeficiente de expansão volumétrica, linear, volume e densidade da liga Kanthal APMT na faixa de 300 a 1500K

A variação percentual de densidade das ligas entre 300,15 e 1500,15K, que é a máxima temperatura a ser mantida pela refrigeração secundária em caso de acidente (BILLONE et al., 2016), é dada a seguir (Tab. 11d).

	C06M	C35M	C36M	Kanthal APMT
Variação % média da densidade	0,47%	0,46%	0,49%	0,47%

Tabela 11d: Variação percentual da densidade das ligas de FeCrAl considerando expansão térmica

Não há uma variação expressiva na densidade das ligas mesmo considerando uma larga faixa de alteração da temperatura. Isso é uma vantagem porque evita o aumento na permeabilidade aos produtos de fissão, com ênfase nos de menor raio atômico, como o trítio advindo de fissões ternárias por exemplo. De acordo com Field et. al. (2018), a permeação de trítio é uma preocupação em propostas de materiais como revestimento. A alta mobilidade

do trítio resulta na capacidade de permear do combustível através do revestimento e chegar ao refrigerante, causando problemas de segurança durante a operação do reator, incluindo maior exposição à radiação para os trabalhadores.

A permeabilidade à trítio está relacionada à energia de ativação de tal propriedade e a temperatura. Contudo fisicamente é possível supor que uma diminuição na densidade poderia causar um aumento na permeabilidade, considerando que existiriam maiores espaços vazios na estrutura. Uma menor alteração de densidade também inibe a formação de porosidade superficial na liga que pode prejudicar a condução de calor.

3.1.2. Calor específico

Em geral as ligas metálicas citadas têm uma variação exponencial do calor específico de acordo com o aumento de temperatura, contudo há um valor máximo e um conseqüente decréscimo. Esse pico ocorre na temperatura Curie, T_c , que pode ser calculada de acordo com a lei de Curie-Weiss, que define em qual temperatura ocorre uma mudança no magnetismo. Nesta temperatura, o ferro tem seu magnetismo diminuído, deixa de ser ferromagnético, para ser paramagnético. Isso ocorre pela expansão do retículo cristalino e de conseqüente afastamento dos elétrons desemparelhados de átomos vizinhos. A diminuição do magnetismo causa um aumento no calor específico do material, a posterior diminuição ocorre pela estabilização do magnetismo, quanto paramagnético. (TAKAHASHI, 1986)

O calor específico das ligas metálicas é dado de acordo com a Eq. 8.

$$C_p = aT + bT^2 + CT^3 + D/T + E \ln [abs(T - T_c) / T_c] \quad (8)$$

As constantes médias a, b, C, D e E são dadas na Tab. 12. (FIELD et al., 2018)

	a (J/kg)	b (J-K/kg x 10 ⁻³)	C (J-K ² /kg x 10 ⁻⁶)	D (J/K ² -kg x 10 ³)	E (J/K- kg)	Tc (K)	
C06M	2.430	-3.957	2.656	-	-	T < Tc	888
	1.827	-1.807	0.6134	-9.419	-54.54	Tc < T < Tf	
C35M	2.450	-4.002	2.720	-	-	T < Tc	870
	1.946	-2.002	0.698	-1.652	-53.93	Tc < T < Tf	
C36M	2.995	-5.953	4.516	-	-	T < Tc	771
	1.456	-1.296	0.438	26.45	-46.89	Tc < T < Tf	
Kanthal APMT	2.540	-4.311	2.982	-	-	T < Tc	852
	1.840	-1.843	0.643	-5.712	-50.38	Tc < T < Tf	

Tf: Temperatura de fusão

Tabela 12: Constantes para cálculo do calor específico das ligas de FeCrAl

A Fig. 3 representa o comportamento do calor específico de acordo com a variação de temperatura. É possível perceber a presença de um pico próximo da temperatura T_c, causado mudança de ferromagnetismo para paramagnetismo após a expansão do retículo cristalino. É possível perceber que todas as ligas apresentam o mesmo comportamento, mesmo que em faixas diferentes de temperatura.

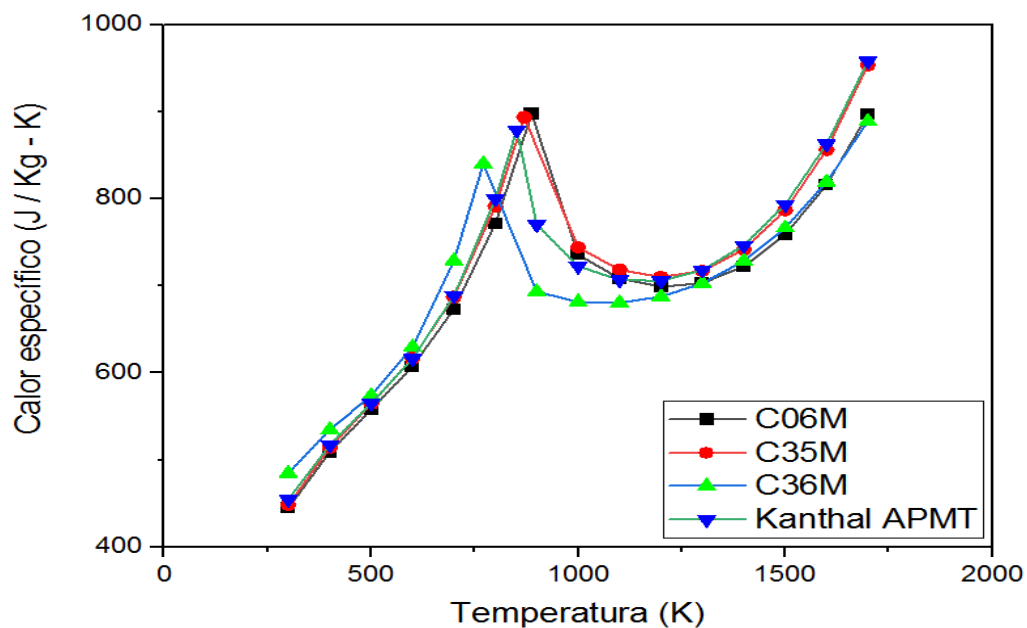


Figura 3: Calor específico (J/kg-K) X Temperatura (K) das ligas de FeCrAl

A grande semelhança dos materiais vista na Fig. 3 é justificável visto que a composição das ligas é análoga do ponto de vista químico, e os elementos são majoritariamente os mesmos.

3.1.3. Condutividade térmica

A condução térmica é o fenômeno que descreve o transporte de calor das regiões de mais alta para as de mais baixa temperatura de um material. Resumidamente caracteriza a habilidade do material em transferir calor (CALLISTER, 2002). A condutividade térmica está diretamente ligada às características químicas do material em questão. Em geral tratando-se de metais puros, a condutividade térmica sofre um decréscimo com o aumento de temperatura, diferente do comportamento para ligas metálicas que podem sofrer aumento ou decréscimo (INCROPERA et al.,2007).

A condutividade térmica das ligas metálicas influi diretamente no comportamento térmico das mesmas e conseqüentemente na potência entregue em um reator nuclear. A condutividade térmica varia de acordo com a temperatura da seguinte forma:

$$\kappa = A_1 T^2 + A_2 T + A_3 \quad (9)$$

Os coeficientes médios A_1 , A_2 e A_3 são dados de acordo com a tabela 13 (FIELD et al., 2018).

	A_1 ($\times 10^{-7}$ W/m-K ³)	A_2 ($\times 10^{-2}$ W/m-K ²)	A_3 (W/m-K)
C06M	6.762	1.563	9.956
C35M	-19.86	1.032	8.502
C36M	-9.184	1.537	8.187
Kanthal APMT	-7.223	1.368	6.569

Tabela 13: Coeficientes para o cálculo da condutividade térmica das ligas de FeCrAl

De acordo com os coeficientes apresentados, a condutividade térmica foi calculada para os materiais de interesse, na faixa de temperatura entre 300,15 e 1500,15K. O valor máximo da temperatura foi estabelecido de acordo com o máximo de temperatura a ser mantido pela refrigeração externa, em caso de acidente. A Fig. 4 apresenta os valores obtidos para as diferentes ligas estudadas.

