

## UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS ESCOLA DE ENGENHARIA DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA NUCLEAR PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES

KEILA MACIEIRA

# NOVOS REVESTIMENTOS PARA REATORES A ÁGUA PRESSURIZADA – UM ESTUDO NEUTRÔNICO

Belo Horizonte 2020

## KEILA MACIEIRA

## NOVOS REVESTIMENTOS PARA REATORES A ÁGUA PRESSURIZADA – UM ESTUDO NEUTRÔNICO

Dissertação apresentada ao programa de Pósgraduação em Ciências e Técnicas Nucleares como requisito parcial ao título de Mestre em Ciências e Técnicas Nucleares.

Área de concentração: Engenharia Nuclear e Energia.

Orientadora: Claubia Pereira Bezerra Lima

Co-orientador: Rochkhudson Batista de Faria

M152n	Macieira, Keila. Novos revestimentos para reatores a água pressurizada – um estudo neutrônico [recurso eletrônico] / Keila Macieira 2020. 1 recurso online (80 f. : il., color.) : pdf.
	Orientadora: Claubia Pereira Bezerra Lima. Coorientador: Rochkhudson Batista de Faria.
Coroio	Dissertação (mestrado) - Universidade Federal de Minas
Gerais,	Escola de Engenharia.
	Bibliografia: f. 77-80.
	Exigências do sistema: Adobe Acrobat Reader.
	1. Engenharia nuclear - Teses. 2. Revestimentos protetores – Teses
	3. Reatores de água pressurizada – Teses. I. Lima, Claubia
	Pereira Bezerra. II. Faria, Rochkhudson Batista de. III. Universidade
	Federal de Minas Gerais. Escola de Engenharia. IV. Título.
	CDU:
621.039(043	)

Ficha catalográfica: Biblioteca Prof. Mário Werneck, Escola de Engenharia da UFMG



## UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS

PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM CIÊNCIAS E TÉCNICAS NUCLEARES



## FOLHA DE APROVAÇÃO

## NOVOS REVESTIMENTOS PARA REATORES A ÁGUA PRESSURIZADA - UM ESTUDO NEUTRÔNICO

## **KEILA MACIEIRA**

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 30 de janeiro de 2020, pela banca constituída pelos membros:

Profe. Claubia Pereira Bezerra Lima - Orientadora Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

Dr. Rochkhudson Batista de Faria - Coorientador Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

5.14. Profa. Antonella Lombardi Costa Departamento de Engenharia Nuclear - UFMG

Aveloso Marcel Dr. Marcelo Antônio Veloso CDTN/CNEN

Belo Horizonte, 30 de janeiro de 2020.

### AGRADECIMENTO

Agradeço primeiramente a Deus por ter me dado forças e motivação, não permitindo que eu desanimasse ao longo dessa jornada.

Agradeço à minha mãe que aguentou infinitas crises de choro à distância, me apoiando do início ao fim.

Agradeço aos meus amigos mais antigos e aos amigos que conquistei no Departamento de Engenharia Nuclear, professores e alunos, que me deram suporte para a conclusão deste projeto, acreditando que eu era capaz quando eu mesma duvidava disso.

Sou grata também à minha orientadora Claubia e ao meu co-orientador Rochkhudson por todos os ensinamentos durante esses anos, pelos conselhos, pelos merecidos puxões de orelha, pelas horas de conversa e pelo estímulo dado a uma engenheira eletricista que se arriscou na área nuclear.

Agradeço à CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear – pela bolsa de estudos, que foi primordial para o desenvolvimento do trabalho.

Agradeço também às agências de fomento CAPES – Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (Brasil), à FAPEMIG – Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de Minas Gerais (MG/BRASIL) e ao CNPq – Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (Brasil) pelo apoio financeiro à pesquisa do nosso país.

### RESUMO

Neste estudo foram realizadas análises do comportamento neutrônico de materiais desenvolvidos como revestimeto de reatores da Geração IV, mas que possuem tecnologia para serem aplicados em reatores PWR em operação. Foram escolhidas as ligas de zircônio avançadas, ZIRLO e OPT ZIRLO, o material cerâmico carbeto de silício reforçado com fibras de Hi-Nicalon tipo S (SiC HNS) e uma liga metálica de FeCrAl. Estes materiais foram analisados no estado estacionário e durante a evolução do combustível. Para validar a metodologia empregada, foi modelado e simulado um elemento combustível correspondente a um PWR 17x17 enriquecido a 4%. Com o objetivo de ampliar os estudos neutrônicos do DEN-UFMG, foi utilizado para as simulações o código SERPENT Monte Carlo. Após a validação, o revestimento convencional foi substituído pelos materiais propostos neste estudo, e avaliou-se os fatores de multiplicação infinito, os coeficientes de reatividade de temperatura do combustível e do moderador, a razão entre os fluxos térmico e total por material e as taxas de reação em cada um dos revestimentos ao longo da queima. Também foram avaliados os impactos dos elementos de controle de reatividade, por meio da utilização de varetas de veneno queimável com o uso dos revestimentos Zircaloy, ZIRLO, OPT ZIRLO, SiC HNS e liga de ferro-cromo-alumínio. Ao fim desta etapa, verificou-se que o revestimento de FeCrAl não apresentava resultados satisfatórios quando comparado aos demais materiais. Assim, o estudo foi estendido à liga de FeCrAl que sofreu variações na espessura e variações no enriquecimento do combustível. Todos os resultados obtidos foram comparados aos do Zircaloy e verificou-se que há a possibilidade de substituir o revestimento convencional pelo SiC HNS e pela liga metálica de ferro-cromo-alumínio com redução na espessura em conjunto com combustíveis mais enriquecidos.

Palavras-chave: revestimentos, neutrônica, SERPENT, PWR.

## ABSTRACT

The present work reports an analysis of neutronics behavior on cladding materials developed for Generation IV reactors with reliable application on commercial PWRs under operation. The advanced zirconium alloys, ZIRLO e OPT ZIRLO and the ceramic cladding silicon carbide (SiC) reinforced with Hi-Nicalon type S (SiC HNS) and FeCrAl alloy were chosen. A benchmark fuel element 17x17 with 4% fuel enrichment problem was used as reference case in order to validate the model analysis at steady-state and during burnup. In order to expand the neutronic studies of DEN-UFMG, the SERPENT Monte Carlo code was used for simulations. Of first order, the replacement has been made of the standard fuel cladding by different cladding materials comprised on this work. The infinite multiplication factor, fuel temperature coefficient of reactivity and moderator temperature coefficient of reactivity, thermal-to-total flux ratio and reaction rates neutronic parameters were evaluated during fuel depletion. The impacts of the reactivity control elements were also evaluated, through the use of burnable poison rods using the Zircaloy, ZIRLO, OPT ZIRLO, SiC HNS and iron-chromealuminum alloy claddings. At the end of this step, it was found that the FeCrAl cladding did not present satisfactory results when compared to other materials. For the next step, The ECB with FeCrAl alloy experienced changes in cladding thickness and fuel enrichment. All results compared with Zircaloy cladding shown that ones can replace the conventional cladding with at least two of the materials studied keeping the neutronic parameters advantages, the ceramic material SiC HNS and the iron-chrome-aluminum alloy with reduced thickness and increased fuel enrichment.

Key-words: claddings, neutronic, SERPENT, PWR.

## LISTA DE FIGURAS

Figura 1. Variação na taxa de corrosão normalizada (para 1% Sn, 1% Nb e 0,1% de Fe) para
água pura na temperatura de 633K e vapor em 700K (Comstock et al, 1996)11
Figura 2. Variação do fator de multiplicação infinito (kinf) para o FeCrAl em EOL em
comparação ao Zircaloy. Fonte: Terrani et al., 2014 (Adaptada)13
Figura 3. Estrutura do revestimento de SiC para aplicação em reatores nucleares. Fonte: Kim et
al., 2013 (Adaptada)
Figura 4. (a) célula do elemento combustível, (b) geometria tubo guia e (c) elemento
combustível16
Figura 5. Evolução de k <sub>inf</sub> usando os códigos SERPENT e SCALE 6.022
Figura 6. Comparação de kinf durante a evolução do combustível para os diferentes
revestimentos
Figura 7. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50
K27
Figura 8. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50
K27
Figura 9. Razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no combustível
Figura 10. Razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no revestimento
Figura 11. Taxa de reação total para os diferentes materiais de revestimento durante a queima.
Figura 12. Taxa de captura nos diferentes revestimentos durante a queima32
Figura 13. Taxa de espalhamento nos diferentes revestimentos durante a queima33
Figura 14. ECB com 8 varetas de veneno queimável35
Figura 15. ECB com 12 varetas de veneno queimável35
Figura 16. Fator de multiplicação infinito para o ECB com 8 varetas de veneno queimável e
comparação dos novos revestimentos com o Zircaloy
Figura 17. Fator de multiplicação infinito para o ECB com 12 varetas de veneno queimável e
comparação dos novos revestimentos com o Zircaloy
Figura 18. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50
K no ECB com 8 VVQ40
Figura 19. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50
K no ECB com 8 VVQ40

Figura 20. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50
K no ECB com 12 VVQ41
Figura 21. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50
K no ECB com 12 VVQ41
Figura 22. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50 K
no ECB com 8 VVQ42
Figura 23. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50 K
no ECB com 12 VVQ43
Figura 24. Razão entre fluxo térmico e fluxo total no combustível do ECB com 8 VVQ44
Figura 25. Razão entre fluxo térmico e fluxo total no revestimento do ECB com 8 VVQ45
Figura 26. Razão entre fluxo térmico e fluxo total no combustível do ECB com 12 VVQ45
Figura 27. Razão entre fluxo térmico e fluxo total no revestimento do ECB com 12 VVQ46
Figura 28. Taxa de reação total dos revestimentos do ECB com 8 VVQ47
Figura 29. Taxa de captura dos revestimentos do ECB com 8VVQ47
Figura 30. Taxa de espalhamento dos revestimentos do ECB com 8 VVQ48
Figura 31. Taxa de reação total dos revestimentos do ECB com 12 VVQ
Figura 32. Taxa de captura dos revestimentos do ECB com 12 VVQ49
Figura 33. Taxa de espalhamento dos revestimentos de ECB com 12 VVQ50
Figura 34. Ilustração das variações na dimensão radial da vareta combustível com revestimento
de FeCrAl (Fora de escala)53
Figura 35. Fator de multiplicação infinito durante a evolução do combustível para variação de
espessura do revestimento de FeCrAl do ECB55
Figura 36. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50
K
Figura 37. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50
K56
Figura 38. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50
K
Figura 39. Razão entre os fluxos térmico e total no combustível para o ECB revestido com
FeCrAl
Figura 40. Razão entre os fluxos térmico e total no revestimento para o ECB revestido com
FeCrAl
Figura 41. Taxa de reação total nos revestimentos de FeCrAl do ECB60
Figura 42. Taxa de captura nos revestimentos de FeCrAl do ECB61

Figura 43. Taxa de espalhamento nos revestimentos de FeCrAl do ECB62
Figura 44. Evolução de $k_{inf}$ ao longo da queima para variação do enriquecimento do combustível
do ECB
Figura 45. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50
K
Figura 46. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50K
na temperatura
Figura 47. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50
K
Figura 48. Razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no combustível do ECB para diferentes
enriquecimentos
Figura 49. Razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no revestimento do ECB para diferentes
enriquecimentos70
Figura 50. Concentração de Xenônio-135 durante a evolução do combustível para diferentes
enriquecimentos70
Figura 51. Concentração de Samário-149 durante a evolução do combustível para diferentes
enriquecimentos71
Figura 52. Taxa de reação total para o revestimento de FeCrA1 quando submetido a diferentes
enriquecimentos do combustível72
Figura 53. Taxa de captura no revestimento de FeCrAl quando submetido a diferentes
enriquecimentos de combustível72
Figura 54. Taxa de espalhamento no revestimento de FeCrAl quando submetido à variações no
enriquecimento do combustível73

## LISTA DE TABELAS

Tabela 1. Evolução da composição de ligas de zircônio (Duan et al., 2017)
Tabela 2. Parâmetros do elemento combustível modelado e simulado (OECD., 2006)17
Tabela 3. Composição dos materiais (OECD, 2006)17
Tabela 4. Dados de fator de multiplicação infinito $(k_{inf})$ para o elemento combustível simulado
(OECD, 2006; Faria et al., 2015)20
Tabela 5. Comparação dos resultados de $k_{inf}$ obtidos por meio dos códigos SCALE 6.0 e
SERPENT22
Tabela 6. Composição dos materiais candidatos a revestimento de combustível nuclear
(Macieira et al., 2018; Chen & Yuan., 2017)23
Tabela 7. Comparação da diferença percentual entre os valores k <sub>inf</sub> do padrão (Zircaloy) com
os valores k <sub>inf</sub> de ZIRLO, OPT ZIRLO, SiC HNS e FeCrAl25
Tabela 8. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um decréscimo de 50
K28
Tabela 9. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50 K.
Tabela 10. Composição das varetas de combustível com veneno queimável (átomo/barn.cm)
Tabela 11. Comparação da diferença percentual entre os valores $k_{inf}$ do padrão (Zircaloy) com
os valores k <sub>inf</sub> de ZIRLO, OPT ZIRLO, SiC HNS e FeCrAl para o ECB com 8VVQs37
Tabela 12. Comparação da diferença percentual entre os valores $k_{inf}$ do padrão (Zircaloy) com
os valores k <sub>inf</sub> de ZIRLO, OPT ZIRLO, SiC HNS e FeCrAl para o ECB com 12 VVQs37
Tabela 13. Dimensões da vareta combustível para o ECB revestido com FeCrAl.52
Tabela 14. Comparação da diferença percentual entre os valores $k_{inf}$ do ECB revestido com liga
de FeCrAl com alteração na espessura do revestimento
Tabela 15. Comparação da diferença percentual entre os valores $k_{inf}$ do ECB revestido com liga
de FeCrAl com redução na espessura do revestimento e variação do enriquecimento do
combustível64

## LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

ATF – Accident Tolerant Fuels

BOL – Begin of Life

- CAPES Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior
- CNEN Comissão Nacional de Energia Nuclear
- CNPq Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico

CSAS – Criticality Safety Analysis Sequence

DEN-UFMG – Departamento de Engenharia Nuclear da Universidade Federal de Minas Gerais

ECB - Elemento combustível benchmark

EOL – End of Life

- EUA Estados Unidos da América
- FAPEMIG Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de Minas Gerais

FeCrAl - ferro-cromo-alumínio

- kgU-quilograma-urânio
- LOCA Loss of Coolant Accident
- LWR Light Water Reactor
- MWd Megawatt-dia

OPT ZIRLO - ZIRLO Otimizado

PWR - Pressurized Water Reactor

SCALE - Standardized Computer Analyses for License Evaluation

SiC – Carbeto de silício

SiC<sub>f</sub> – Silicon Carbide fiber

SiC<sub>m</sub> – Silicon Carbide matrix

SiC HNS - Carbeto de silício reforçado com fibras de Hi-Nicalon

TRITON – *Transport Rigor Implemented with Time-dependent Operation for Neutronic depletion* 

VVQ - Varetas de Veneno Queimável

WNA – World Nuclear Association

## LISTA DE SÍMBOLOS

- α: partícula alfa
- β: partícula beta
- γ: raio gama

 $\alpha_{F:}$  coeficiente de reatividade de temperatura do combustível

 $\alpha_{M:}$  coeficiente de reatividade de temperatura do moderador

 $\sigma$ : desvio padrão do código SERPENT

kinf : fator de multiplicação infinito de nêutrons

- $\Delta k$ : variação percentual do fator de multiplicação infinito de nêutrons
- k1: fator de multiplicação de nêutrons referente ao Zircaloy
- k<sub>2</sub>: fator de multiplicação de nêutrons referente aos demais revestimentos

DP: desvio padrão

- DPR: desvio padrão relativo
- P: participantes
- T<sub>F</sub>: temperatura do combustível
- T<sub>M</sub>: temperatura do moderador

# SUMÁRIO

CAPÍTULO 1. INTRODUÇÃO1
1.1 JUSTIFICATIVA E OBJETIVO
1.2 ORGANIZAÇÃO DA DISSERTAÇÃO4
CAPÍTULO 2. REVESTIMENTOS
2.1 ZIRCALOY
2.2 ZIRLO
2.3 OPT ZIRLO
2.4 Ligas de FeCrAl11
2.5 CARBETO DE SILÍCIO (SIC)
CAPÍTULO 3. VALIDAÇÃO DO MODELO DO ECB16
3.1 Descrição do elemento combustível benchmark16
3.2 Código SERPENT17
3.3 MODELAGEM DO ECB
3.4 RESULTADOS DA VALIDAÇÃO DO ECB19
3.5 COMPARAÇÃO DA MODELAGEM DO ECB NOS CÓDIGOS SCALE 6.0 E SERPENT21
3.6 Resultados da comparação da modelagem do ECB com os códigos SCALE 6.0 e
SERPENT
CAPÍTULO 4. SUBSTITUIÇÃO DO ZIRCALOY PELOS CANDIDATOS A
REVESTIMENTO DE COMBUSTÍVEL NUCLEAR23
4.1 METODOLOGIA ADOTADA PARA A SUBSTITUIÇÃO DO REVESTIMENTO DE ZIRCALOY23
4.2 Resultado: Cálculo de criticalidade do ECB com os novos revestimentos no
ESTADO ESTACIONÁRIO
4.3 RESULTADO: SUBSTITUIÇÃO DO ZIRCALOY NO ECB DURANTE O PROCESSO DE QUEIMA25
CAPÍTULO 5. MODELAGEM DO ECB COM DIFERENTES REVESTIMENTOS E
PRESENÇA DE VENENO QUEIMÁVEL34
5.1 Análise do ECB com varetas de veneno queimável e substituição do revestimento
ZIRCALOY PELOS MATERIAIS PROPOSTOS
5.2 Resultado: Análise do ECB com varetas de veneno queimável no estado
ESTACIONÁRIO

5.3 Resultado: Análise do ECB com varetas de veneno queimável durante a
EVOLUÇÃO DO COMBUSTÍVEL
CAPÍTULO 6. ANÁLISE NEUTRÔNICA DO REVESTIMENTO DE FERRO-CROMO-
ALUMÍNIO
6.1 Descrição da metodologia adotada
6.2 Resultado: Análise do ECB com variação na espessura do revestimento de
FECRAL
6.3 RESULTADO: ANÁLISE DO ECB REVESTIDO COM LIGA DE FECRAL DURANTE A EVOLUÇÃO DO
COMBUSTÍVEL
6.4 Análise da variação da espessura da liga de FeCrAl em conjunto com o aumento
DO ENRIQUECIMENTO DO COMBUSTÍVEL
6.5 Resultado: Análise do ECB, no estado estacionário, com variação do
ENRIQUECIMENTO DO COMBUSTÍVEL64
6.6 Resultado: Análise do ECB, durante a evolução do combustível, com variação
DO ENRIQUECIMENTO DO COMBUSTÍVEL64
CAPÍTULO 7. CONCLUSÕES74
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

## CAPÍTULO 1. INTRODUÇÃO

Atualmente existem mais de 450 reatores nucleares comerciais fornecendo cerca de 15% da geração global de energia, conforme relatório atualizado em 2019, pela World Nuclear Association, (WNA, 2019). De forma geral, as usinas nucleares em operação no mundo têm, em média, mais de 20 anos. Embora a vida útil dessas usinas seja em torno de 40 anos, muitas delas, ao serem implementadas melhorias, poderão operar por mais tempo (Ferón, 2012).

Ademais, diversos países estão engajados no desenvolvimento da energia nuclear. Na Ásia houve um aumento de 10% da geração nuclear devido à expansão dos parques nucleares da China e do Japão. A Turquia começou a construção da primeira de quatro plantas nucleares planejadas. Na Rússia, os preparativos para a primeira usina nuclear flutuante continuam. Os dois reatores a bordo do Akademik Lomonosov atingiram a primeira criticalidade e o navio foi instalado em sua base permanente em Pevek ainda em 2019. Já os reatores nucleares situados nos EUA, 117 reatores em operação, vêm gerando, desde 2018, mais eletricidade que em qualquer um dos anos anteriores (WNA, 2019).

Esta positiva avaliação operacional e do cenário nuclear está intimamente ligada ao comportamento dos materiais escolhidos para atuar nos reatores nucleares. A escolha do revestimento para a obtenção de um sistema eficiente, seguro e economicamente viável ao selecionar determinados materiais para combustível, moderador e refrigerante é um dos questionamentos que impulsionaram a pesquisa de materiais que possam ser utilizados com confiabilidade, segurança e bom desempenho, como tem sido observado ao longo dos anos.

Entretanto, podem surgir situações de acidente para além das quais a usina foi projetada para suportar e que podem comprometer sua funcionalidade, como foi o caso em Fukushima. Em março de 2011, uma sequência de eventos naturais atingiu a costa do Japão. Um terremoto de magnitude 9,0 na escala Richter associado a um subsequente tsunami resultou em milhares de mortes, edifícios danificados e um custo estimado em centenas de milhares de dólares. Uma das consequências oriundas da passagem do tsunami foi o dano causado aos geradores a diesel da usina nuclear de Fukushima Daiichi. A perda dos sistemas de refrigeração levou a um aumento de temperatura e consequente oxidação do Zircaloy, além de uma violenta reação com a água, produzindo gás hidrogênio e causando explosões (Hales & Gamble, 2015).

Em reatores de água leve LWRs (*Light Water Reactors*), o revestimento do combustível desempenha um papel importante que é a retenção dos produtos de fissão gerados pelas pastilhas combustíveis ao longo da depleção do material fissil, impedindo que estes nuclídeos entrem no sistema primário, minimizando o potencial de dispersão de reatividade na contenção

do reator e para além dele. Esse material também possui a função de manter a estrutura prédeterminada do elemento combustível (Frost, 1982). O revestimento encontra-se em elevado e constante nível de estresse mecânico e térmico devido a variação de temperatura, expansão do combustível e liberação dos gases de fissão (Duderstadt & Hamilton, 1976).

Diante desse cenário, é necessário dar continuidade aos estudos sobre materiais avançados que possam ser utilizados como revestimento de combustível nuclear e que sejam capazes de suprir as fragilidades evidenciadas pelo Zircaloy. Para tal, esses materiais devem possuir boa resistência à oxidação, retardo apropriado à formação de bolhas e ruptura, resistência ao estresse térmico e mecânico, compatibilidade com o fluxo de nêutrons e baixa seção de choque de absorção de nêutrons térmicos (Ott et al., 2014).

Ainda hoje, a maior experiência com revestimentos de combustível nuclear é obtida com o Zircaloy-4. Entretanto, existem propostas e até mesmo implantação, em reatores *Pressurized Water Reactos* (PWR) da Geração III em operação, de ligas avançadas à base de zircônio, como o ZIRLO e o ZIRLO Otimizado (OPT ZIRLO) (Stempien et al., 2013). Apesar dos bons resultados demonstrados por estes materiais, da segurança oriunda da utilização de ligas à base de zircônio aperfeiçoadas e dos bons resultados obtidos nos EUA (WNA, 2018) é importante estender os estudos neutrônicos a outros revestimentos capazes de serem incorporados a reatores LWR, a maioria em operação no mundo.

Portanto, neste trabalho, pretende-se avaliar e comparar o comportamento neutrônico de outros revestimentos, desenvolvidos para aplicações em reatores nucleares de Geração IV, que possuam tecnologia capaz de ser aplicada em reatores nucleares LWR em operação. Dentro deste contexto foram selecionadas as ligas avançadas à base de zircônio: ZIRLO e OPT ZIRLO, o material cerâmico carbeto de silício reforçado com fibras de Hi-Nicalon tipo S (SiC HNS) e uma liga metálica de ferro-cromo-alumínio (FeCrAl).

O material ZIRLO, escolhido para ser analisado neste projeto, foi desenvolvido com o intuito de obter queimas mais extensas, suportando um aumento de temperatura do refrigerante e intervalos de recarga do combustível mais longos, diminuindo o volume de rejeitos radioativos. O ZIRLO ainda apresenta menor taxa de corrosão em altas temperaturas, menor sensibilidade ao ataque de lítia e maior resistência à fluência, quando comparado ao Zircaloy (Duan et al., 2017). A liga OPT ZIRLO foi escolhida por apresentar todas as vantagens de sua antecessora, além de uma menor taxa de corrosão – advinda da redução do teor de estanho em sua composição – quando comparada ao ZIRLO (Duan et al., 2017).

Estudos neutrônicos sobre o SiC HNS já desenvolvidos pelo Departamento de Engenharia Nuclear da Universidade Federal de Minas Gerais (DEN-UFMG) culminaram em resultados satisfatórios. Para que seja possível dar continuidade a estes estudos, o material cerâmico também foi selecionado como objeto de análise. O SiC HNS apresenta algumas vantagens quando comparado ao revestimento convencional, como boa tolerância a altas temperaturas, maior resistência à oxidação, elevada resistência à fragilização da estrutura devido à interação com hidrogênio e baixa afinidade com nêutrons térmicos (Hallstadius et al., 2012; Faria et al., 2015).

A liga metálica de FeCrAl é candidata a revestimento de combustível nuclear, pois permite um aumento na tolerância a acidentes. Esse material possui uma taxa de oxidação menor que o Zircaloy, mas deve-se atentar à sua seção de choque de absorção de nêutrons térmicos ser aproximadamente 10 vezes mais elevada que a do revestimento convencional (Gamble et al., 2017). Esta penalidade neutrônica requer a fabricação de um revestimento com espessura mais fina.

O Departamento de Engenharia Nuclear da Universidade Federal de Minas Geriais (DEN-UFMG) vem desenvolvendo, desde 2013, estudos neutrônicos sobre a substituição do revestimento convencional, Zircaloy, por materiais que permitam uma operação segura do reator em condições normais e um desempenho aprimorado em caso de acidente por meio de simulações realizadas no código SCALE 6.0 (*Standardized Computer Analyses for License Evaluation*) (Bowman, 2008). Para continuar ampliando os estudos sobre novos revestimentos de combustível nuclear, utilizou-se, para esta dissertação, o código SERPENT Monte Carlo. O SERPENT é um código tridimensional de transporte de partículas com energia contínua, sob desenvolvimento desde 2004 pelo VVT *Technical Research Center Finland* (Leppanen et al., 2015; Maiorino et al., 2017) e foi escolhido por sua capacidade de realizar cálculos de queima, além do interesse em submeter os materiais propostos às análises de um outro código.

#### 1.1 Justificativa e Objetivo

A relevância deste projeto deve-se à necessidade de encontrar soluções para as falhas apresentadas em Fukushima com o revestimento convencional de combustível nuclear e às consequentes pesquisas para desenvolvimento de materiais que sejam capazes de suprir as deficiências do Zircaloy.

Grande quantidade de materiais, sejam eles metálicos ou cerâmicos, vem sendo desenvolvidos para serem utilizados como revestimento de combustível nuclear de reatores da Geração IV ou em sistemas baseados em fusão. A tecnologia destes materiais poderia ser empregada nos diversos PWRs em operação ou em novas propostas de reatores LWR.