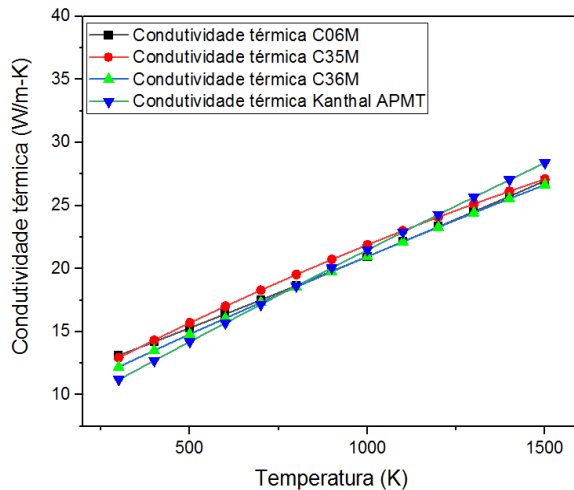


Figura 4: Condutividade térmica X Temperatura das ligas de FeCrAl

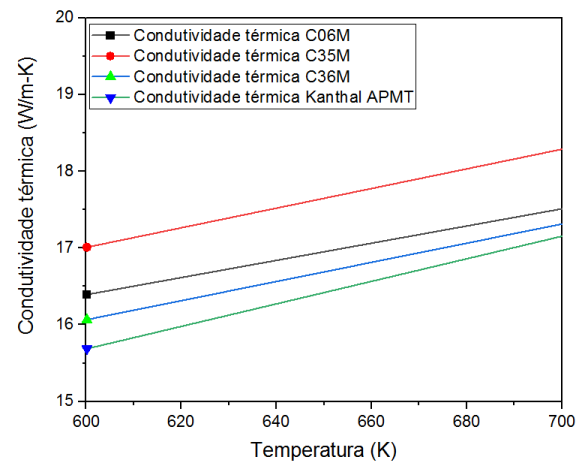


Figura 4a: Detalhe da condutividade térmica na temperatura de operação do reator das ligas de FeCrAl

Mais uma vez, o comportamento semelhante das diversas ligas se deve à composição análoga das mesmas. Sendo assim verifica-se que nenhum dos materiais avaliados apresenta inconsistência que impossibilitaria sua utilização como revestimento. Contudo por meio de uma análise focada na faixa de temperatura de trabalho dos revestimentos de reatores tipo LWR, aproximadamente entre 600 e 700K, é possível organizar as ligas em ordem decrescente de condutividade térmica média: C35M > C06M > C36M > Kanthal APMT. É importante ressaltar que não há, neste quesito, grande diferença entre nenhuma das ligas apresentadas. Contudo, cabe ressaltar que quanto maior a condutividade térmica mais eficiente é considerado o material.

3.2. Análise comparativa entre o Zircaloy-4 e as ligas de FeCrAl

3.2.1. Expansão térmica

A comparação dos coeficientes de expansão térmica dos materiais a temperatura ambiente é dada na Tab. 14.

Ligas	C06M	C35M	C36M	Kanthal APMT	Zircaloy-4
Coeficiente de expansão térmica ($\times 10^{-6}/K$)	11,28	11,04	11,40	10,90	6,00

Tabela 14: Coeficientes de expansão térmica a aproximadamente 300K das ligas de FeCrAl

O coeficiente médio de expansão térmica das ligas de FeCrAl é $11 \times 10^{-6}/K$, quase o dobro do coeficiente do Zircaloy-4. O coeficiente do FeCrAl não causa alteração significativa

na densidade do material sendo assim essa preocupação foi descartada. Contudo a expansão é importante para acomodar os produtos de fissão e do decaimento dos materiais presentes na pastilha combustível. Então um coeficiente tão baixo quanto o do Zircaloy-4 pode representar uma desvantagem nesse quesito.

3.2.2. Calor específico

Visto a importância do estudo do comportamento em relação às propriedades térmicas dos materiais para produção de energia nuclear um comparativo foi estabelecido entre o Zircaloy-4 e as diferentes ligas de FeCrAl. A Fig. 5 apresenta os dados obtidos para o calor específico para as 4 ligas de FeCrAl e o Zircaloy-4 (Field et al. (2018) e Farias et al. (2017)).

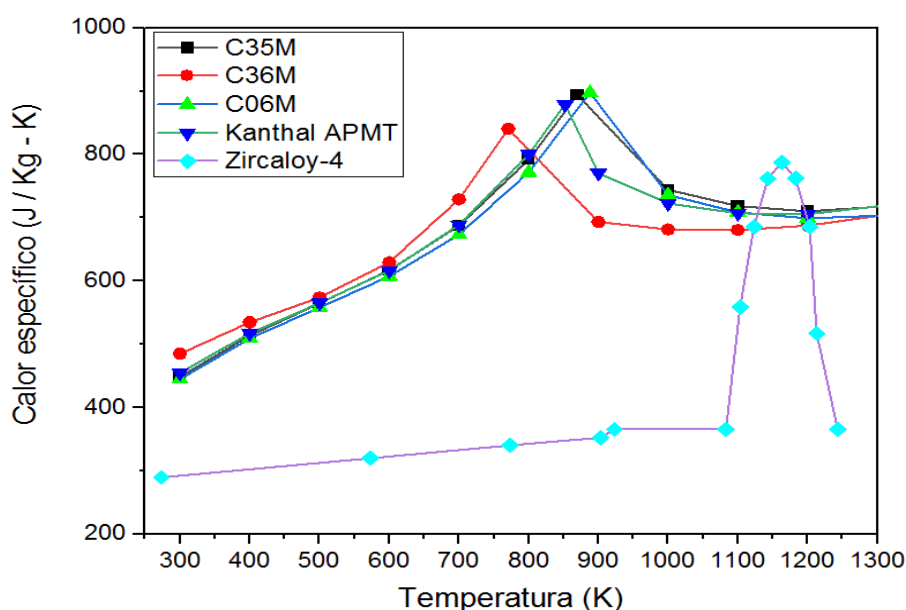


Figura 5: Calor específico (J/kg-K) x Temperatura (K) das ligas de FeCrAl e do Zircaloy-4

É nítido que mais uma vez, na temperatura de operação do revestimento de LWR, 500 à 700K aproximadamente, o calor específico do Zircaloy-4 é mais baixo do que todas as ligas a base de FeCrAl. Este comportamento é amparado pela lei de Dulong-Petit, enunciada em 1819, na qual, partindo de observações experimentais os estudiosos franceses Pierre Louis Dulong e Alexis Thérèse Petit puderam concluir que de forma geral o produto entre a massa molar de uma substância e seu calor específico resultavam em um valor constante. Portanto, o calor específico e a massa molar são inversamente proporcionais. Na Tab. 15 estão as massas molares médias para os materiais analisados.

Liga metálica	C06M	C35M	C36M	Kanthal APMT	Zircaloy-4
Massa Molar (10^{-3} kg/mol)	52,43	52,85	52,33	52,86	91,34

Tabela 15: Massa molar das ligas metálicas de FeCrAl e do Zircaloy-4

Como esperado, o material com maior massa molar, Zircaloy-4, tem menor calor específico. Sendo assim o revestimento padrão sofre mudança de temperatura mais facilmente do que os substituintes propostos. Contudo, em caso de acidente, e de consequente superaquecimento do refrigerante, o FeCrAl demandaria mais calor para sofrer um aumento de temperatura. Tal característica poderia ajudar no controle do evento, além de evitar que calor excessivo fosse transportado para dentro do revestimento onde se encontram as pastilhas combustíveis.

3.2.3. Condutividade térmica

A Fig. 6 mostra a condutividade térmica para os materiais propostos e para o Zircaloy-4.

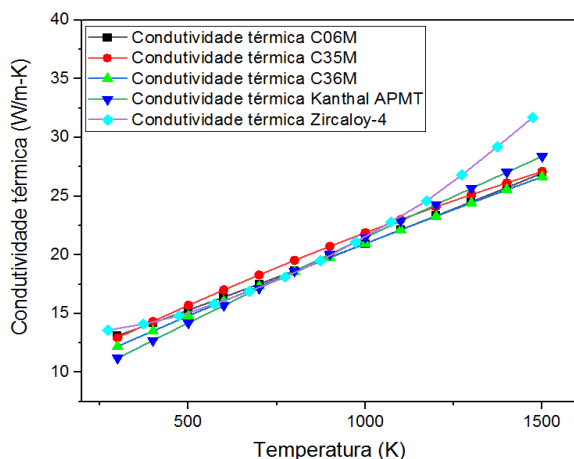


Figura 6: Condutividade térmica X Temperatura das ligas de FeCrAl comparadas ao Zircaloy-4

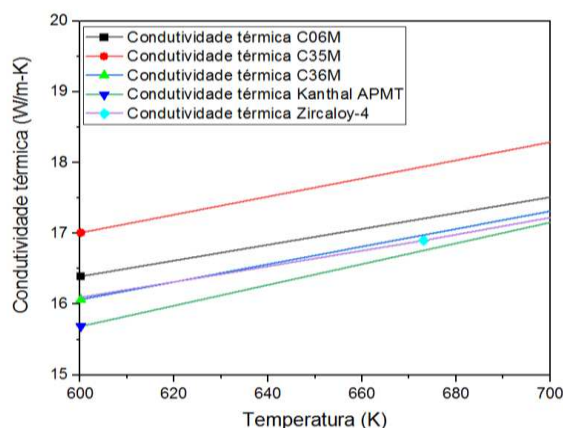


Figura 6a: Detalhe da condutividade térmica na temperatura de operação do reator das ligas de FeCrAl comparadas ao Zircaloy-4

Como pode ser visto nas figuras, as ligas de FeCrAl têm condutividade térmica parecida. Tal comportamento é esperado considerando-se que são todas ligas metálicas e a

condutividade térmica é dependente das características eletrônicas dos elementos que compõem a substância.