Tais estudos, na maioria das vezes, são desenvolvidos com foco na fabricação e suas respectivas técnicas e na capacidade de resistir à corrosão, ou seja, nas propriedades físicas, químicas, mecânicas e térmicas (Heinisch et al., 2002; Rashed, 2002; Carpenter, 2006; Hallstadius et al., 2012). Fato de grande importância, visto que o ambiente de operação dos revestimentos nucleares é, predominantemente, de estresse intenso. Apesar disso, ainda são necessários trabalhos que apresentem o comportamento neutrônico destes novos materiais quando submetidos à alta irradiação e queima. O DEN-UFMG vem desenvolvendo estudos neste sentido desde 2013, que demonstraram bons resultados na substituição do Zircaloy por revestimentos alternativos e que culminaram na publicação de diversos artigos (Faria et al, 2015; Faria, 2017; Macieira et al., 2018; Macieira et al., 2019, Magalhães et al., 2019). Desse modo, é importante dar continuidade às análises neutrônicas e termo-hidráulicas de possíveis candidatos a revestimento de combustível, sejam eles metálicos ou cerâmicos.

Assim, tem-se como principais objetivos deste trabalho de dissertação a avaliação da evolução do combustível nuclear com os diferentes tipos de revestimento, sempre comparando com o revestimento convencional e a apresentação de uma comparação das principais vantagens e desvantagens, a nível de comportamento neutrônico, das diversas ligas analisadas que podem ser utilizadas como revestimento em reatores PWR.

#### 1.2 Organização da dissertação

Esta dissertação foi dividida em sete capítulos e descreve as características dos revestimentos propostos para estudo, a fim de apresentar argumentos categóricos sobre a possibilidade de substituição do Zircaloy por uma destas ligas.

- No Capítulo 2 são apresentadas as características do revestimento convencional Zircaloy e dos materiais que podem ser capazes de substituí-lo, tais como as ligas à base de zircônio ZIRLO, o ZIRLO Otimizado (OPT ZIRLO), o material cerâmico carbeto de silício reforçado com fibras de Hi-Nicalon tipo S (SiC HNS) e uma liga metálica de FeCrAl.
- O Capítulo 3 apresenta a descrição do elemento combustível *benchmark* (ECB) utilizado neste trabalho, bem como a descrição do código SERPENT selecionado para realizar a modelagem proposta e, por fim, os resultados que levaram à validação do modelo.
- No Capítulo 4, o revestimento de combustível nuclear é substituído pelos materiais em estudo e o ECB é analisado, sob o ponto de vista neutrônico,

utilizando a mesma metodologia aplicada anteriormente. Nesta etapa são analisados os seguintes parâmetros neutrônicos: (1) fator de multiplicação infinito ( $k_{inf}$ ), (2) coeficiente de reatividade de temperatura do combustível ( $\alpha_F$ ), (3) coeficiente de reatividade de temperatura do moderador ( $\alpha_M$ ), (4) análise da razão entre o fluxo térmico e o fluxo total para o ECB utilizando os diferentes revestimentos propostos e (5) taxas de reação durante a queima.

- No Capítulo 5 é apresentada a modelagem do ECB para os diferentes revestimentos propostos em presença de veneno queimável. O modelo é analisado em estado estacionário e durante a evolução do combustível.
- No Capítulo 6 é proposta a análise do revestimento de FeCrAl, para espessuras mais finas e trabalhando com combustíveis de teores de enriquecimento mais elevados.
- No Capítulo 7 são apresentadas as conclusões deste estudo e são propostos trabalhos futuros envolvendo os revestimentos estudados para corroborar a análise neutrônica realizada.

## **CAPÍTULO 2. REVESTIMENTOS**

A fissão do urânio e outras reações com nêutrons que ocorrem no combustível geram produtos que emitem nêutrons e raios  $\gamma$  juntamente com partículas  $\alpha$  e  $\beta$ , que podem ser letais para os seres humanos. Portanto, o revestimento de combustível nuclear desempenha o importante papel de conter estes produtos e impedir que os mesmos sejam liberados para o refrigerante e moderador (Frost, 1982).

O material para revestimento somente é selecionado após outros parâmetros do reator já estarem definidos, como o combustível a ser utilizado e os materiais que serão empregados como moderador e refrigerante, ou seja, o revestimento deve atender a uma série de restrições de projeto (Azevedo, 2011). Essas restrições incluem uma baixa seção de choque de absorção, pois o revestimento precisa ser transparente para nêutrons, de forma a possibilitar uma melhor utilização destes. Deve apresentar boa resistência mecânica, resistência à fluência, à radiação e à corrosão, além de possuir estabilidade microestrutural, pois o material, dentro do núcleo, está sujeito a diversas formas de interação com a radiação que podem alterar as propriedades mecânicas do material por meio da redistribuição dos elementos da liga, da estabilidade e cinética de transformação das fases (Azevedo, 2011). É desejável que o material possua baixo coeficiente de expansão térmica para minimizar o estresse térmico no sistema revestimento/combustível e boa condutividade térmica para aumentar a transferência de calor entre o combustível e o refrigerante (Lake et al., 2002; Wikmark et al., 2009; Azevedo, 2011).

Mencionadas as características que um material deve exibir para se tornar apto a atuar como revestimento de combustível nuclear, o presente capítulo traz uma revisão sobre a seleção de materiais apontados como possíveis revestimentos. São fornecidas informações desde a decisão de substituir o aço inoxidável pelo Zircaloy, as fragilidades apresentadas por esta liga que levaram à pesquisas sobre novos revestimentos e o desenvolvimento de materiais para reatores da IV Geração que podem ser aplicados em PWRs da III Geração.

#### 2.1 Zircaloy

O zircônio (Zr) não possuia grande aplicabilidade na indústria até ser escolhido como revestimento de combustível para reatores no programa nuclear da marinha dos EUA, em 1952. Embora o primeiro reator naval utilizasse Zr puro, foi considerado inadequado para aplicações em reatores nucleares devido aos baixos resultados de resistência à corrosão. A liga à base de zircônio, denominada Zircaloy, foi adotada posteriormente como revestimento por apresentar baixa seção de choque de absorção de nêutrons e as pequenas adições de liga ao material puro

contribuíram positivamente na proteção do revestimento contra corrosão em altas temperaturas (Olander & Motta, 2011).

Na escolha dos elementos de liga é preciso considerar, além do processo metalúrgico, as características neutrônicas dos elementos. Por isto, são encontrados com maior frequência no Zircaloy, estanho (Sn), ferro (Fe), cromo (Cr) e oxigênio (O), que são elementos de baixa seção de choque de absorção de nêutrons. É importante ressaltar que podem ser encontradas ligas à base de zircônio com a presença de outros materiais (Faria, 2017).

O elemento estanho é adicionado nas ligas de zircônio por ser um bom inibidor de corrosão e também por afetar as propriedades mecânicas – tração da liga, aumentando a força de rendimento e mantendo boas propriedades de fluência dos revestimentos à base de zircônio (Lemaignan et al., 2012). A adição de cromo também contribui com melhorias na resistência à corrosão e à fluência (Jung et al., 2010; Zhang et al., 2016) e a presença de ferro atua favorecendo a condução eletrônica do revestimento, resultando em uma menor captação do hidrogênio (Duan et al., 2017).

O Zircaloy tem sido utilizado como revestimento há mais de 50 anos devido a uma combinação de propriedades desejáveis como alto ponto de fusão (2145 K em comparação aos 1743 K do aço inoxidável), alta resistência mecânica e à corrosão (oriundas das propriedades dos elementos de liga que compõem-no) e baixa seção de choque de absorção de nêutrons térmicos (Hallstadius et al., 2012). O limite da vida de revestimentos à base de Zr é, geralmente, determinado por suas propriedades de corrosão, oxidação devido ao contato direto e constante com o refrigerante quente no reator e, em particular, a associada absorção do hidrogênio (Hallstadius et al., 2012).

A absorção de hidrogênio durante a corrosão do Zircaloy em meio aquoso foi uma das observações de (Cox et al., 2005). Os íons de hidrogênio produzidos pela oxidação do zircônio com água podem permear o metal Zr. Além disso, foi observado que em situações de perda de refrigerante – LOCA (*Loss of Coolant Accident*) – é produzida uma maior quantidade de gás hidrogênio e que o Zircaloy é corroído mais rapidamente quando submetido a vapor d'água em elevadas temperaturas (Duan et al., 2017). A reação exotérmica descrita anteriormente pode ser visualizada por meio da seguinte equação:

$$Zr + 2H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2H_2 \tag{1}$$

Essa reação torna-se significativa em temperaturas acima de 1473 K, pois é um processo que gera calor. O hidrogênio precipita-se na forma de hidretos na superfície externa do revestimento levando à perda de ductibilidade, que associada ao processo de queima são os maiores responsáveis pela fragilização do Zircaloy (Pierron et al., 2003).

Em um cenário de LOCA como observado em Fukushima em 2011, a extensa geração de hidrogênio associada com a corrosão do zircônio em vapor d'água em altas temperaturas, acrescenta a sua própria margem de dificuldade em controlar a situação. Então fica clara a necessidade de desenvolver materiais resistentes a elevadas temperaturas.

Até o momento, o desenvolvimento de revestimentos avançados ainda é um problema persistente na área nuclear, pois a maior preocupação do setor é a segurança da operação do reator. Os materiais escolhidos precisam oferecer alto grau de confiabilidade durante o serviço. Por esse motivo, pesquisadores vêm desenvolvendo novas composições de ligas à base de zircônio ou explorando processos para melhoria das existentes. Entretanto, poucas ligas têm potencial para uso em reatores nucleares.

A Tabela 1 apresenta, em peso percentual, algumas das ligas de zircônio já desenvolvidas para aplicações em reatores nucleares. Observa-se que com a evolução dos Zircaloys, o níquel (Ni) deixou de estar presente na composição das ligas, pois foi comprovada a diminuição da captura de hidrogênio, além de apresentar uma melhoria na resistência à corrosão (Duan et al., 2017). Na linha temporal desta evolução, o Zircaloy-4 é a primeira e mais experiente das ligas sem teor de níquel a ser implementada em reatores e possui um excelente histórico de atuação, até que o acidente de Fukushima evidenciou algumas de suas fragilidades e impulsionou a pesquisa de novos revestimentos.

(%) em peso	Zircaloy-2	Zircaloy-4	ZIRLO	OPT ZIRLO		
Estanho (Sn)	1,5	1,5	1,02	0,60-0,80		
Ferro (Fe)	0,12	0,2	0,1	0,11		
Cromo (Cr)	0,1	0,1	-	-		
Nióbio (Nb)	-	-	1,01	1,02		
Oxigênio (O)	0,12	0,09-0,13	0,09-0,15	1,04		
Níquel (Ni)	0,05	-	-	-		

Tabela 1. Evolução da composição de ligas de zircônio (Duan et al., 2017)

Os materiais ZIRLO e OPT ZIRLO apresentados na Tabela 1 são ligas à base de zircônio aperfeiçoadas, desenvolvidas para reatores nucleares avançados, mas possuem tecnologia para implementação em PWRs em operação. Esses materiais serão discutidos nas próximas seções.

#### 2.2 ZIRLO

A liga de Zr-Sn-Fe-Nb, uma liga avançada à base de zircônio, foi desenvolvida pela Westinghouse em 1987, com o intuito de se obter maior queima, trabalhar com temperaturas de refrigerante mais elevadas e intervalos de recargas maiores e foi chamada de ZIRLO (Sabol et al., 1989). Sabe-se que a corrosão do revestimento devido ao contato direto com o refrigerante, em ambientes LWR, é um dos fatores limitantes para a obtenção de queimas mais longas do combustível (Yuek et al., 2005), razão pela qual esta propriedade foi alvo de intensos estudos na busca por melhorias.

O ZIRLO foi utilizado em mais de 50 reatores nos EUA e Europa como suporte na extensão da queima. Esse material foi desenvolvido para apresentar propriedades iguais ou melhoradas em relação ao revestimento convencional de PWRs, o Zircaloy-4, em todos os aspectos importantes da operação de um reator. Pode ser observado na Tabela 1 que há uma diminuição do teor de estanho, pois possibilita um aumento uniforme da resistência à corrosão. Contudo, mesmo que haja um decréscimo na concentração de Sn, sua adição ainda é necessária por fornecer algumas propriedades mecânicas, como resistência do material e resistência à fluência (Duan et al., 2017).

Por meio de testes de corrosão em autoclave e testes de extensão de queima em PWR, o ZIRLO apresentou menor taxa de corrosão à altas temperaturas, menor sensibilidade ao ataque de lítia <sup>1</sup>e maior resistência à fluência quando comparado ao Zircaloy-4 (Sabol et al., 1989). Posteriormente, com a vasta experiência operacional do ZIRLO, seus méritos foram ainda mais confirmados, pois a expansão do revestimento devido à radiação e a fluência foram 50% e 80%, respectivamente, menores que o revestimento padrão, além de apresentar melhor taxa de resistência à corrosão (Sabol et al., 1994). A liga em foco nesta seção não apresenta melhorias apenas sobre o revestimento convencional, as vantagens já citadas podem ser verificadas quando comparada a outras ligas de Zr-Nb desenvolvidas anteriormente (Sabol et al., 1994).

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Lítia é um óxido de lítio (LiO<sub>2</sub>). Em altas temperaturas, a lítia reage com água e vapor, aumentando a degradação dos revestimentos à base de zircônio.

Semelhante ao trabalho realizado para melhorar o desempenho do Zircaloy-4 em PWR por meio da redução do teor de estanho no material, esforços também foram realizados para melhorar o desempenho do ZIRLO. Verificou-se que há um aumento na resistência à corrosão do ZIRLO com o decréscimo da concentração de Sn. E, assim, surgiria uma nova liga, o ZIRLO Otimizado, designado como OPT ZIRLO.