Entretanto, é possível notar que na faixa de temperatura do revestimento, em situação de potência total do reator, que para todos os materiais está aproximadamente na faixa de 500 a 700K, a condutividade térmica média do Zircaloy é ligeiramente menor do que das ligas de FeCrAl. Sendo assim as ligas propostas enquanto substituintes, são mais eficientes para a transmissão de energia proveniente do combustível para o refrigerante.

A partir das considerações físico-químicas, tanto individualmente quanto comparando as diferentes ligas metálicas, é possível considerar a possibilidade de substituição do Zircaloy-4 por uma das ligas de FeCrAl. Essa conclusão está relacionada à inexistência de discrepâncias relevantes entre o comportamento dos materiais. Sendo assim, não seriam necessárias grandes alterações estruturais para a substituição em reatores que estão em funcionamento.

Considerando ainda a comparação entre o Zircaloy-4 e FeCrAl, a maior desvantagem do FeCrAl não foi tratada neste trabalho. A penalidade neutrônica é motivo de preocupação quando a utilização de FeCrAl como revestimento é cogitada. Contudo, visando exclusivamente o aumento de segurança e ressaltando que a principal consequência dos acidentes é a oxidação do revestimento, o FeCrAl é sim um candidato forte para substituição das ligas a base de zircônio já que seu comportamento diante de tal fenômeno é melhor do que o Zircaloy-4.

4. ANÁLISE TÉRMICA - FeCrAl x Zircaloy-4

De acordo com Callister (2011) as propriedades térmicas dizem respeito à maneira como um material responde à exposição ao calor. À medida que um sólido absorve calor, sua temperatura e dimensões aumentam. Caso existam gradientes de temperatura, em geral há transferência de calor para as regiões da amostra que tenham temperaturas mais baixas.

As propriedades tratadas anteriormente - densidade, calor específico, expansão térmica e condutividade térmica - estão relacionadas ao comportamento térmico dos materiais. Estas propriedades determinam a quantidade de energia necessária para alcance da temperatura ideal de trabalho, além da energia relacionada à mudança da temperatura do revestimento em caso de acidente ou mudança de distribuição de potência.

O comportamento térmico dos revestimentos FeCrAl e Zircaloy-4 serão descritos a seguir de acordo com simulações computacionais usando o código termo-hidráulico RELAP5-3D. O objetivo das simulações é, usando as propriedades obtidas no capítulo 3, avaliar o comportamento térmico, temperatura do revestimento e do combustível, no ambiente de trabalho de um reator. Neste caso em particular, se usará o modelo desenvolvido por Mantecón (2015) da Central Nuclear de Angra II, um reator tipo PWR.

De acordo com Reis (2013) nos reatores nucleares, a grande complexidade do comportamento do sistema exige contínua verificação e avaliação do mesmo para garantir que os limites de segurança não sejam extrapolados. Portanto, a utilização de códigos computacionais capazes de determinar a distribuição temporal e espacial das condições termo-hidráulicas que estejam ligadas às propriedades dos materiais utilizados e estruturas de calor, torna-se indispensável para as análises de segurança dos reatores nucleares.

A análise do comportamento térmico dos materiais é importante quando tratamos da possibilidade de substituição do revestimento. Como dito anteriormente, o comportamento térmico influencia diretamente na segurança e no funcionamento do reator. O objetivo deste capítulo é, utilizando um código de análise termo-hidráulica, comparar a resposta térmica das ligas de FeCrAl selecionadas, e das mesmas com a do Zircaloy-4. Através desta análise, pretende-se acrescentar mais informações aos estudos já realizados, a exemplos dos executados no DEN-UFMG sobre o comportamento neutrônico, quanto à viabilidade de substituição.

4.1. RELAP5-3D - *Reactor Excursion and Leak Analysis Program*

Desenvolvido pelo Laboratório Nacional de Idaho (*Idaho National Laboratory - INL*) com objetivo de atender a necessidade de análises de segurança da Comissão Regulatória Nuclear dos Estados Unidos (*U.S. Nuclear Regulatory Commission - NRC*), o código foi desenvolvido para permitir, com precisão, a modelagem do comportamento do fluxo multidimensional que pode ser exibido em qualquer componente ou região de um sistema de refrigeração do reator nuclear (INL, acessado em FEV/2020).

A mais recente versão das séries de código RELAP5 é o código RELAP5-3D. RELAP5-3D é um código altamente genérico que, em adição aos cálculos de comportamento do sistema termo-fluido-dinâmico do reator durante um transitório, pode ser utilizado para simular uma grande variedade de transitórios termo-hidráulicos. A principal diferença desse em relação às versões anteriores é a capacidade de realizar cálculos neutrônicos acoplados à termo-hidráulica internamente. Os dados de entrada do código podem ser divididos em quatro classes distintas expostas na Tab. 16 abaixo.

Hidrodinâmica	Estruturas de calor	Sistemas de controle	Neutrônica
1. Todas as áreas e comprimentos de escoamentos e orientações verticais (inclinação) dos componentes do sistema	1. Geometria dos componentes	1. Características dos controladores	1. Reatividade inicial
2. Rugosidade do material e interfaces fluidos	2. Tipos de materiais e propriedades termofísicas*	2. Filtros, ganhos, limites de saturação, atrasos, tempos de abertura/fechamento de válvulas,	2. Dados sobre a seção de choque,
3. Informação suficiente para calcular perdas de carga (geometrias curvas, expansão de área, geometria das válvulas)	3. Localização das fontes quentes, distribuições iniciais de temperatura.	3. Velocidades máxima e mínima das bombas, etc.	3. Dados sobre a fração de nêutrons atrasados, fração dos produtos de fissão, etc.
4. Condições iniciais do reator			

*Dados que sofreram alterações neste trabalho a partir do modelo inicial.

Tabela 16: Dados de entrada RELAP5-3D (MANTECÓN, 2015, p. 26 - 27)

Para se representar uma determinada estrutura de calor, o usuário do RELAP5-3D deve informar as propriedades termofísicas de cada material. Sendo assim, neste caso em particular, as propriedades originais das estruturas de calor do modelo de Angra II foram mantidas e apenas as propriedades correspondentes ao revestimento foram alteradas, para

representar as quatro ligas de FeCrAl avaliadas. As propriedades informadas para cada um dos revestimentos avaliados estão representadas nas tabelas a seguir, Tab. 17, 17a e 17b.

Temperatura (K) - Zircaloy-4	ρc_p (10^6 J/m ³ -K)	Condutividade térmica (W/m-K)
273.15	1.88	13.6
573.15	2.08	14.1
773.15	2.21	14.8
903.15	2.29	15.8
923.15	2.38	16.9
1083.15	2.38	18.1
1103.15	3.63	19.5
1123.15	4.46	21.1
1143.15	4.95	22.8
1163.15	5.12	24.6
1183.15	4.95	26.8
1203.15	4.46	29.2
1213.15	3.36	31.7
1243.15	2.38	34.4

Tabela 17: Informações do Zircaloy-4 utilizadas para as simulações no RELAP5-3D

Temperatura (K) - C06M	ρc_p (10^6 J/m ³ -K)	Condutividade térmica (W/m-K)	Temperatura (K) - C35M	ρc_p (10^6 J/m ³ -K)	Condutividade térmica (W/m-K)
300.15	3.35	13.11	300.15	3.40	12.94
400.15	3.82	14.19	400.15	3.88	14.33
500.15	4.18	15.29	500.15	4.26	15.69
600.15	4.55	16.39	600.15	4.66	17.01
700.15	5.05	17.51	700.15	5.19	18.29
800.15	5.78	18.65	800.15	5.98	19.53
888	6.75	19.65	870	6.75	20.37
900.15	6.36	19.79	900.15	6.19	20.73
1000.15	5.51	20.95	1000.15	5.62	21.89
1100.15	5.31	22.13	1100.15	5.42	23.01
1200.15	5.23	23.32	1200.15	5.36	24.09
1300.15	5.27	24.52	1300.15	5.41	25.13
1400.15	5.41	25.73	1400.15	5.60	26.13
1500.15	5.68	26.96	1500.15	5.94	27.09
1600.15	6.11	28.20	1600.15	6.46	28.01
1700.15	6.71	29.46	1700.15	7.19	28.89

Tabela 17a: Informações das ligas C06M e C35M utilizadas para as simulações no RELAP5-3D