## 2.3 OPT ZIRLO

O OPT ZIRLO foi desenvolvido a partir do decréscimo da concentração de estanho na liga ZIRLO e da variação de alguns processos de fabricação. Para determinar as melhorias realizadas, utilizou-se diferentes ligas nas quais a concentração de nióbio variava, em peso, entre 1,0 - 2,0%, o ferro poderia ser encontrado com teor entre 0,1 - 0,4% e o estanho estava sujeito a uma variação de 0,3 - 1,3% (Foster et al., 2008). Este estudo inicial levou à produção de uma liga de ZIRLO contendo 0,77%, em peso, de estanho que foi fabricada para revestimento de combustível usando o processamento STD ZIRLO (Sabol et al., 1989). Essa liga de ZIRLO aprimorada foi irradiada nos PWRs Byron e Vandellos e verificou-se que para queimas acima de 60 MWd/kgU, houve uma redução na corrosão das varetas em cerca de 50% (Foster et al., 2008). Foram resultados satisfatórios que impulsionaram mais pesquisas sobre a otimização do ZIRLO.

Com base em resultados de extensivos testes, a concentração de Sn foi reduzida ainda mais, para o valor de 0,67%, em peso, que se enquadrava dentro do intervalo proposto de 0,6 - 0,8% e não foi realizada nenhuma alteração no teor de Nb e Fe, pois não foram verificadas correlações significativas com as variações de tais elementos (Duan et al., 2017), como pode ser verificado na Figura 1.

Na Figura 1 (a), observa-se que um decréscimo de Sn leva a uma redução na taxa de corrosão, enquanto (b) e (c) não apontam mudanças significativas com as alterações nos teores de Nb e Fe, respectivamente.



Figura 1. Variação na taxa de corrosão normalizada (para 1% Sn, 1% Nb e 0,1% de Fe) para água pura na temperatura de 633K e vapor em 700K (Comstock et al, 1996).

Esta liga recebeu o nome de OPT ZIRLO. Entretanto, o teor reduzido de estanho afeta as propriedades mecânicas do material e o comportamento à fluência<sup>2</sup> dentro e fora do reator. O revestimento terá uma taxa de fluência mais alta que pode ser compensada no processamento durante a fabricação. Essa compensação é realizada durante o tratamento térmico do tubo, que resulta em uma microestrutura parcialmente recristalizada. A taxa de resistência à fluência do OPT ZIRLO torna-se, então, muito semelhante à do ZIRLO (Wikmark et al., 2009). O OPT ZIRLO já foi empregado em mais de 30 reatores e, em particular, um desses reatores, situado nos EUA, conseguiu estender sua queima em mais de 70 MWd/kgU. Esse fato é relevante, pois o limite americano de queima é 62 MWd/kgU (Pan et al., 2015).

Apesar do ZIRLO e OPT ZIRLO serem ligas avançadas, ainda possuem o zircônio como elemento-base de sua constituição. Por isso, estão sujeitos às fragilidades evidenciadas por este elemento. Então, é necessário dar seguimento aos estudos de materiais tolerantes a acidentes.

Revestimentos tolerantes a acidentes são definidos como materiais capazes de proporcionar um tempo de resposta significativamente maior em caso de acidente, possuem melhor cinética de reação com o vapor, resultando em menor velocidade de geração de gás hidrogênio, enquanto mantém propriedades termo-mecânicas aceitáveis (Gamble et al., 2017). Por este motivo, ligas de FeCrAl são candidatas a revestimento de combustível nuclear para aumentar a tolerância a acidentes e serão tratadas na próxima seção.

## 2.4 Ligas de FeCrAl

As ligas de ferro-cromo-alumínio (FeCrAl) são uma classe de ligas amplamente empregadas no setor industrial quando é requerida resistência à oxidação em elevadas

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> Fluência [nêutrons/cm<sup>2</sup>] é definida como a integral temporal da densidade do fluxo de nêutrons.

temperaturas. Entretanto, essas ligas ganharam notoriedade para aplicação no setor nuclear após uma série de eventos, descritos anteriomente, que culminaram no acidente de Fukushima, em 2011. Foram desenvolvidas diversas pesquisas na busca por materiais tolerantes a acidentes ATF (*Accident Tolerant Fuels*) e uma das abordagens propostas foi a substituição do Zircaloy por um revestimento alternativo de alto desempenho contra oxidação (Chen & Yuan., 2017).

Os atributos qualitativos dos materiais para se enquadrarem como revestimento tolerante a acidente incluem a oferta de margens de segurança maiores que as proporcionadas pelas ligas convencionais de zircônio, atraso no início da degradação do núcleo por meio da redução de gás hidrogênio e calor gerados pela rápida oxidação do Zircaloy e aumento de tempo de resposta após acidentes (Pint, 2017). Entre a enorme gama de candidatos, as ligas de FeCrAl mostraram-se potencialmente promissoras.

Estes materiais contendo ferro como principal elemento de suas composições possuem ainda, cromo com teor entre 0 - 20% e alumínio entre 0 - 10%. A adição de Cr e Al é essencial para melhorar a resistência à oxidação em elevadas temperaturas, formando escamas protetoras de alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) na superfície do revestimento. Esse óxido impede a entrada de hidrogênio e a formação de hidretos, que é predominante nos revestimentos de zircônio (Hales et al., 2015). A resistência à oxidação aumenta com o acréscimo de Cr e Al, que precisa ser feito de forma balanceada para permitir a proteção da superfície do revestimento e manter aceitáveis os níveis de endurecimento e fragilização por irradiação (Gamble et al., 2017). Estudos mostraram que as ligas com capacidade para aplicação nuclear possuem o teor de cromo variando de 13-20% e a concentração de alumínio entre 3-10% (Pint, 2017).

Apesar de apresentar vantagens como uma taxa de oxidação aproximadamente 1000 vezes menor que a do Zircaloy e melhor custo-benefício de fabricação (Terrani et al., 2015, Terrani & Yamamoto, 2016), existem dificuldades e desvantagens em utilizar ligas de ferro-cromoalumínio. O ponto de fusão desses materiais está contido no intervalo de 1798 – 1813 K (Gamble et al., 2017), valor inferior ao do revestimento padrão (2145 K) e sua seção de choque de absorção é 2,43 barns enquanto a do Zircaloy é 0,20 barns (Chen & Yuan, 2017). Para compensar estes valores, é necessário diminuir a espessura do revestimento de FeCrA1 e/ou aumentar o enriquecimento do combustível.

A Figura 2 mostra a variação do fator de multiplicação infinito ( $k_{inf}$ ) em EOL (fim da vida), para um PWR utilizando uma liga de FeCrAl, baseada na espessura do revestimento e no enriquecimento do combustível. Observa-se que o melhor desempenho ocorre para valores menores de espessura do revestimento sujeitas a enriquecimentos maiores.



Figura 2. Variação do fator de multiplicação infinito (kinf) para o FeCrAl em EOL em comparação ao Zircaloy. Fonte: Terrani et al., 2014 (Adaptada).

Como visto anteriormente, somente a redução da espessura não é suficiente para compensar a penalidade neutrônica de absorção de nêutrons térmicos da liga de FeCrAl e o enriquecimento além do limite atual de 5% parece ser necessário. Isto, entretanto, implicaria em um custo adicional de 15-35% no ciclo do combustível (Gamble et al, 2017).

Tendo em vista estas informações, dar-se-á seguimento à análise de outros materiais aptos a substituir o Zircaloy com igual ou melhor desempenho e que sane as fragilidades do revestimento padrão. Por isso, na próxima seção falar-se-á do material cerâmico carbeto de silício (SiC) que possui potencial de proteção contra vapor em temperaturas acima de 1273 K, fato não evidenciado pelas ligas de FeCrAl (Kim et al., 2017).

### 2.5 Carbeto de silício (SiC)

Materiais cerâmicos, como por exemplo o SiC, têm sido considerados como potenciais revestimentos de combustível nuclear devido à capacidade de trabalharem em altas temperaturas. Um material de revestimento avançado é importante na operação de reatores nucleares, pois suas melhorias reduzem as taxas de falhas do sistema (Ahn et al., 2018).

O carbeto de silício inicialmente foi desenvolvido para aplicações aeroespaciais por manter sua integridade em altas temperaturas. Além disso, quando submetido a testes de irradiação, apresentou excelentes resultados. Desde então, estudos são realizados para analisar a possibilidade de se utilizar o SiC como revestimento de combustível nuclear em reatores de fissão, pois considera-se que estes compósitos oferecem excelentes recursos de segurança passiva em cenários de acidentes graves (Koyang et al., 2017).

Quando comparado ao Zircaloy, o material cerâmico apresenta maior estabilidade química – o que permite maior resistência à corrosão e à fragilização devida ao hidrogênio (Lee et al., 2013). Possui elevado ponto de fusão (2903 K) quando comparado ao revestimento convencional e menores coeficientes de expansão térmica e taxa de ruptura – que o tornam menos suscetível a choques térmicos (Stempien et al., 2013). Além disso, possui baixa atividade que permite a disposição dos resíduos após o tempo de irradiação de forma mais facilitada, menor seção de choque de absorção de nêutrons térmicos – aproximadamente 25 % menor que as ligas de zircônio de mesma espessura – e degradação mais lenta em um cenário de acidente grave (Hallstadius et al., 2012).

Embora apresente diversos benefícios, o carbeto de silício é quebradiço quando submetido a choques mecânicos repentinos. Para superar este comportamento, é fabricado um SiC revestido – compósito de fibras cerâmicas incorporadas na matriz de SiC (SiC<sub>f</sub>/SiC<sub>m</sub>). É necessário que estas fibras possuam teor de oxigênio tão baixo quanto possível para manter boas características de corrosão e resistência em ambientes PWR (Hallstadius et al., 2012).

Foram desenvolvidas três gerações de fibras de carbeto de silício desde sua invenção, na década de 70. As duas primeiras gerações continham grande quantidade de oxigênio e/ou impurezas de carbono, que levam a uma densificação da fibra sob irradiação. Como resultado, as propriedades mecânicas dos compósitos reforçados com a primeira e a segunda geração de fibras são amplamente degradadas mesmo sob baixa fluência de nêutrons (Kim et al., 2017).

A terceira geração apresenta composições altamente cristalinas e com baixo ou nenhum teor de oxigênio. Dentre estas, encontramos a série de fibras de SiC Sylmaric, que tem ótimo desempenho, mas não é adequada para aplicações dentro do núcleo por possuir impurezas de boro. Segundo (Kim et al., 2013), o material mais indicado para atuar como revestimento de combustível nuclear em ambientes PWR é o carbeto de silício reforçado com fibras de Hi-Nicalon tipo S (SiC HNS) por apresentar pequena degradação de suas propriedades mecânicas sob irradiação em elevadas temperaturas.

Um dos tubos de SiC HNS para aplicação em LWRs é mostrado na Figura 3 e consiste em três camadas de revestimento. A camada mais interna é responsável pela contenção dos produtos de fissão e adota um SiC monolítico de alta densidade. A camada intermediária consiste em um compósito  $SiC_f/SiC_m$  que aumenta as propriedades mecânicas do material e previne falhas na estrutura. E a última é uma camada protetiva também de SiC monolítico que aumenta a resistência à corrosão do tubo (Kim et al., 2013).



Figura 3. Estrutura do revestimento de SiC para aplicação em reatores nucleares. Fonte: Kim et al., 2013 (Adaptada).

O material cerâmico carbeto de silício apresenta alta resistência à corrosão em razão da formação de dióxido de silício, SiO<sub>2</sub>, que atua como uma camada protetora. Em altas temperaturas e associada a vapor ou água altamente pressurizada, essa resistência à corrosão sofre um decréscimo, pois a ação protetiva do SiO<sub>2</sub> também sofre uma redução, ou seja, sua resistência à corrosão é altamente dependente do método de fabricação e das condições às quais o material é submetido. Mas ainda assim, a taxa de oxidação do SiC é consideravelmente menor que a do Zircaloy em altas temperaturas. E estudos termo-hidráulicos mostraram que este material cerâmico apresenta melhor condutividade térmica quando comparado ao revestimento convencional (Faria, 2017). Essa propriedade permite que o combustível do reator opere em uma temperatura 3,78% menor que ao adotar-se o Zircaloy.

Apesar de todas as vantagens citadas, há muitas questões técnicas a serem resolvidas como a fabricação em grande escala dos tubos, entendimento fundamental da tecnologia (Duan et al., 2017) e licenciamento do uso do SiC em revestimento de PWRs. As atuais abordagens de licenciamento são voltadas para revestimentos à base de zircônio com combustível UO<sub>2</sub>.

## CAPÍTULO 3. VALIDAÇÃO DO MODELO DO ECB

Este capítulo detalha a metodologia adotada para validação de elemento combustível *benchmark* (ECB) de um PWR descrito no caso 15 do *benchmark* (OECD, 2006) e a modelagem realizada neste trabalho. A análise do comportamento neutrônico dos novos revestimentos consistiu, primeiramente, em modelar e simular o ECB utilizando o código SERPENT e verificar se os resultados eram compatíveis com o *benchmark*. A validação se deu através da comparação do resultado do cálculo de criticalidade.

#### **3.1 Descrição do elemento combustível benchmark**

O elemento combustível simulado corresponde a um PWR disposto em um arranjo de 17x17 posições, com vinte e quatro tubos guias e um tubo guia central; 456 ppm de boro diluídos no refrigerante e varetas de combustível fresco, UO<sub>2</sub>, com <sup>235</sup>U enriquecido a 4% (OECD, 2006).

Na Figura 4 (a) é descrita a geometria da célula combustível, em (b) é mostrada a geometria do tubo guia e, por fim, em (c) tem-se o elemento combustível completo. As Tabelas 2 e 3 apresentam, respectivamente, alguns parâmetros do ECB e a composição utilizada.



Figura 4. (a) célula do elemento combustível, (b) geometria tubo guia e (c) elemento combustível.

Tabela 2. Farametros do elemento combustivel modelado e simulado (OECD., 2000)				
Descrição dos parâmetros	Valores			
Comprimento ativo da vareta combustível ou tubo guia	365,7 cm			
Raio do combustível	0,412660 cm			
Raio do revestimento do combustível (Zircaloy)	0,474364 cm			
Raio interno do tubo guia	0,572940 cm			
Raio externo do tubo guia	0,613010 cm			
Passo do reticulado barras (p)	1,265 cm			
Passo do reticulado do elemento combustível	21,505 cm			
Temperatura média de operação do combustível	873 K			
Temperatura média de operação do revestimento	673 K			
Temperatura média de operação do refrigerante	573 K			
Densidade de potência específica constante	38 W/gU			

Tabela 2. Parâmetros do elemento combustível modelado e simulado (OECD., 2006)

Tabela 3.	Composição	o dos materiais	(OECD.	2006)
			1	, _ ~ ~ ~ ,

UO <sub>2</sub> com <sup>235</sup> U	Revestimento do	Tubo Guia	Refrigerante	
enriquecido a 4%	combustível	(átomo/barn.cm)	(átomo/barn.cm)	
(átomo/barn.cm)	(átomo/barn.cm)		(água com 456 ppm	
			de boro)	
U-234 7,834 10 <sup>-6</sup>	Fe 1,383 10 <sup>-4</sup>	Fe 1,476 10 <sup>-4</sup>	H 4,860 10 <sup>-2</sup>	
U-235 9,097 10 <sup>-4</sup>	Cr 7,073 10 <sup>-5</sup>	Cr 7,549 10 <sup>-5</sup>	O 2,430 10 <sup>-2</sup>	
U-236 2,967 10 <sup>-6</sup>	O 2,874 10 <sup>-4</sup>	O 3,067 10 <sup>-4</sup>	$^{10}\text{B}$ 3,692 10 <sup>-6</sup>	
U-238 2,155 10 <sup>-2</sup>	Zr 3,956 10 <sup>-2</sup>	Zr 4,222 10 <sup>-2</sup>	<sup>11</sup> B 1,477 10 <sup>-5</sup>	
O -16 4,493 10 <sup>-2</sup>	-	-	-	

## 3.2 Código SERPENT

O elemento combustível foi modelado de acordo com os parâmetros fornecidos pela referência (OECD, 2006). Para a simulação utilizou-se o código SERPENT Monte Carlo.

O SERPENT Monte Carlo (Leppanen et al., 2015) é um código 3D de transporte de nêutrons que possui alguns recursos exclusivos como funções para modelagem de vareta, rotina de pré-processamento de alargamento Doppler e um algoritmo de transmutação para o inventário de nuclídeos. É capaz de lidar com geometria complexa, realizar cálculos de criticalidade e queima e faz uso de seções de choque de energia contínua baseadas na ENDF/B-VII.0 para diferentes nuclídeos disponível em seis temperaturas de 300 a 1800 K.

Para que seja possível trabalhar com seções de choque dos nuclídeos em temperaturas diferentes das disponibilizadas pelo pacote SERPENT, faz-se uso da rotina de préprocessamento de alargamento Doppler. O emprego dessa rotina interna resulta em uma descrição mais precisa da física de interações em aplicações sensíveis à temperatura, já que os dados da biblioteca de seção de choque estão disponíveis apenas em intervalos de 300 K. O recurso de queima é realizado com bibliotecas de dados colapsadas a um grupo de energia e é inteiramente baseado em rotinas de cálculo integradas sem acoplamento a nenhum solucionador externo. Os produtos de fissão e os nuclídeos gerados pela cadeia de decaimentos dos actinídeos são selecionados para cálculo sem esforço adicional do usuário. O histórico de irradiação pode ser definido em unidade de tempo ou queima. As taxas de reação obtidas são normalizadas para potência total, densidade de potência específica, fluxo ou fissão. Os valores de volume necessários para a normalização podem ser inseridos manualmente ou calculados automaticamente. As bibliotecas de decaimento radioativo contêm informações para aproximadamente quatro mil nuclídeos e os dados de rendimento de fissão dependente da energia de todos os principais actinídeos estão disponíveis nos dados da ENDF/B-VII.0.

#### 3.3 Modelagem do ECB

Para realizar a modelagem do elemento combustível no código SERPENT Monte Carlo empregou-se o conjunto de dados de seção de choque dos nuclídeos nas temperaturas de 300 K, 600 K e 900 K disponíveis no pacote de dados do SERPENT e baseado na biblioteca ENDF/B-VII.0 *Continuous Energy*. Entretanto, para que fosse possível trabalhar nas temperaturas de operação de 873 K, 673 K e 573 K para o combustível, revestimento e moderador, respectivamente, foi necessário um ajuste de temperatura, por meio da rotina de préprocessamento de alargamento Doppler.

Para o cálculo de criticalidade em estado estacionário e análise durante a evolução do combustível foram utilizadas 10000 partículas e 2000 gerações ativas. Para validar a modelagem do ECB proposta foram utilizadas as Equações (2), (3) e (4) que representam, respectivamente, a média, o desvio padrão (DP) do fator de multiplicação infinito de nêutrons de cada participante (k<sub>i</sub>) – onde P é o número de participantes – e o desvio padrão relativo (DPR), visto que não há dados experimentais desse *benchmark* para serem avaliados e que não é possível nomear um determinado código como o mais indicado para realizar as simulações.

$$M\acute{e}dia = \frac{1}{P} \sum_{i=1}^{i} k_i \tag{2}$$

$$DP = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{P} (k_i - M\acute{e}dia)^2}{P}} \quad (3)$$

$$DPR = \frac{DP}{M\acute{e}dia} \tag{4}$$

### 3.4 Resultados da validação do ECB

A Tabela 4 apresenta os valores de k<sub>inf</sub> do elemento combustível modelado por diversos países participantes da elaboração do *benchmark*, simulado conforme os parâmetros apresentados por (OECD., 2006) durante a criticalidade. Para uma apresentação atualizada dos resultados, além dos valores de fator de multiplicação infinito de nêutrons obtidos neste estudo, foram anexados os dados de trabalhos já realizados no DEN-UFMG (Faria et al., 2015).

Observou-se que para a modelagem no SERPENT, empregando dados de seção de choque de energia contínua baseados na ENDF/B-VII.0, houve um aumento na média dos valores de k<sub>inf</sub> e um decréscimo nos desvios padrão e relativo. O valor de k<sub>inf</sub> encontrado neste estudo, estava contido dentro do intervalo de dados obtidos por outros institutos, validando, dessa forma, o modelo do ECB proposto.

Países	Instituto/Departamento	Código	Biblioteca Neutrônica	$\mathbf{k}_{\mathrm{inf}}$	Desvio do código (σ)
França	CEA	CRISTAL 1.0	-	1,34025	-
Reino Unido	BNFL	MONK8B	-	1,34180	-
	SERCO	MONK8B	-	1,34110	-
Finlândia	VTT	MCNP4C	-	1,33966	-
Japão	JNES	MVP 2.0	-	1,33913	-
	JAERI JENDL 3.3	MVP	-	1,33989	-
	JAERI JENDL 3.2	MVP	-	1,34349	-
Alamanha	AREVA	KENO		1 24025	-
Alemanna	(Framatone ANP)	V.a	-	1,34023	
		HELIOS	-	1,33797	-
		SAS2h	-	1,33797	-
		TRITON			-
TILA	ODNI	- KENO	-	1,33797	
EUA	OKNL	V.a			
		TRITON -NEWT V.a	-	1,33797	-
Suécia	PSI	MCNPX - 2.4.0	-	1,34070	-
	DEN-UFMG	CSAS6 – KENO VI	ENDF/B- VI.8	1,33650	0,00068
			ENDF/B- VII.0	1,34202	0,00059
			44 grupos (V5-238) <sup>1</sup>	1,33123	0,00051
Brasil			238 grupos (V5-238) <sup>1</sup>	1,33100	0,00052
			238 grupos (V7-238) <sup>2</sup>	1,33584	0,00055
		SERPENT	ENDF/B- VII.0	1,34281	0,00009
	Média		Anterior	1,33860	
	Ivicula		Atual	1,33882	
	Desvio Padrão Médio		Anterior	 0,00335	
			Atual	0,003305	
			Anterior	 0,25%	
		Atual	0,246%		

 Tabela 4. Dados de fator de multiplicação infinito (kinf) para o elemento combustível simulado (OECD, 2006; Faria et al., 2015).

<sup>1</sup>Colapsada da ENDF/B-V. <sup>2</sup>Colapsada da ENDF/B-VII.0.
Para assegurar que o modelo proposto estava adequado, foi realizada uma comparação com a modelagem apresentada em (Faria et al., 2015), já validada com o *benchmark*, para avaliar a criticalidade durante o processo de queima. E a partir desta validação, o trabalho foi desenvolvido utilizando o código SERPENT.

#### 3.5 Comparação da modelagem do ECB nos códigos SCALE 6.0 e SERPENT

Para o cálculo de queima, (Faria et al., 2015) utilizou-se o módulo TRITON do código SCALE 6.0 empregando dados de seção de choque colapsados a 238 grupos de energia baseado na biblioteca ENDF/B-VII.0 e o presente trabalho fez uso do código SERPENT com dados de seção de choque dos nuclídeos baseado na biblioteca ENDF/B-VII.0 *Continuous Energy*. Para a modelagem do ECB adotou-se os parâmetros disponibilizados no *benchmark* (OECD, 2006).

O SCALE (Bowman, 2008) é um sistema de código validado composto por vários módulos e utilizados para diferentes objetivos como segurança de criticalidade, análise de sensibilidade e incertezas físicas dos reatores, simulação de blindagem e inventário de combustível irradiado. Entre os módulos do SCALE 6.0, existem dois módulos principais de controle: o CSAS (*Criticality Safety Analysis Sequence*) usado para cálculos de criticalidade em estado estacionário e o TRITON (*Transport Rigor Implemented with Time-dependent Operation for Neutronic depletion*) próprio para cálculos de transporte e depleção.

Para que fosse possível realizar uma comparação entre os dados obtidos durante a evolução do combustível, empregou-se 1000 partículas e 1100 gerações ativas, conforme metodologia adotada em (Faria et al., 2015).

# 3.6 Resultados da comparação da modelagem do ECB com os códigos SCALE 6.0 e SERPENT

A Tabela 5 juntamente com a Figura 5 apresentam os valores do fator de multiplicação infinito de nêutrons durante a queima do elemento combustível por meio dos códigos SERPENT e SCALE 6.0. Observou-se que, para diferentes códigos adotados e diferentes bibliotecas utilizadas, as curvas apresentaram o mesmo perfil gráfico, onde houve uma redução dos valores de k<sub>inf</sub> à medida em que o material físsil foi lentamente consumido. Os valores obtidos para k<sub>inf</sub> estão de acordo com a literatura, validando a modelagem proposta.

	Boro 456 ppm (Benchmark)			
Dias	Queima (MWd/kgU)	TRITON KENO-VI	SERPENT	
0,00	0	1,3356	1,3426	
39,47	1,5	1,2731	1,2778	
118,42	4,5	1,2412	1,2446	
197,38	7,5	1,2093	1,2117	
276,32	10,5	1,1784	1,1799	
355,26	13,5	1,1502	1,1509	
434,23	16,5	1,1248	1,1257	
513,17	19,5	1,1004	1,0983	
592,12	22,5	1,0755	1,0729	
671,08	25,5	1,0537	1,0478	
750,03	28,5	1,0303	1,0251	

Tabela 5. Comparação dos resultados de kinf obtidos por meio dos códigos SCALE 6.0 e SERPENT.



Figura 5. Evolução de kinf usando os códigos SERPENT e SCALE 6.0.

A partir dessa validação, o trabalho foi desenvolvido por meio do código SERPENT. O próximo passo executado foi substituir o revestimento padrão do ECB, Zircaloy, pelos materiais apontados neste estudo como possíveis revestimentos de combustível nuclear.

## CAPÍTULO 4. SUBSTITUIÇÃO DO ZIRCALOY PELOS CANDIDATOS A REVESTIMENTO DE COMBUSTÍVEL NUCLEAR

Neste capítulo são descritas as análises neutrônicas realizadas em estado estacionário e também durante o processo de queima ao substituir o revestimento de Zircaloy do elemento combustível *benchmark* pelos revestimentos alternativos: ZIRLO, OPT ZIRLO, material cerâmico SiC HNS e liga de FeCrAl.

### 4.1 Metodologia adotada para a substituição do revestimento de Zircaloy

O elemento combustível foi simulado substituindo o revestimento convencional (Zircaloy) pelos materiais com as composições apresentadas conforme a Tabela 6. Os demais parâmetros do ECB foram mantidos constantes de acordo com a Tabela 2. É importante ressaltar que ao adotar o carbeto de silício reforçado com fibras de Hi-Nicalon tipo S, o combustível passou a operar em uma temperatura mais baixa, 840 K, visto que este material apresenta melhor condutividade térmica que o revestimento convencional (Faria, 2017).

Tabela 6. Composição dos materiais candidatos a revestimento de combustível nuclear (Macieira et al., 2018: Chen & Vuan 2017)

2010, Chen & Tuan., 2017)							
	ZIRLO	C	OPT ZIRLO	SiC HNS		FeCrAl	
(áto	omo/barn.cm)	(áto	omo/barn.cm)	(áto	omo/barn.cm)	(áto	mo/barn.com)
Zr	4,22873 10-2	Zr	4,20494 10 <sup>-2</sup>	Si	4,5806 10 <sup>-2</sup>	Fe	5,74247 10 <sup>-2</sup>
Sn	3,38982 10 <sup>-4</sup>	Sn	1,99399 10 <sup>-4</sup>	С	4,8030 10 <sup>-2</sup>	Cr	1,64464 10 <sup>-2</sup>
Fe	7,06459 10 <sup>-5</sup>	Fe	7,77104 10 <sup>-5</sup>	0	2,3343 10 <sup>-4</sup>	Al	7,92334 10 <sup>-3</sup>
Nb	4,28893 10 <sup>-4</sup>	Nb	4,33140 10 <sup>-4</sup>		-		-
0	2,21976 10-4	0	$2,56506 \ 10^{-3}$		-		-

Para a realização do cálculo de criticalidade em estado estacionário, utilizando os materiais propostos na Tabela 6 como revestimento, foi adotada a mesma metodologia apresentada para a validação do ECB, por meio do código SERPENT.