Temperatura (K) - C36M	ρc_p (10^6 J/m ³ -K)	Condutividade térmica (W/m-K)	Temperatura (K) - Kanthal APMT	ρc_p (10^6 J/m ³ -K)	Condutividade térmica (W/m-K)
300.15	3.64	12.21	300.15	3.42	11.19
400.15	4.00	13.51	400.15	3.88	12.71
500.15	4.29	14.80	500.15	4.24	14.20
600.15	4.70	16.07	600.15	4.62	15.69
700.15	5.45	17.31	700.15	5.17	17.16
771	6.28	18.19	800.15	6.00	18.61
800.15	5.58	18.55	852	6.59	19.36
900.15	5.18	19.76	900.15	5.78	20.05
1000.15	5.09	20.95	1000.15	5.42	21.48
1100.15	5.08	22.13	1100.15	5.30	22.89
1200.15	5.13	23.28	1200.15	5.29	24.28
1300.15	5.25	24.42	1300.15	5.38	25.67
1400.15	5.44	25.54	1400.15	5.59	27.03
1500.15	5.72	26.64	1500.15	5.95	28.39
1600.15	6.11	27.73	1600.15	6.47	29.73
1700.15	6.63	28.79	1700.15	7.18	31.05

Tabela 17b: Informações das ligas C36M e Kanthal APMT utilizadas para as simulações no RELAP5-3D

4.2. Nodalização do PWR de Angra II

Foi assinado, em junho de 1975, um acordo de cooperação para o uso pacífico da energia nuclear entre Brasil e Alemanha. A partir deste acordo, o Brasil fez aquisição de duas usinas nucleares, nomeadas Angra II e III, da empresa alemã Siemens/KWU, atualmente Areva ANP. A unidade 2 da Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto está localizada na costa sul do oceano Atlântico na Baía Itaorna no extremo oeste do Estado do Rio de Janeiro. O funcionamento da usina que teve início em 2001, possui um reator PWR cujo combustível

é composto de dióxido de urânio enriquecido revestido de Zircaloy-4 (ELETRONUCLEAR, acessado em MAR/2020). Na usina Angra II (tecnologia Siemens) são utilizados 193 elementos combustíveis com 5 metros de comprimento, cada um com 236 varetas rigidamente posicionadas em uma estrutura metálica, formada por 9 grades espaçadoras, 1 grade protetiva, 20 tubos guias e dois bocais, um inferior e um superior (INB, acessado em FEV/2020).

A nodalização utilizada no trabalho, representada na Fig. 7 de forma simplificada, corresponde ao reator PWR de Angra II. A modelagem foi feita inteiramente considerando os dados do FSAR.

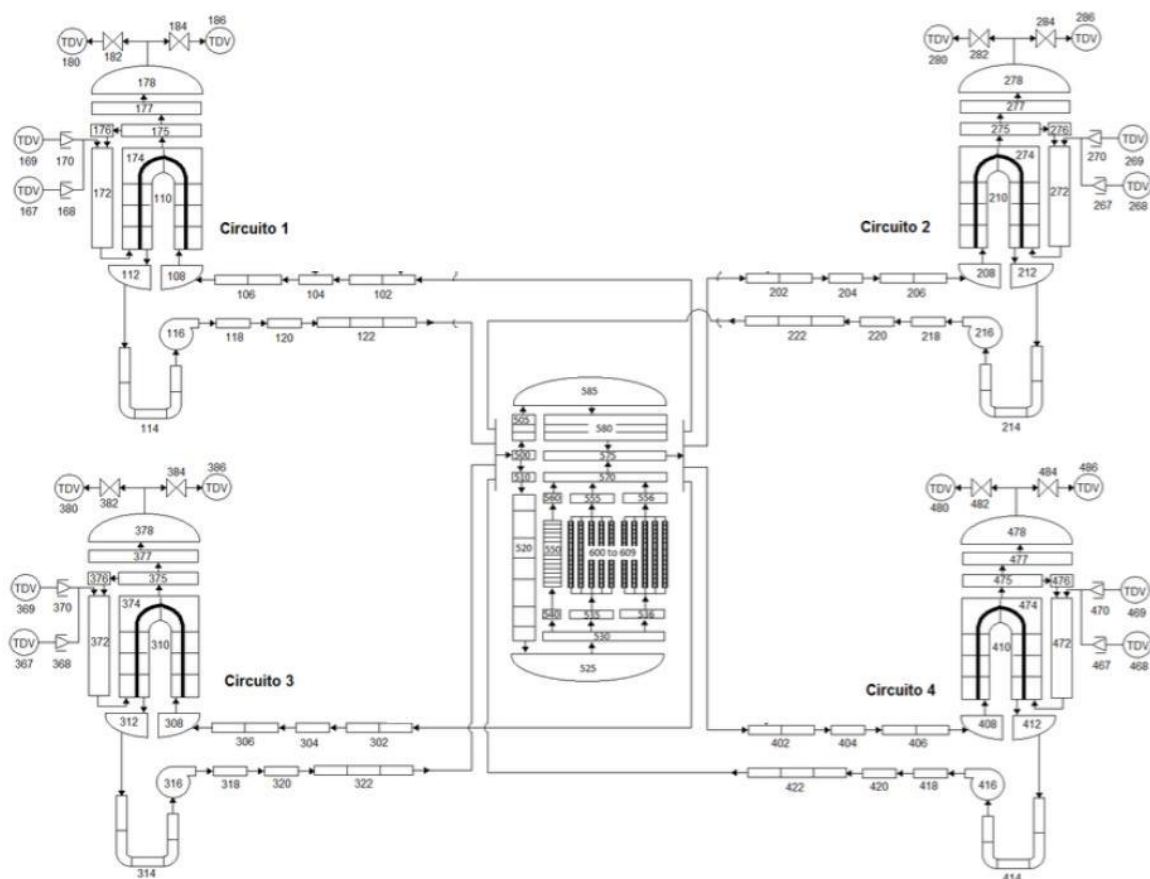


Figura 7: Nodalização geral RELAP5 para o PWR de Angra II. (MANTECÓN et al., 2015, adaptada)

Como mostrado no detalhe da nodalização, Fig. 7b, o núcleo do reator foi simulado utilizando dez componentes unidimensionais do tipo *pipe* (600 – 609), todos com uma área de $0,5588 \text{ m}^2$, representando os canais para a vazão de refrigerante. Estruturas de calor foram associadas a cada um deles.

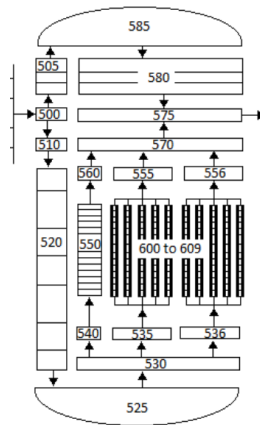


Figura 7a: Ampliação da nodalização, onde estão localizados os canais 600 a 609.

A distribuição axial de potência foi feita considerando o perfil cossenoidal. A potência total do reator foi igualmente distribuída em 10 estruturas de calor e associadas a 10 canais termo-hidráulicos. Cada uma das estruturas de calor foi dividida em 34 nodos axiais e cada um dos nodos axiais das estruturas de calor foi dividido em 6 meshes radiais. Os meshes radiais de 1 ao 4 tratam do combustível e os meshes radiais 5 e 6 representam as partes interna e externa do revestimento respectivamente. Tal organização é dada de forma mais detalhada na Fig. 8.

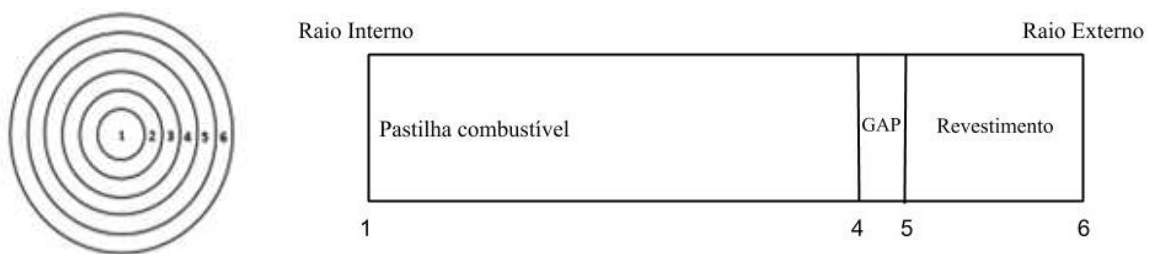


Figura 8: Classificação dos meshes radiais por nodo

Os dados obtidos por meio das simulações foram utilizados como comparativo em relação ao comportamento térmico das ligas metálicas de interesse.

4.3. Análises dos materiais no estado estacionário

De acordo com Perrota (1999), estudos em estado estacionário são feitos considerando condições constantes de potência e de transferência de calor. A opção de estado estacionário determina as condições estáveis se um problema desse tipo é apresentado. Nesta seção são apresentadas as análises que foram feitas considerando o estado estacionário, com objetivo de estabelecer comparações entre os padrões de funcionamento para os revestimentos propostos além da comparação com o comportamento do Zircaloy-4.

A Fig. 9 trata-se da distribuição radial de temperatura considerando o axial 18, que por encontrar-se aproximadamente na metade do elemento combustível apresenta as maiores temperaturas. Os valores das temperaturas calculadas pelo código RELAP5-3D para todos os revestimentos tratados são próximos. As Fig. 9a e 9b são detalhes da Fig. 9. É possível observar que existem diferenças em relação aos diferentes materiais. Tanto no centro do combustível quanto na parte interna do revestimento, a liga C35M apresenta temperatura mais baixa do que as demais.