O cálculo da variação percentual de  $k_{inf}$ , no estado estacionário, para cada um dos novos revestimentos quando comparado ao Zircaloy, se deu por meio da Equação (5), onde  $\Delta k$  indica a variação percentual de  $k_{inf}$ ,  $k_1$  representa os valores de  $k_{inf}$  do Zircaloy e  $k_2$  representa o fator de multiplicação infinito dos demais revestimentos simulados.

$$\Delta k = \frac{(k_2 - k_1)}{k_1} \times 100$$
 (5)

O ECB também foi simulado com diversos revestimentos durante a evolução do combustível. O processo de queima foi estimado em 30 MWd/kgU, com uma densidade de potência específica e constante igual a 38 W/gU, totalizando 789,5 dias (OECD, 2006).

Nessa etapa, comparou-se os resultados do fator de multiplicação infinito de nêutrons (k<sub>inf</sub>) obtidos por meio de simulações no código SERPENT dos materiais propostos em comparação ao Zircaloy do ECB.

Ademais, foram analisados os coeficientes de reatividade de temperatura do combustível e do moderador,  $\alpha_F$  e  $\alpha_M$ , respectivamente. O coeficiente de reatividade de temperatura do combustível é definido como a derivada da reatividade,  $\rho$ , em relação à temperatura do combustível,  $T_F$ , e é obtido da Equação (6) (Duderstadt & Hamilton, 1976).

$$\alpha_F = \frac{d\rho}{dT_F} \tag{6}$$

Para realizar esse cálculo, a temperatura do revestimento e do moderador foram mantidas fixas em 673 K e 573 K, respectivamente, de acordo com os parâmetros do ECB (OECD, 2006). A temperatura média de operação do combustível esteve sujeita a uma variação de 50 K.

O coeficiente de reatividade de temperatura do moderador,  $\alpha_M$ , é definido como a derivada da reatividade,  $\rho$ , em relação à temperatura do moderador,  $T_M$ , e é obtido da Equação (7) (Duderstadt & Hamilton, 1976). A temperatura média de operação do moderador sofreu variação de 50 K e os demais parâmetros foram mantidos fixos.

$$\alpha_M = \frac{d\rho}{dT_M} \tag{7}$$

Conjuntamente, foram realizadas comparações da razão entre os fluxos térmico e total e as taxas de reação total, de captura e espalhamento totais no ECB ao utilizar como revestimentos os materiais ZIRLO, OPT ZIRLO, liga de FeCrAl e o material cerâmico SiC HNS em substituição ao convencional Zircaloy..

# 4.2 Resultado: Cálculo de criticalidade do ECB com os novos revestimentos no estado estacionário.

A Tabela 7 exibe os valores de  $k_{inf}$  e a diferença percentual desses dados, em estado estacionário, quando se utilizou o revestimento padrão do ECB – Zircaloy – e ao substituí-lo pelos materiais propostos neste estudo. O desvio padrão ( $\sigma$ ) do código SERPENT para cada uma das situações modeladas também está identificado.

Observou-se que o modelo simulado apresentou o k<sub>inf</sub> mais elevado ao empregar o SiC HNS como revestimento. Para este caso, registrou-se uma diferença positiva de 0,482% que implica em uma maior economia de nêutrons térmicos e o que possibilitaria a extensão da queima do sistema. Tomando a liga metálica de FeCrAl como revestimento, foi obtida a maior diferença percentual negativa entre os valores de k<sub>inf</sub>. Tal resultado encontra respaldo nas propriedades neutrônicas do FeCrAl – elevada seção de choque microscópica de absorção de nêutrons quando comparado ao Zircaloy. E, por fim, as ligas à base de zircônio, ZIRLO e OPT ZIRLO apresentaram valores próximos, porém inferiores ao obtido pelo revestimento convencional, implicando em um ligeiro decréscimo no aproveitamento de nêutrons.

Tabela 7. Comparação da diferença percentual entre os valores k<sub>inf</sub> do padrão (Zircaloy) com os valores k<sub>inf</sub> de ZIRLO, OPT ZIRLO, SiC HNS e FeCrAl.

Revestimento utilizado	$\mathbf{k}_{inf}$	Desvio do código (o)	$\Delta k \%$
Zircaloy	1,34281	0,00009	-
ZIRLO	1,33990	0,00009	-0,217
OPT ZIRLO	1,34031	0,000091	-0,186
SiC HNS	1,34928	0,000088	0,482
FeCrAl	1,22897	0,000097	-8,478

#### 4.3 Resultado: Substituição do Zircaloy no ECB durante o processo de queima

A Figura 6 apresenta uma comparação dos valores de k<sub>inf</sub> durante o processo de queima, ao utilizar, como revestimento de combustível, os materiais Zircaloy (padrão), as ligas de zircônio aperfeiçoadas ZIRLO e OPT ZIRLO, o SiC HNS e a liga de FeCrAl. Foi possível perceber que para os diferentes revestimentos, as curvas apresentaram perfis gráficos semelhantes. Em BOL (início da vida), o elemento continha apenas combustível fresco. À medida em que a queima evoluiu, o combustível foi transmutado e ocorreram mudanças em sua composição isotópica devido à seção de choque de absorção de neutrôns térmicos do revestimento e também devido ao aparecimento dos produtos de fissão e actinídeos. Quando os produtos de fissão com alta seção de choque de absorção decaíram ou foram transmutados durante a reação em cadeia, o k<sub>inf</sub> decresceu mais rapidamente.

A Figura 6 ainda evidenciou que o fator de multiplicação infinito foi maior, durante todo o período avaliado, ao adotar o SiC HNS. As ligas ZIRLO e ZIRLO Otimizado exibiram comportamentos similares, mas mantiveram resultados inferiores quando comparadas ao revestimento padrão. A liga de FeCrAl apresentou os menores valores de k<sub>inf</sub> ao adotar a mesma espessura dos demais materiais, resultado justificado pela sua seção de choque de absorção na faixa térmica – para a mesma espessura dos demais materiais – ser aproximadamente 10 vezes

maior que a do Zircaloy. Com exceção do sistema que fez uso da liga de FeCrAl, em EOL, o conjunto é supercrítico; tal fato sugere que a queima pode ser estendida.



Figura 6. Comparação de kinf durante a evolução do combustível para os diferentes revestimentos.

A Figura 7 e Figura 8 mostram o coeficiente de reatividade de temperatura do combustível com variação de 50 K na temperatura média de operação e substituição do revestimento padrão pelos candidatos em estudo neste trabalho. O  $\alpha_F$  determina a resposta inicial do reator à variação de temperatura, pois a potência é gerada no combustível. Então, essa região é a primeira a refletir as consequências de uma mudança de temperatura. Nas Figuras 7 e 8, todos os materiais apresentaram  $\alpha_F$  negativo, o que é desejável para assegurar a estabilidade inerente do reator.



Figura 7. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50 K.



Figura 8. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50 K.

As Tabelas 8 e 9 apresentam o coeficiente de reatividade de temperatura do moderador durante a evolução do combustível, submetendo o moderador à uma variação de 50 K e substituindo o Zircaloy do ECB pelos outros revestimentos. O  $\alpha_M$  determina os efeitos causados ao reator devido a variação da temperatura do refrigerante que entra no sistema. Esse parâmetro determina o comportamento final do reator em resposta a variação de temperatura no núcleo. Para que esteja assegurada a estabilidade do reator em condições normais de operação e em condições de acidente é desejável que o coeficiente de reatividade de temperatura do moderador seja negativo.

Pode-se observar que, para um acréscimo ou decréscimo de 50 K na temperatura média do moderador, os valores de  $\alpha_M$  foram sempre negativos para os diferentes revestimentos. Notou-se uma exceção quando o ECB foi revestido com a liga metálica de FeCrAl. Em alguns momentos durante a queima, o elemento combustível com revestimento de ferro-cromo-alumínio apresentou valores positivos para  $\alpha_M$ .

Queima	Zircaloy	ZIRLO	OPT ZIRLO	SiC HNS	FeCrAl
(MWd/kgU)					
0	-0,73169	-0,87995	-0,76824	-0,55993	-0,21197
0,1	-0,85377	-0,33349	-0,85737	-0,51659	-0,21128
0,2	-0,76229	-0,61041	-0,89738	-0,60178	-0,56584
0,3	-0,56208	-0,96129	-0,60070	-0,8885	-0,25554
0,4	-0,71997	-0,68730	-0,71125	-0,59426	-0,41300
0,5	-0,55370	-0,50787	-0,43523	-0,84639	-0,41389
0,6	-1,01355	-0,38787	-0,58169	-0,37057	-0,28624
0,8	-0,94507	-0,32865	-0,73022	-0,26401	0,00000
1	-0,75386	-0,92853	-0,80612	-0,45759	-0,07201
1,5	-0,74775	-0,89883	-0,55398	-0,88634	0,11602
2	-0,84031	-0,81921	-0,55847	-0,53847	-0,67169
2,5	-0,99635	-0,70073	-1,00079	-0,97481	0,014712
3	-1,01763	-0,30285	-1,05977	-0,87129	-0,23714
3,5	-1,00115	-1,32414	-0,99290	-1,02921	-0,82172
4	-1,22709	-1,25863	-1,3353	-1,07613	-0,58730
4,5	-1,72778	-1,36037	-1,56752	-1,00909	-0,74423
5	-1,49640	-1,41225	-1,60763	-1,40488	-0,30621
7,5	-1,55121	-2,13277	-1,76321	-1,61692	-1,19687
10	-2,55773	-2,08369	-2,59792	-2,74470	-0,73158
12,5	-2,75553	-2,63564	-2,66509	-2,80284	-0,81318
15	-2,53086	-2,85433	-2,99366	-2,91928	-0,41349
17,5	-2,68182	-2,93793	-2,27435	-2,60799	-1,23209
20	-2,92157	-2,73556	-3,05413	-1,95155	-0,73603
22,5	-2,58486	-2,65164	-2,65035	-2,47537	-0,92010
25	-2,46954	-2,90006	-2,66360	-2,75078	-0,94089
27,5	-2,56547	-2,80531	-2,63466	-2,63374	0,09494
30	-2,46905	-2,58047	-2,50202	-2,61915	-1,24019

Tabela 8. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um decréscimo de 50 K.

Queima (MWd/kgU)	Zircaloy	ZIRLO	OPT ZIRLO	SiC HNS	FeCrAl
0	-0,73169	-0,87995	-0,76824	-0,55993	-0,21197
0,1	-0,85377	-0,33349	-0,85737	-0,51659	-0,21128
0,2	-0,76229	-0,61041	-0,89738	-0,60178	-0,56584
0,3	-0,56208	-0,96129	-0,60070	-0,88850	-0,25554
0,4	-0,71997	-0,68730	-0,71125	-0,59426	-0,41300
0,5	-0,55370	-0,50787	-0,43523	-0,84639	-0,41389
0,6	-1,01355	-0,38787	-0,58169	-0,37057	-0,28624
0,8	-0,94507	-0,32865	-0,73022	-0,26401	0,00000
1	-0,75386	-0,92853	-0,80612	-0,45759	-0,07201
1,5	-0,74775	-0,89883	-0,55398	-0,88634	0,11602
2	-0,84031	-0,81921	-0,55847	-0,53847	-0,67169
2,5	-0,99635	-0,70073	-1,00079	-0,97481	0,014712
3	-1,01763	-0,30285	-1,05977	-0,87129	-0,23714
3,5	-1,00115	-1,32414	-0,99290	-1,02921	-0,82172
4	-1,22709	-1,25863	-1,33530	-1,07613	-0,58730
4,5	-1,72778	-1,36037	-1,56752	-1,00909	-0,74423
5	-1,49640	-1,41225	-1,60763	-1,40488	-0,30621
7,5	-1,55121	-2,13277	-1,76321	-1,61692	-1,19687
10	-2,55773	-2,08369	-2,59792	-2,74470	-0,73158
12,5	-2,75553	-2,63564	-2,66509	-2,80284	-0,81318
15	-2,53086	-2,85433	-2,99366	-2,91928	-0,41349
17,5	-2,68182	-2,93793	-2,27435	-2,60799	-1,23209
20	-2,92157	-2,73556	-3,05413	-1,95155	-0,73603
22,5	-2,58486	-2,65164	-2,65035	-2,47537	-0,92010
25	-2,46954	-2,90006	-2,66360	-2,75078	-0,94089
27,5	-2,56547	-2,80531	-2,63466	-2,63374	0,094943
30	-2,46905	-2,58047	-2,50202	-2,61915	-1,24019

Tabela 9. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50 K.

Para dar seguimento às análises do comportamento neutrônico dos materiais candidatos a revestimento de combustível nuclear foi realizado o estudo do fluxo de nêutrons no ECB. A Figura 9 apresenta a razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no combustível. A Figura 10 apresenta a razão entre os fluxos térmico e total nos revestimentos. Observou-se que, em ambas situações, houve um endurecimento do fluxo. Ao adotar como revestimento o material cerâmico SiC HNS, foi obtido, em comparação aos demais materiais, maior fluxo térmico em relação ao fluxo total, o que indica uma melhor utilização dos nêutrons térmicos. E ao utilizar a liga metálica de FeCrAl, registrou-se um fluxo mais endurecido que os demais. Tal fato implica em uma menor disponibilidade de nêutrons térmicos no sistema. E por fim, as ligas à base de zircônio, ZIRLO e ZIRLO Otimizado, apresentaram comportamentos semelhantes e fluxo térmico ligeiramente maior que o do revestimento convencional, ao longo da queima.