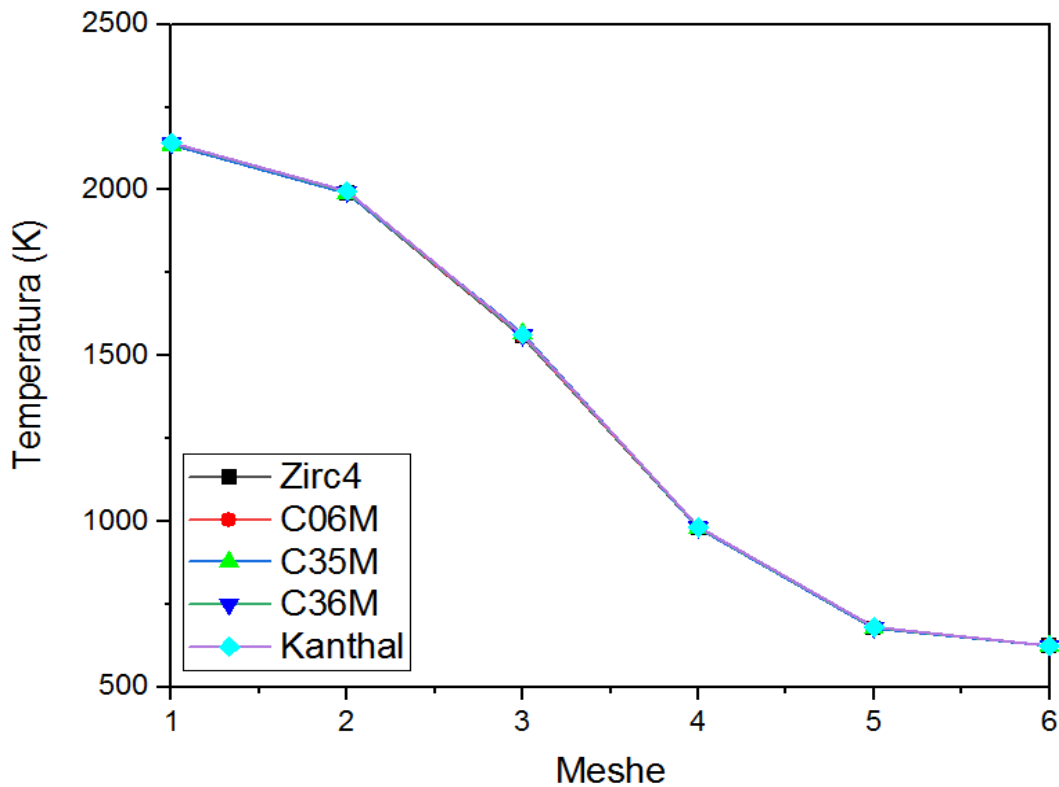


Figura 9: Distribuição radial da temperatura considerando os diferentes revestimentos

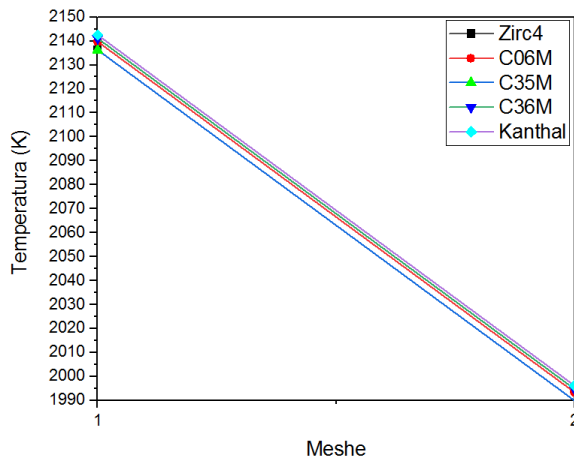


Figura 9a: Detalhe da distribuição de temperatura dos meshes 1 ao 2, centro do combustível

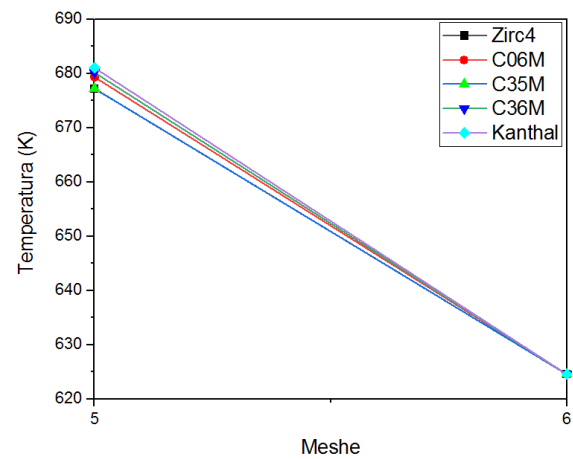


Figura 9b: Detalhe da distribuição de temperatura dos meshes 5 ao 6, parte interna do revestimento

4.3.1. Análise térmica do revestimento

A Fig. 10 mostra a distribuição axial de temperatura da parte interna dos revestimentos (meshe radial 5). A curva apresenta perfil cossenoidal, como esperado. Para a mesma potência, o revestimento C35M apresentou menor temperatura de operação. Isso comprova a influência da condutividade térmica no processo de transferência de calor, já que o mesmo apresenta a maior condutividade térmica entre os revestimentos apresentados.

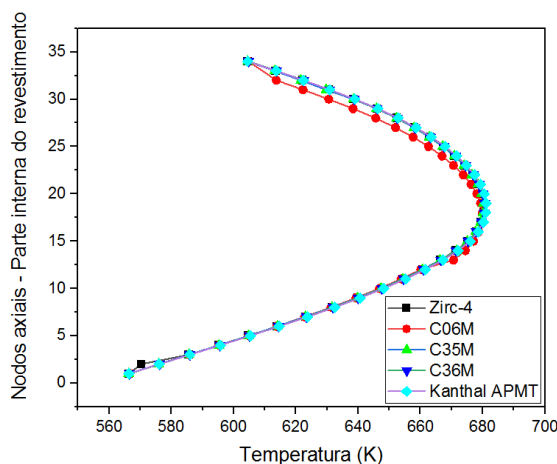


Figura 10: Temperatura na parte interna do revestimento x Nodos Axiais

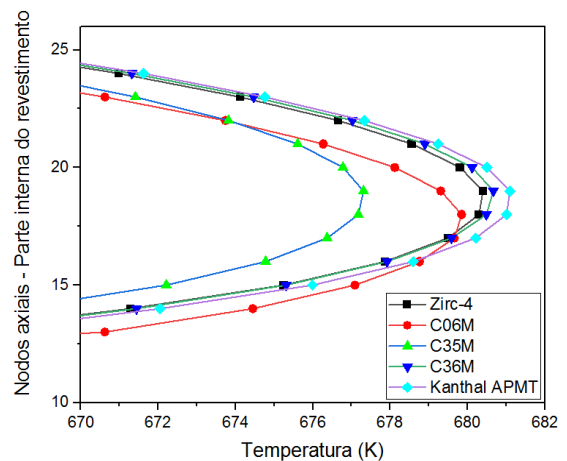


Figura 10a: Detalhe da região de maior temperatura do revestimento, na região dos axiais 10 a 25

Dentre os 34 nodos axiais avaliados foram enfatizados os que apresentaram diferença de temperatura mais representativa, do nodo axial 13 ao 24. A comparação não foi feita

considerando o mesh radial 6 porque a temperatura externa do revestimento foi a mesma independente do revestimento utilizado. Como é possível notar, o comportamento de todos os revestimentos é análogo, contudo, no ponto mais quente, axial 18, a temperatura do revestimento C35M é ligeiramente menor. Uma explicação para este comportamento pode ser o fato de a condutividade térmica deste material ser ligeiramente maior do que os demais. Sendo assim, o processo de transferência de calor do combustível é mais eficiente. De acordo com a composição em massa das ligas, é possível supor que o menor teor de alumínio contribuiu para o aumento da condutividade térmica, pois a liga C35M é a que apresenta menor teor deste elemento dentre as ligas C06M, C35M, C36M. As ligas citadas apresentam os mesmos elementos na composição e por isso a comparação foi considerada entre elas. Na Tab. 18 são apresentados os dados de condutividade térmica considerando a faixa de temperatura apresentada na Fig. 10.

Revestimento	Temperatura - K	Condutividade térmica - W/m-K
Zircaloy - 4	673,15	16,9
	773,15	18,1
C06M	673,15	17,2
	773,15	18,1
C35M	673,15	17,9
	773,15	19,2
C36M	673,15	17,0
	773,15	18,2
Kanthal APMT	673,15	16,8
	773,15	18,2

Tabela 18: Condutividade térmica para à faixa de temperatura apresentada na Fig. 10.

A semelhança entre o comportamento dos revestimentos propostos e o tradicional aumenta a viabilidade de substituição do revestimento. Tal conclusão se baseia no fato do comportamento térmico análogo entre as várias ligas e o Zircaloy-4 e, portanto, não seriam necessárias, termicamente, grandes alterações estruturais e de parâmetros de segurança.

4.3.2. Análise térmica do combustível

O combustível utilizado em todas as simulações foi o dióxido de urânio - UO_2 , tradicionalmente utilizado em reatores nucleares. A Fig. 5 apresenta a temperatura para o centro do combustível para os diferentes revestimentos. Apesar da manutenção do combustível, há mudanças na temperatura do mesmo, devido às diferentes propriedades térmicas dos revestimentos em estudo.

4.4. Análise dos materiais no estado transitório denominado *Loss of Flow Accident* - LOFA

RELAP5-3D permite a simulação de diferentes acidentes/incidentes que incluem eventos tais como perda de refrigerante, transiente antecipado sem *scram*, e transitórios operacionais como perda da água de realimentação e travamento da turbina (*turbine trip*), etc. No trabalho foram feitas simulações no estado transitório do tipo *Loss of Flow Accident* - LOFA. Uma situação do tipo LOFA pode surgir através de falhas associadas às bombas do sistema de resfriamento primário ou através de eventos que resultam em uma diminuição no fluxo do refrigerante primário com as bombas do sistema de resfriamento primário funcionando normalmente (SOARES et al., 2011). Na situação específica tratada no estudo, a bomba 216, circuito 2, foi parada, isto é velocidade nula.

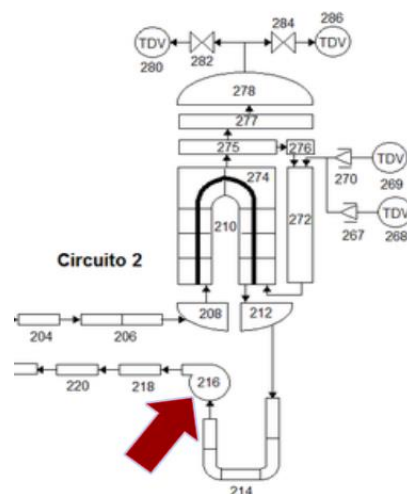


Figura 11: Circuito 2, onde está localizada a bomba 216

Nesta seção será tratado o comportamento do revestimento, refrigerante e do combustível diante da ocorrência de um transitório do tipo LOFA. O estudo será feito considerando um comparativo entre os diferentes revestimentos propostos e o revestimento

padrão. A Fig. 12 mostra a redução da velocidade da bomba 216 a partir de $t = 1000\text{s}$, alcançando velocidade zero em 60s.

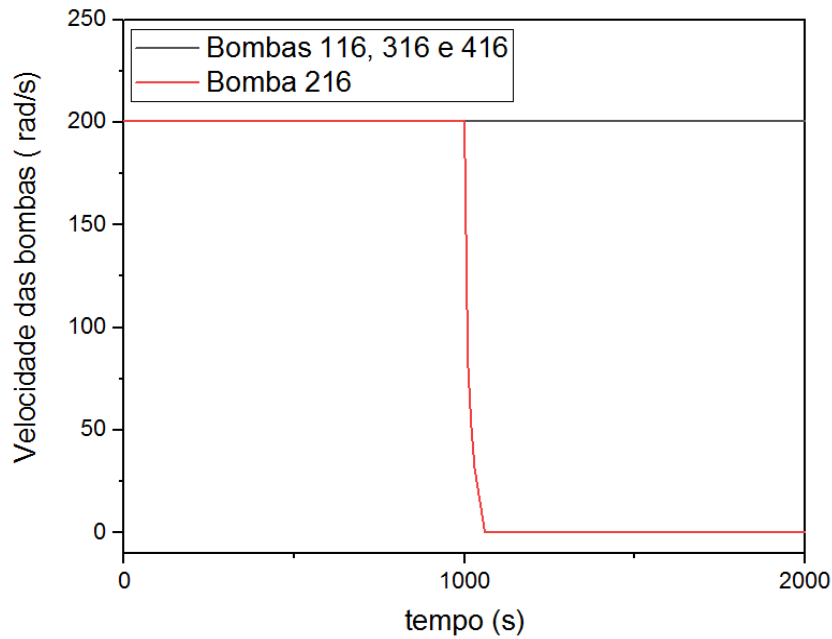


Figura 12: Velocidade das bombas de circulação do refrigerante em função do tempo

4.4.1. Vazão e temperatura do refrigerante

A Fig. 13 mostra a diminuição da vazão na entrada do vaso de pressão (volume 500) após a parada da bomba 216.

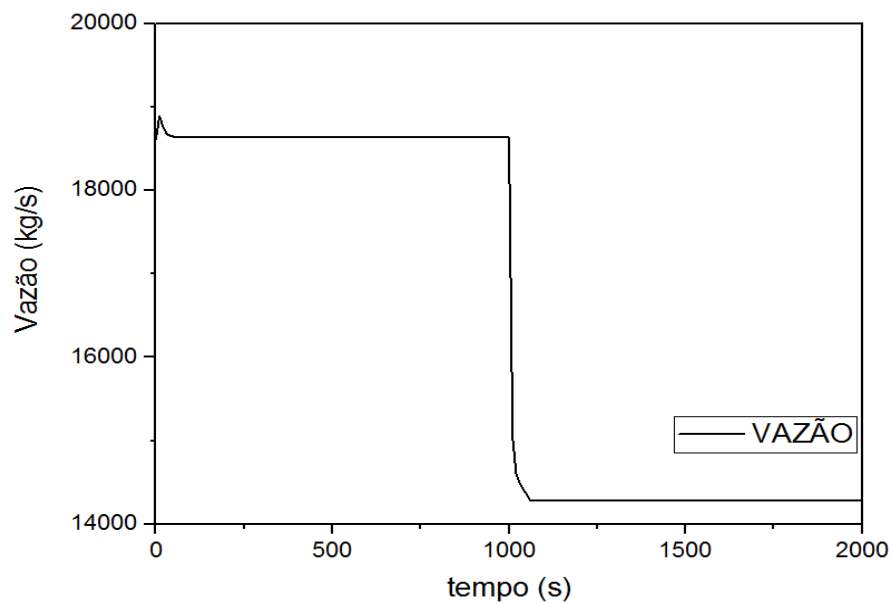


Figura 13: Vazão do refrigerante antes e após a parada da bomba 216

4.4.2. Análise térmica do refrigerante

A Fig. 14 mostra a evolução temperatura do refrigerante considerando a parada da bomba 216 que causou uma diminuição da vazão e consequente aumento na temperatura do refrigerante. Um novo estado estacionário é alcançado e a temperatura do refrigerante não chega à temperatura de saturação (618,9K, na saída do canal termo-hidráulico 600) nas condições de trabalho do PWR de Angra II. Sendo assim não é observada a formação de vazios.

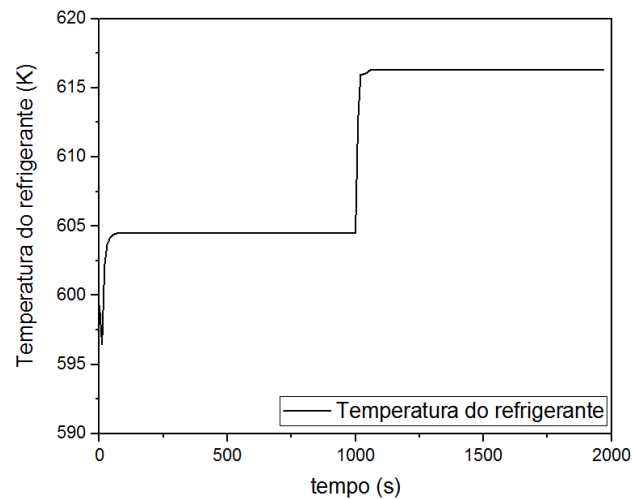


Figura 14: Temperatura do refrigerante na saída do canal termo-hidráulico

4.4.3. Análise térmica do revestimento

Após a parada da bomba 216 ocorreu um aumento na temperatura do revestimento e posteriormente foi estabelecido um novo estado estacionário. A Fig. 15 trata da evolução da temperatura do revestimento com o passar do tempo.