Figura 9. Razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no combustível



Figura 10. Razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no revestimento.

As Figuras de 11 a 13 apresentam, respectivamente, a taxa de reação total, captura total e espalhamento total dos novos revestimentos durante a queima – sempre comparando com o revestimento convencional (Zircaloy). A taxa de reação é proporcional ao produto do fluxo de nêutrons pela seção de choque macroscópica do material para uma determinada interação, ou seja, está diretamente ligada às propriedades neutrônicas do material.

As interações com nêutrons são divididas em dois grandes grupos: espalhamento e captura; que serão aqui analisados. Para que um material seja considerado um bom revestimento de combustível nuclear, ele deve apresentar-se transparente para nêutrons. Observou-se que a liga metálica de FeCrAl exibiu uma taxa de espalhamento que é cerca de duas vezes maior que os valores apresentados pelos demais materiais e que sua captura foi, aproximadamente, dezessete vezes maior que a do SiC HNS – material que apresentou os menores valores de taxa de captura ao longo da queima. Por fim, as ligas de zircônio avançadas, ZIRLO e OPT ZIRLO, demonstraram comportamentos semelhantes, mas ao serem comparadas ao Zircaloy, apresentaram maiores taxas de captura total e espalhamento total.



Figura 11. Taxa de reação total para os diferentes materiais de revestimento durante a queima.



Figura 12. Taxa de captura nos diferentes revestimentos durante a queima.



Figura 13. Taxa de espalhamento nos diferentes revestimentos durante a queima.

Até a presente etapa, os resultados alcançados com o ECB mostraram-se satisfatórios. As simulações do elemento combustível foram realizadas em presença de boro diluído no refrigerante como elemento de controle de reatividade. Na sequência, o modelo validado foi simulado com os novos revestimentos, em comparação ao Zircaloy (padrão), na presença de veneno queimável. Para isso, algumas varetas de combustível UO<sub>2</sub> foram substituídas por varetas de dióxido de urânio com veneno queimável, conforme a metodologia proposta no capítulo seguinte.

## CAPÍTULO 5. MODELAGEM DO ECB COM DIFERENTES REVESTIMENTOS E PRESENÇA DE VENENO QUEIMÁVEL

Veneno queimável é um mecanismo de controle para compensar o excesso de reatividade inicial dos primeiros estágios de queima do combustível (Duderstadt & Hamilton, 1976). Para tal, são empregados materiais caracterizados por elevada seção de choque de absorção de nêutrons. Eles possuem inúmeras vantagens, como melhor utilização do combustível sem diminuir o controle de segurança, reduzem a utilização de controle mecânico e, se distribuídos de forma adequada, contribuem para uma distribuição mais uniforme da potência. Os produtos oriundos da absorção de nêutrons por parte desses materiais possuem baixa seção de choque de absorção.

À medida em que a queima evolui, a reatividade negativa destes absorvedores decresce. Os venenos queimáveis devem ter sua reatividade negativa reduzida na mesma taxa em que a reatividade positiva em excesso no combustível se esgota.

Em PWRs, o uso de venenos é justificado para diminuir a concentração inicial de ácido bórico e também para diminuir a potência relativa dos elementos de combustível fresco. Existem diferentes maneiras para implementar o uso de absorvedores no núcleo de um reator. Uma das mais comumente empregadas é a adição de veneno em varetas de combustível adequadamente posicionada.

O presente capítulo aborda o comportamento do ECB, no estado estacionário e durante a evolução do combustível, quando submetido à mecanismos de controle de reatividade (venenos queimáveis) e substituição do revestimento convencional.

## 5.1 Análise do ECB com varetas de veneno queimável e substituição do revestimento Zircaloy pelos materiais propostos

O elemento combustível com a presença de varetas de  $UO_2$  com veneno queimável foi analisado em estado estacionário e durante a evolução do combustível. A composição empregada nas varetas de combustível com veneno queimável (VVQ) é  $UO_2 + Gd_2O_3$ , sendo o urânio (U) natural e 7% de gadolínio (Gd), conforme descrita no FSAR de Angra II (ELETROBRÁS, 2013) e detalhada na Tabela 10. A fim verificar a influência do veneno queimável no sistema foram estudadas duas configurações para o ECB, com 8 VVQs e 12 VVQs, como mostrado nas Figura 14 e Figura 15, respectivamente, conforme (Faria, 2017).

O-16	4,55562 10 <sup>-2</sup>
Gd-152	4,71208 10 <sup>-6</sup>
Gd-154	5,13628 10-5
Gd-155	3,48701 10 <sup>-4</sup>
Gd-156	4,82292 10 <sup>-4</sup>
Gd-157	3,68728 10 <sup>-4</sup>
Gd-158	5,85253 10-4
Gd-160	5,15041 10 <sup>-4</sup>
U-235	1,51286 10 <sup>-4</sup>
U-238	2,08597 10-2

Tabela 10. Composição das varetas de combustível com veneno queimável (átomo/barn.cm)



Figura 14. ECB com 8 varetas de veneno queimável.



Figura 15. ECB com 12 varetas de veneno queimável.

A modelagem foi realizada utilizando os parâmetros fornecidos pela (OECD, 2006), descritos na Tabela 3. Foram substituídas algumas varetas de combustível por varetas de UO<sub>2</sub> + Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Para o cálculo de criticalidade, em estado estacionário, as simulações foram realizadas por meio do código SERPENT empregando 10000 partículas e 2000 gerações ativas. Analisouse a variação percentual do k<sub>inf</sub> do ECB ao adotar os materiais propostos como revestimento em comparação ao Zircaloy. Estas avaliações foram realizadas em presença de veneno queimável, nas configurações de 8 VVQ e 12 VVQ.

Para a análise do comportamento neutrônico do ECB com os revestimentos propostos e convencional, durante a evolução do combustível, empregou-se o mesmo código e quantidade de partículas descritos anteriormente. Foram analisados os seguintes parâmetros:

- a) Fator de multiplicação infinito (k<sub>inf</sub>) para o ECB com as configurações de 8 VVQ
   e 12 VVQ, respectivamente;
- b) Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível (α<sub>F</sub>) para uma variação de 50 K na temperatura média de operação ao utilizar diferentes materiais como revestimento. Os valores foram obtidos por meio da Equação (6);
- c) Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador (α<sub>M</sub>) para um acréscimo de 50 K na temperatura média de operação do moderador. Os valores foram obtidos por meio da Equação (7);
- d) Razão entre os fluxos térmico e total no combustível e no revestimento;
- e) Taxas de reação total, captura total e espalhamento total dos revestimentos propostos em comparação ao convencional;

### 5.2 Resultado: Análise do ECB com varetas de veneno queimável no estado estacionário

As Tabela 11 e Tabela 12 apresentam os valores de  $k_{inf}$  e a diferença percentual desses dados, em estado estacionário. O revestimento padrão do ECB foi substituído pelos materiais propostos, neste estudo, como possíveis revestimentos e o elemento combustível apresentavase com 8 e 12 varetas de veneno queimável, respectivamente.

Para ambas configurações, o modelo simulado apresentou maior valor de k<sub>inf</sub> ao adotar o SiC HNS. A positiva diferença percentual, quando comparado ao Zircaloy, chegou a aproximadamente 0,5%. Tomando a liga de FeCrAl como revestimento, observou-se o menor valor de k<sub>inf</sub>. Como esse material apresenta alta taxa de absorção de nêutrons térmicos; e ao ser utilizado na presença de veneno queimável e sem realizar nenhuma correção na liga para otimizar a sua performance, o ECB apresentou resultados abaixo aos dos demais materiais. As ligas de zircônio aperfeiçoadas, ZIRLO e OPT ZIRLO, apresentaram valores próximos para o fator de multiplicação infinito. Este comportamento é devido às similaridades de suas propriedades físicas e químicas e mostra que tais materiais não interferem na ação dos elementos de controle de reatividade empregados. Ainda assim, os resultados de k<sub>inf</sub> obtidos por estas ligas foram menores que o alcançado pelo Zircaloy.

Tabela 11. Comparação da diferença percentual entre os valores kinf do padrão (Zircaloy) e	com os valores
kinf de ZIRLO, OPT ZIRLO, SiC HNS e FeCrAl para o ECB com 8VVQs.	

Revestimento utilizado	k <sub>inf</sub>	Desvio do código (o)	$\Delta k \%$
Zircaloy	1,23708	0,00011	-
ZIRLO	1,23410	0,00012	-0,241
OPT ZIRLO	1,23416	0,00011	-0,236
SiC HNS	1,24279	0,00011	0,462
FeCrAl	1,13955	0,00012	-7,884

Tabela 12. Comparação da diferença percentual entre os valores kinf do padrão (Zircaloy) com os valoreskinf de ZIRLO, OPT ZIRLO, SiC HNS e FeCrAl para o ECB com 12 VVQs

Revestimento utilizado	k <sub>inf</sub>	Desvio do código (o)	$\Delta k \%$	
Zircaloy	1,18626	0,00013	-	
ZIRLO	1,18363	0,00012	-0,222	
OPT ZIRLO	1,18441	0,00012	-0,156	
SiC HNS	1,19219	0,00012	0,499	
FeCrAl	1,09707	0,00013	-7,519	

## 5.3 Resultado: Análise do ECB com varetas de veneno queimável durante a evolução do combustível

Na sequência, o elemento combustível foi simulado durante a queima. Nas Figura 16 e Figura 17 são mostradas a evolução do combustível para o ECB com 8 VVQ e 12 VVQ, respectivamente, substituindo o revestimento padrão pelos materiais propostos neste estudo. Foram consideradas as temperaturas padrões médias do combustível. A ordem de grandeza do desvio padrão ( $\sigma$ ) do código para todos os cálculos realizados é 10<sup>-4</sup>.

Na Figura 16, observou-se que, com a presença de 8 VVQs, o valor inicial de k<sub>inf</sub> foi menor que os resultados apresentados pela modelagem sem veneno queimável. Esse comportamento advém do fato de que o veneno possui uma atuação efetiva já no início do ciclo, controlando a reatividade do sistema. Os valores de k<sub>inf</sub>, ao utilizar como revestimento o SiC HNS, foram sempre maiores ao longo da evolução do combustível, quando comparados aos resultados obtidos com o Zircaloy. A liga de FeCrAl apresentou a performance menos satisfatória ao longo da queima. A alta seção de choque de absorção de nêutrons da faixa térmica da liga de FeCrAl associada à presença de varetas de veneno queimável fizeram com que o ECB apresentasse valores inferiores de fator de multiplicação infinito. À medida em que a queima ocorreu, o veneno queimável foi consumido, não havendo quantidade residual significativa do veneno no final do ciclo. O elemento combustível com revestimento de FeCrAl,

com ou sem varetas de veneno queimável, tornou-se subcrítico, em aproximadamente, 22MWd/kgU de queima. Os materiais ZIRLO e OPT ZIRLO apresentaram valores de k<sub>inf</sub> muito semelhantes ao longo da evolução do combustível, mas ainda exibiram um aproveitamento de nêutrons ligeiramente menor que o do ECB revestido com Zircaloy. É importante ressaltar que nenhum dos revestimentos propostos apresentou mudança de comportamento em presença de veneno queimável, demostrando que tais materiais não interferem na ação deste elemento de controle de reatividade.



Figura 16. Fator de multiplicação infinito para o ECB com 8 varetas de veneno queimável e comparação dos novos revestimentos com o Zircaloy

Na Figura 17, ao adotar o ECB com 12 VVQ, o valor inicial de k<sub>inf</sub> foi ainda menor que o observado na Figura 16. Houve uma maior compensação da reatividade inicial do combustível fresco devido à presença de mais varetas com veneno queimável. Verificou-se o mesmo perfil gráfico nas curvas com diferentes revestimentos, o que implica que estes materiais não interferem no desempenho do veneno. O SiC HNS ainda apresentou os valores mais elevados de k<sub>inf</sub>, aproximadamente 0,5% maior que o Zircaloy ao longo da queima. A liga de FeCrAl apresentou os menores resultados; o sistema ficou subcrítico nas proximidades de 22 MWd/kgU. E, novamente, ZIRLO e OPT ZIRLO exibiram k<sub>inf</sub> próximo ao do Zircaloy, porém apresentaram valores cerca de 0,26% menores e ambos tornaram os sistemas subcríticos ao final da queima.



Figura 17. Fator de multiplicação infinito para o ECB com 12 varetas de veneno queimável e comparação dos novos revestimentos com o Zircaloy

Após a análise do fator de multiplicação infinito do ECB, realizou-se uma variação de 50 K na temperatura de operação do combustível revestido com Zircaloy, ZIRLO, OPT ZIRLO, SiC HNS e também liga de FeCrAl para que fosse possível estudar o comportamento do coeficiente de reatividade de temperatura quando é adicionado veneno queimável ao elemento combustível.

As Figuras 18 a 21 descrevem o comportamento do coeficiente de reatividade de temperatura do combustível,  $\alpha_F$ , com um decréscimo e posterior acréscimo de 50 K na temperatura de média padrão do ECB com 8 VVQ e 12 VVQ, respectivamente. Observou-se que em todas as Figuras,  $\alpha_F$  apresentou valores negativos. Este fato é fundamental, pois mostra a confiabilidade na possível utilização dos revestimentos de combustível nuclear propostos, além de assegurar a estabilidade do reator em caso de excesso de reatividade. Quando o coeficiente de reatividade de temperatura do combustível é negativo, há um aumento da absorção de nêutrons térmicos, devido à ampliação da faixa de ressonância. Isso não permite que a potência do reator aumente de forma descontrolada.