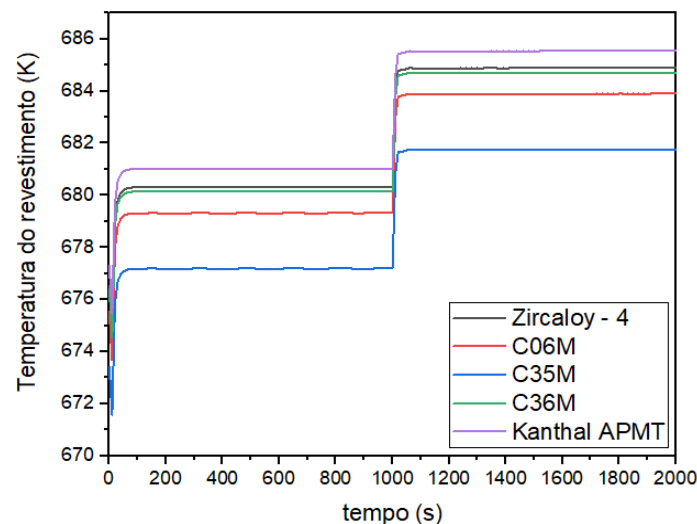


Figura 15: Variação da temperatura na parte interna do revestimento antes e após o LOFA

4.4.4. Análise térmica do combustível

A Fig. 16 trata da análise temporal no centro do combustível em situação transitória.

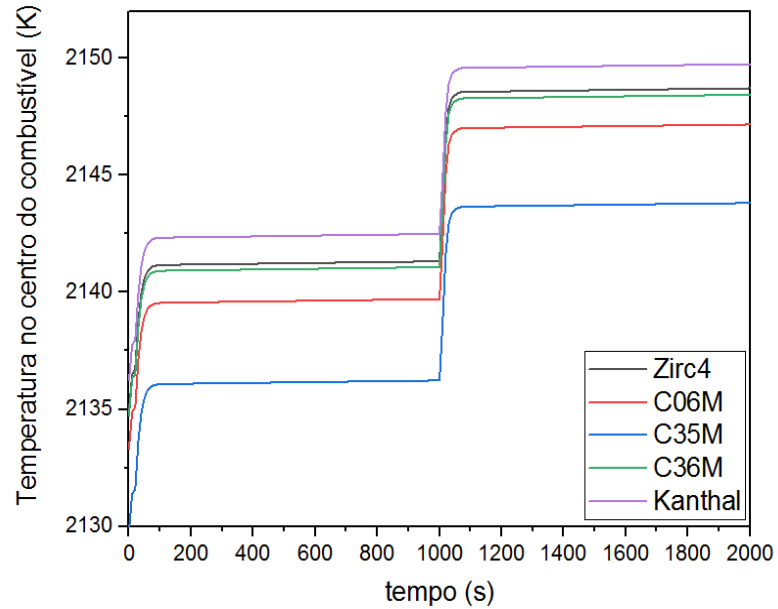


Figura 16: Temperatura do centro do combustível antes e após o LOFA

A melhor resposta foi utilizando a liga C35M, pois o combustível apresentou menor temperatura ao longo do transitório. Quanto menor a temperatura do combustível, menor desgaste mecânico dos materiais.

5. CONCLUSÕES E TRABALHOS FUTUROS

Neste trabalho foi possível avaliar a viabilidade de substituição do Zircaloy-4 pelas ligas a base de FeCrAl analisando as propriedades físico-química e térmicas.

No capítulo 2 foi realizado o levantamento de dados relativos aos compósitos de carbetos de silício, com diferentes fibras utilizadas para reforçá-los. O estudo demonstrou a potencialidade de tal classe de materiais como substitutos do revestimento atual. Foram observadas vantagens quanto à condutividade térmica, menor seção de choque de absorção de nêutrons, temperatura de fusão e resistência à oxidação do material cerâmico diante do Zircaloy-4. Tais propriedades têm relação direta com a eficiência e segurança do material no ambiente de um LWR.

Com relação a trabalhos futuros relacionados diretamente a este capítulo, seria importante o desenvolvimento de uma metodologia análoga à desenvolvida para as ligas de FeCrAl neste trabalho, aplicada aos compósitos de carbetos de silício. Tal metodologia deve considerar as questões singulares relativas ao carbetos de silício, tais como a baixa maleabilidade do material cerâmico. Essa característica dificulta a fabricação das estruturas do reator e do próprio revestimento.

Durante a análise das propriedades físico-químicas das ligas no capítulo 3, foi possível associar as propriedades exibidas às teorias já estabelecidas cientificamente como a lei de Curie-Weiss e a lei de Dulong-Petit. Tais associações são importantes para explicar de forma mais assertiva as diferenças entre as ligas apresentadas e podem ser utilizadas em trabalhos futuros para estabelecer comparações entre materiais diferentes dos apresentados.

Nos capítulos 3 e 4, de maneira geral e com base nos dados obtidos tanto pelo levantamento de referências da literatura quanto por simulações computacionais com uso do código RELAP5-3D, foi possível avaliar as propriedades individuais das ligas propostas a base de FeCrAl, comparando-as entre si. A conclusão a partir destes dados é que em geral as ligas têm propriedades análogas do ponto de vista físico-químico e térmico. Este resultado não é surpreendente levando em conta que as mesmas apresentam composição parecida do ponto de vista estrutural. Apesar da semelhança mencionada, a liga Kanthal APMT apresentou pior desempenho e a liga C35M apresentou características mais vantajosas. Considerando as semelhanças na composição das ligas C06M, C35M e C36M que tem os mesmos elementos em sua constituição, a liga que apresentou melhor desempenho tem o menor teor de alumínio. É possível supor que existe uma correlação entre os fatores mencionados.

A partir da análise do estado transitório *Loss of Flow Accident* – LOFA, realizada no capítulo 4, foi possível perceber que em geral as ligas a base de FeCrAl são mais seguras do que o Zircaloy-4 quanto ao comportamento térmico na situação analisada, pois apresentaram temperaturas mais baixas, inclusive no combustível. Os resultados são coerentes com a classificação das ligas a base de FeCrAl como ATFs. Contudo, entre as ligas propostas, a menos eficiente foi a Kanthal APMT. Também neste caso a liga que apresentou melhor desempenho foi a liga C35M. Considerando as propriedades tratadas no capítulo 3, a propriedade mais influente seria a condutividade térmica. Os resultados do capítulo 4 foram coerentes com o comportamento esperado. A viabilidade do ponto de vista térmico analisado nas situações apresentadas no capítulo 4, não dita por si só a possibilidade de substituição. Outros parâmetros devem ser analisados, dentre eles o neutrônico e o efeito da irradiação ao longo da queima.

REFERÊNCIAS

- Allegheny Technologies Incorporated (2015). "Technical Data Sheet - Zirconium Alloys".
- Andrade, DA, et al. "Simulação de Acidentes tipo LOCA em Angra 2 com o Código RELAP5/MOD3. 2."
- Billone, M. C., et al. Cladding Behaviour During Postulated Design-Basis LOCAs. No. IAEA-TECDOC--1797. 2016.
- Borges, Ronaldo C., and Anibal N. Gebrim. "Representação do sistema de proteção de angra I com o código RELAP5/MOD2." Anais do XI Encontro Nacional de Física de Reatores e Termo-hidráulica-XI ENFIR, Poços de Caldas, MG 18 (1997): 22.
- Callister, W. D., & Rethwisch, D. G. (2011). Materials science and engineering (Vol. 5, p. 344-348). NY: John wiley & sons.
- Callister, William D. "Ciência e engenharia de materiais." Uma introdução 5 (2002): 189-250.
- Camargo, Antonio C. de. "Comparação das características de corpos de alumina, a verde e após sinterização obtidos pelos processos de prensagem uniaxial e prensagem isostática."
- Cengel, Y. A., & Ghajar, A. J. (2009). Transferência de Calor e Massa. Amgh Editora.
- Chaffron, L., Sauder, C., Lorrette, C., Briottet, L., Michaux, A., Gélébart, L., ... & Séran, J. L. (2013). Innovative SiC/SiC composite for nuclear applications. In EPJ Web of Conferences (Vol. 51, p. 01003). EDP Sciences.
- Chen, S., Yuan, C., Neutronic analysis on potential accident tolerant fuel-cladding combination U₃Si₂-FeCrAl. Science and Technology of Nuclear Installations, 2017.
- Duan, Z., Yang, H., Kano, S., Murakami, K., Satoh, Y., Takeda, Y., & Abe, H. (2018). Oxidation and electrochemical behaviors of Al₂O₃ and ZrO₂ coatings on Zircaloy-2 cladding by thermal spraying. Surface and Coatings Technology, 334, 319-327.
- Eletronuclear. Acessado em 4/03/2020. Disponível em <https://www.eletronuclear.gov.br/Nossas-Atividades/Paginas/Angra-2.aspx>
- Faria, R. B., Mantecón, J. C., Hammers, A. R., Costa, A. L., Fortini, A., Pereira, C., PWR Fuel Element Neutronic Analysis with Burnable Poison Rods using Zircaloy and Hi-Nicalon Type S Claddings, MRS Proceedings, 1814, 2016.
- Faria, R. B., Matuck, V., Reis, P. A. L., Marques, R. V. A., Costa, A. L., Pereira, C., Fuels and claddings for PWR reactors – A neutronic analysis. Aguardando publicação, 2019.

Faria, R. B., Reis, P. A. L., Almeida, M. C. B., Costa, A. L., Pereira, C., Neutronic analysis of new cladding in pwr reactor. International Nuclear Atlantic Conference – INAC, Santos, 2019 b.

Faria, R. B., Reis, P. A. L., Velasquez, C. E., Mantecon, J. G., Hamers, A. R., Costa, A. L., Pereira, C., Sensitivity analysis of a PWR fuel element using zircaloy and silicon carbide claddings. Nuclear Engineering and Design, v.320, p.103-111, 2017.

Faria, R. B., Torres, F., Monteiro, f. B. A., Pereira, C., Replacement zircaloy for silicon carbide as fuel cladding material in pwr – a neutronic evaluation. mrs online proceeding library archive. 2015 <http://dx.doi.org/10.1557/opl.2015.125>

Faria, R. B., Velasquez, C. B., Fortini, A., Silva, C. A. M; Pereira C., Impact of fuel burnable poison in fuel element pwr with zircaloy and silicon carbide claddings. In: Global 2015, 2015, Paris. Nuclear Fuel Cycle for Low-Carbon Future, Paris: SFEN, 2015b, v. único, p.1-8.

Faria, R. B. de., Carbetto de Silício Reforçado com fibras de Hi-Nicalon Tipo S como revestimento de reatores PWR – Avaliação Neutrônica. Tese (Doutorado em Ciências e Técnicas Nucleares) – Departamento de Engenharia Nuclear, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, 2017.

Field, Kevin G., et al. Handbook on the Material Properties of FeCrAl Alloys for Nuclear Power Production Applications (FY18 Version: Revision 1). No. ORNL/SPR-2018/905. Oak Ridge National Lab.(ORNL), Oak Ridge, TN (United States), 2018.

FSAR, 2013. “Final Safety Analysis Report – Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto – Unit 2”, Eletrobrás- Eletronuclear, Brazil.

Holt, Mark, Richard J. Campbell, and Mary Beth Nikitin. Fukushima nuclear disaster. Congressional Research Service, 2012.

Idaho National Laboratory - INL. Acessado em 21/02/2020. Disponível em <<https://relap53d.inl.gov/SitePages/Home.aspx/>>

INB - Indústrias Nucleares do Brasil, acessado em 20/2/2020. Disponível em <<http://www.inb.gov.br/Nossas-Atividades/Ciclo-do-combustivel-nuclear/Montagem-do-Elemento-Combust%C3%ADvel>>

Incropera, Frank P., et al. Fundamentals of heat and mass transfer. Wiley, 2007. p. 72-73)

International Atomic Energy Agency. (2015). The Fukushima Daiichi Accident. IAEA.

IQ / UFRJ. Departamento de Química Inorgânica. Acessado em 21/2/2020. Disponível em <https://dqi.iq.ufrj.br/tabela_de_potenciais.pdf>

Kawasaki, S., Furuta, T., & Suzuki, M. (1978). Oxidation of Zircaloy-4 under high temperature steam atmosphere and its effect on ductility of cladding. *Journal of nuclear science and technology*, 15(8), 589-596.

Kiminami, C. S., de Castro, W. B., & de Oliveira, M. F. (2013). *Introdução aos processos de fabricação de produtos metálicos*. Editora Blucher.

Kowbel, W., Bruce, C. A., Tsou, K. L., Patel, K., Withers, J. C., & Youngblood, G. E. (2000). High thermal conductivity SiC/SiC composites for fusion applications. *Journal of nuclear materials*, 283, 570-573.

Koyanagi, T., Katoh, Y., Singh, G., & Snead, M. (2017). SiC/SiC cladding materials properties handbook. *Nuclear Technology Research and Development*, ORNL/TM-2017/385.

Lamarsh, J. R., and Baratta, A. J. *Introduction to nuclear engineering*. Vol. 3. Upper Saddle River, NJ: Prentice hall, 2001.

Lee, Y., McKrell, T. J., Yue, C., & Kazimi, M. S. (2013). Safety assessment of SiC cladding oxidation under loss-of-coolant accident conditions in light water reactors. *Nuclear Technology*, 183(2), 210-227.

Lobo, R. M., Andrade, A. H. P., *Novas ligas de zircônio para aplicação nuclear*. 19º Congresso Brasileiro de Engenharia e Ciência dos Materiais - CBECiMat, 21 a 25 de novembro 2010, Campos do Jordão, SP, Brasil.

Lobo, R. M. "Análise microestrutural do Zircaloy-4 submetido a diferentes tratamentos termo-mecânicos." (2002).

Lustman, B. (1955). *Zirconium-water reactions* (No. WAPD-137). Westinghouse Electric Corp. Atomic Power Div., Pittsburgh.

Macieira, K., Faria, R. B., Martins, F., Pereira, C., *Neutronic analysis of new claddings for pwr nuclear fuels using serpent code*. International Nuclear Atlantic Conference – INAC, Santos, 2019.

Magalhães, I. R., Faria, R. B., Pereira, C., *Study of physical and chemical characteristics of new claddings for nuclear fuel in new generation pwr*s. International Nuclear Atlantic Conference – INAC, Santos, 2019.

Mantecón, J. G., Costa, A. L., Veloso, M. A. F., Pereira, C., Reis, P. A. L., Hamers, A. R., Scari, M. A. "Thermal hydraulic simulations of the Angra 2 PWR," EPJ Nuclear Science and Technology. 1, 5, pp. 1-8 (2015).

Mantecón, J. G. "Modelagem e análise termo-hidráulica do reator nuclear Angra 2 utilizando o código RELAP5-3D." Dissertação (Mestrado em Ciências e Técnicas Nucleares) – Departamento de Engenharia Nuclear, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte, (2015).

Marasco, A. L., and D. J. Young. "The oxidation of iron-chromium-manganese alloys at 900 C." Oxidation of Metals 36.1-2 (1991): 157-174.

Medeiros, L. F. (1975). Oxidation kinetics of zircaloy-4 in the temperature range correspondent to alpha phase.

Mesina, G. L. (2016). A history of RELAP computer codes. *Nuclear Science and Engineering*, 182(1), v-ix.

Mors, P. M. (2016). Dilatação térmica: uma abordagem matemática em física básica universitária. Revista brasileira de ensino de física. São Paulo. Vol. 38, n. 1 (jan./mar. 2016)

Neto, F. L., & Pardini, L. C. (2016). Compósitos estruturais: ciência e tecnologia. Editora Blucher.

Oliveira, L. C. A., Fabris, J. D. Pereira, M. C. "Óxidos de ferro e suas aplicações em processos catalíticos: uma revisão." Química Nova 36.1 (2013): 123-130.

Padilha, A. F. (1997). Materiais de engenharia. Hemus.

Pereira, L. A. T. Desenvolvimento de processos de reciclagem de cavacos de zircaloy via refusão em forno elétrico a arco e metalurgia do pó. 2014. Tese de Doutorado. Universidade de São Paulo.

Perrota, J. A. (1999). Curso de introdução à engenharia do núcleo de reatores. Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.

Pilla, L. (2006). "Físico-Química I, Termodinâmica química e equilíbrio químico", Segunda edição revisada e atualizada por José Schifino, série graduação, UFRGS Editora, Porto Alegre.

Reis, P. A. D. L., Costa, A. L., Pereira, C., Veloso, M. A. F., Soares, H. V., & Mesquita, A. Z. (2013). Analysis of an Extreme Loss of Coolant in the IPR-R1 TRIGA Reactor using a RELAP5 Model. Revista de Engenharia Térmica, 12(2), 46-50.

Silva, E. E. (2002). Caracterização física do carbono pirolítico utilizado na produção de próteses valvulares cardíacas mecânicas. Dissertação de Mestrado, submetida ao Instituto de Ciências Exatas da UFMG - Universidade Federal de Minas Gerais.

Soares, H. V., Aronne, I. D., Costa, A. L., Pereira, C., Veloso, M. A. F., (2014) Analysis of loss of flow events on Brazilian multipurpose reactor by RELAP5 code. International Journal of Nuclear Energy, Volume 2014, Article ID 186189, 12 pages.

Stempien, J. D., Carpenter, D. M., Kohse, G., & Kazimi, M. S. (2013). Characteristics of composite silicon carbide fuel cladding after irradiation under simulated PWR conditions. Nuclear technology, 183(1), 13-29.

Takahashi, Y. "On the origin of the Curie-Weiss law of the magnetic susceptibility in itinerant electron ferromagnetism." Journal of the Physical Society of Japan 55.10 (1986): 3553-3573.

Whitmarsh, C. L. Review of Zircaloy-2 and Zircaloy-4 properties relevant to NS Savannah reactor design. No. ORNL-3281. Oak Ridge National Lab. (ORNL), Oak Ridge, TN (United States), 1962.

World Nuclear Association. The Nuclear Fuel Report 2019. Acessado em 21/2/2020. Disponível em <<https://www.world-nuclear.org/our-association/publications/publications-for-sale/nuclear-fuel-report.aspx>>

Yamamoto, Y. et al. "Development and property evaluation of nuclear grade wrought FeCrAl fuel cladding for light water reactors." Journal of Nuclear Materials 467 (2016): 703-716.