Figura 18. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50 K no ECB com 8 VVQ.



Figura 19. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50 K no ECB com 8 VVQ.



Figura 20. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50 K no ECB com 12 VVQ.



Figura 21. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50 K no ECB com 12 VVQ.

Como o interesse é verificar se é possível substituir o Zircaloy por outro material que possua igual ou melhor desempenho, é preciso analisar também o coeficiente de reatividade de temperatura do moderador. Para isso, a temperatura do moderador sofreu um acréscimo de 50 K e foram mantidos constantes os demais parâmetros. A Figura 22 apresenta os valores de  $\alpha_M$  para o elemento combustível com 8 varetas de veneno queimável. Notou-se que durante o aumento de temperatura, somente o ECB revestido com liga de FeCrAl apresentou valores positivos para o coeficiente de reatividade de temperatura do moderador. Os resultados encontrados com o uso dos demais revestimentos foram satisfatórios, pois à medida em que a temperatura do moderador aumenta, ele se torna menos denso e modera menos nêutrons. Então é desejável ter  $\alpha_M$  negativo para assegurar a estabilidade do reator em condições normais de operação e em caso de acidente.



Figura 22. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50 K no ECB com 8 VVQ.

A Figura 23 apresenta os resultados do coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para o ECB com 12 VVQ ao longo da queima. Para um acréscimo de 50 K na temperatura do moderador nesta configuração do elemento combustível, todos os revestimentos estudados apresentaram valores positivos de coeficiente de reatividade de temperatura do moderador no início do ciclo, em aproximadamente 7,5 MWd/kgU. Após esse período, somente o ECB revestido com FeCrAl voltou a apresentar valores positivos para o α<sub>M</sub>.



Figura 23. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50 K no ECB com 12 VVQ.

Em algumas análises, os revestimentos apresentaram resultados pouco satisfatórios. Entretanto, não se pode descartar a possibilidade de utilizá-los em substituição ao Zircaloy. Por isso, foi dado seguimento aos estudos do comportamento neutrônico dos revestimentos de combustível nuclear propostos.

O próximo parâmetro analisado foi a razão entre o fluxo térmico e fluxo total no combustível e no revestimento. Esta razão determina se há um bom aproveitamento de nêutrons térmicos durante a evolução do combustível.

A Figura 24 apresenta a razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no combustível e a Figura 25 apresenta a razão entre os fluxos térmico e total nos revestimentos, ambas no ECB com 8 varetas de veneno queimável. Já as Figuras 26 e 27 apresentam, respectivamente, razão entre os fluxos térmico e total no combustível e no revestimento do ECB com 12 varetas de veneno queimável.

Observou-se um endurecimento da razão entre os fluxos em todas as situações. Isto quer dizer que, à medida em que a queima evoluiu, o fluxo de nêutrons térmicos decresceu e o fluxo de nêutrons rápidos sofreu um aumento. O valor inicial da razão entre os fluxos térmico e total, tanto para o combustível quanto revestimento, foi menor quando comparado aos resultados obtidos com a modelagem do ECB sem veneno queimável. E ao adotar uma configuração com

a presença de mais absorvedores, o valor inicial desta razão sofreu um decréscimo ainda maior. Isso aconteceu porque o veneno queimável tem a função de absorver nêutrons – consequentemente diminuindo o fluxo – para controlar a reatividade inicial, preservando melhor o combustível ao longo da queima. Todas as Figuras apresentaram o mesmo perfil gráfico e foi possível observar a existência de um pico da razão entre fluxos térmico e total nas proximidades da queima em 12,5 MWd/kgU. Este comportamento correspondeu à cinética de queima do veneno durante a evolução do combustível.

Quando foi utilizado como revestimento o material cerâmico SiC HNS, foi obtido, em comparação aos demais materiais, maior fluxo térmico em relação ao fluxo total, o que indica maior disponibilidade de nêutrons térmicos no sistema. E ao adotar a liga metálica de FeCrAl, foi exibido um fluxo mais endurecido que os demais. Ao associar varetas de veneno queimável à liga de FeCrAl, que possui maior seção de choque de absorção de nêutrons, resultado foi um menor aproveitamento de nêutrons térmicos. E novamente, as ligas à base de zircônio, ZIRLO e OPT ZIRLO apresentaram comportamentos semelhantes e fluxo térmico ligeiramente maior que o do Zircaloy, a longo da queima.



Figura 24. Razão entre fluxo térmico e fluxo total no combustível do ECB com 8 VVQ.



Figura 25. Razão entre fluxo térmico e fluxo total no revestimento do ECB com 8 VVQ.



Figura 26. Razão entre fluxo térmico e fluxo total no combustível do ECB com 12 VVQ.



Figura 27. Razão entre fluxo térmico e fluxo total no revestimento do ECB com 12 VVQ.

Para justificar o comportamento visualizado na análise do fluxo térmico do ECB, foram estudadas as taxas de reação total, captura e espalhamento totais dos novos revestimentos, sempre comparando com os resultados obtidos pelo Zircaloy. As Figuras de 28 a 30 apresentam, respectivamente, a taxa de reação total, captura e espalhamento dos novos revestimentos durante a queima para o elemento combustível com a presença de 8 varetas de veneno queimável.

Observou-se em todas as Figuras que a liga metálica de FeCrAl foi o material que mais interagiu com nêutrons, seja por captura ou espalhamento. O material cerâmico SiC HNS, quando comparado ao revestimento convencional, exibiu a menor taxa de captura de nêutrons, mas aresentou taxa de espalhamento maior que a do revestimento padrão. Entretanto, ao ser comparado com os demais materiais propostos, o SiC HNS demonstrou um melhor desempenho, visto que um bom revestimento de combustível nuclear precisa ser transparente para nêutrons. E, por fim, as ligas de zircônio avançadas, ZIRLO e OPT ZIRLO, apresentaram comportamentos similares, mas ainda assim apresentaram maiores taxas de captura e espalhamento quando comparadas ao Zircaloy



Figura 28. Taxa de reação total dos revestimentos do ECB com 8 VVQ.



Figura 29. Taxa de captura dos revestimentos do ECB com 8VVQ.



Figura 30. Taxa de espalhamento dos revestimentos do ECB com 8 VVQ.

As Figuras de 31 a 33 apresentam, respectivamente, a taxa de reação total, captura e espalhamento dos novos revestimentos durante a queima para o elemento combustível com a presença de 12 varetas de veneno queimável.

Semelhante à análise realizada anteriormente, notou-se que a utilização do SiC HNS demonstrou desempenho satisfatório, com uma taxa de captura menor que a de todos os materiais analisados, enquanto a taxa de espalhamento obteve valores bem próximos ao obtidos com as ligas avançadas de zircônio. A liga de FeCrAl foi o material que mais interagiu com nêutrons, apresentando as maiores taxas de captura e espalhamento. E os materiais ZIRLO e OPT ZIRLO exibiram maiores taxas de captura e espalhamento ao serem comparados ao Zircaloy.



Figura 31. Taxa de reação total dos revestimentos do ECB com 12 VVQ.



Figura 32. Taxa de captura dos revestimentos do ECB com 12 VVQ.



Figura 33. Taxa de espalhamento dos revestimentos de ECB com 12 VVQ.

Foram alcançados bons resultados com o modelo do ECB nas análises realizadas acima. Foi observado o bom comportamento do material cerâmico SiC HNS quando utilizado como revestimento de combustível nuclear, mesmo em presença de elementos de controle de reatividade. Esse material é um bom candidato à substituição do revestimento convencional. Já as ligas aperfeiçoadas à base de zircônio, ZIRLO e OPT ZIRLO, apresentaram desempenhos similares entre si e próximos ao do Zircaloy. Porém quando quantificados, seus resultados foram ligeiramente inferiores ao da liga referência. E ao utilizar como revestimento a liga de FeCrAl obteve-se o comportamento menos satisfatório. O ECB acabou por atingir alguns valores positivos de coeficiente de reatividade de temperatura do moderador, além de tornar-se subcrítico antes do fim da queima de 30 MWd/kgU. Sabe-se que a liga de FeCrAl possui elevada seção de choque de absorção de nêutrons térmicos quando comparada ao revestimento convencional. E, ao trabalhar nas mesmas condições dos demais revestimentos, com mesma espessura e sem variação no enriquecimento do combustível, foi evidenciada sua penalidade neutrônica.

Entretanto, ainda não pode-se descartar seu uso como potencial revestimento de combustível nuclear, pois as ligas de ferro-cromo-alumínio possibilitam um aumento da tolerância à acidentes devido a sua aprimorada resistência à corrosão. Por este motivo, o

próximo capítulo apresenta um estudo neutrônico da liga de FeCrAl empregada neste trabalho de dissertação. Foram realizadas alterações na espessura do material, bem como variações no enriquecimento do combustível, a fim de verificar se há uma melhora significativa em seu desempenho, que possibilite a sua utilização como revestimento com o combustível dióxido de urânio.

## CAPÍTULO 6. ANÁLISE NEUTRÔNICA DO REVESTIMENTO DE FERRO-CROMO-ALUMÍNIO

Diversos estudos (Pint, 2017; Gamble et al., 2017, Chen & Yuan, 2017 e Terrani et al., 2015) apontam a liga de FeCrAl com potencial para revestimento de combustível nuclear tolerante a acidentes devido a sua elevada resistência à oxidação quando comparado ao Zircaloy. Contudo, esse material possui alta seção de choque de absorção de nêutrons térmicos (aproximadamente dez vezes maior que a apresentada pelo revestimento convencional).

Estes estudos sugerem ainda que, para compensar a penalidade neutrônica desta liga, é preciso fabricar o revestimento com espessura mais fina e/ou elevar o enriquecimento do combustível. Portanto, na intenção de verificar a possibilidade de substituir o Zircaloy pela liga de FeCrAl foram realizadas alterações na espessura do revestimento bem como no enriquecimento do combustível.

#### 6.1 Descrição da metodologia adotada

O elemento combustível foi simulado substituindo o revestimento convencional pela liga metálica de FeCrAl descrita anteriormente na Tabela 6. A espessura do material de revestimento foi reduzida para compensar a elevada seção de choque macroscópica de absorção na faixa térmica da liga de FeCrAl. A dimensão radial das varetas de combustível foi variada. A redução foi de aproximadamente 33% conforme (Gamble et al., 2017). Os demais parâmetros do ECB foram mantidos constantes de acordo com (OECD, 2006).

A redução da espessura foi obtida por meio de dois processos. No processo entitulado como "Espessura 1", preservou-se o valor do diâmetro externo da vareta combustível e houve um acréscimo na dimensão do diâmetro interno conforme metodologia adotada em (Gamble et al., 2017). Já no segundo processo nomeado como "Espessura 2", o diâmetro interno foi mantido constante conforme parâmetros apresentados em (OECD, 2006) e o diâmetro externo sofreu um decréscimo em sua dimensão. A Tabela 13 juntamente com a Figura 34 descrevem as dimensões radiais da vareta combustível referência, denominada "Espessura 0", bem como as novas dimensões obtidas.

	Diâmetro interno	Diâmetro externo		
	(cm)	(cm)		
Espessura 0	0,825320	0,948728		
Espessura 1	0,863606	0,948728		
Espessura 2	0,825320	0,908004		

Tabela 13. Dimensões da vareta combustível para o ECB revestido com FeCrAl.



Figura 34. Ilustração das variações na dimensão radial da vareta combustível com revestimento de FeCrAl (Fora de escala).

Para o cálculo de criticalidade em estado estacionário, utilizou-se o código SERPENT empregando 10000 partículas e 2000 gerações ativas. Nessa etapa foi analisada a variação percentual de k<sub>inf</sub> ao realizar uma redução na espessura da liga de FeCrAl, por meio de dois processos diferentes.

Para a análise do ECB durante a evolução do combustível, foram empregados o mesmo código e a mesma quantidade de partículas descritos anteriormente. E analisaram-se os seguintes parâmetros:

- a) Fator de multiplicação infinito (k<sub>inf</sub>) para o ECB com variação na espessura do revestimento;
- b) Coeficiente de reativade de temperatura do combustível (α<sub>F</sub>) para uma variação de 50 K na temperatura de operação do combustível. Os valores foram por calculados meio da Equação (6);
- c) Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador (α<sub>M</sub>) para um acréscimo de 50 K na temperatura de operação do moderador. Os valores foram obtidos por meio da Equação (7);
- d) Razão entre os fluxos térmico e total no combustível e no revestimento;
- e) Taxas de reação total, captura total e espalhamento total do revestimento de FeCrAl com espessura variada em comparação ao mesmo revestimento sem alteração em sua espessura.

## 6.2 Resultado: Análise do ECB com variação na espessura do revestimento de FeCrAl.

A Tabela 14 apresenta os valores de  $k_{inf}$  e a diferença percentual desses resultados, em estado estacionário. O ECB foi revestido com uma liga de FeCrAl e sua espessura sofreu uma redução de 33%, por meio de dois processos distintos, para tentar compensar a elevada seção de choque de absorção do material.

Para ambas configurações, como esperado, o modelo simulado apresentou maiores valores de k<sub>inf</sub> ao reduzir a espessura do revestimento, quando comparado ao ECB sem nenhuma variação. Mas ainda pôde-se observar que o processo entitulado como "Espessura 2" apresentou o maior valor de fator de multiplicação infinito, pois para alcançar a espessura proposta reduziu-se somente o diâmetro externo da vareta, sem alterar a dimensão da pastilha combustível. Esse processo apresentou uma melhoria de 3,479% do valor de k<sub>inf</sub>. A Espessura 1 também apresentou uma vantagem de 2,666%, em comparação ao ECB revestido com FeCrAl sem modificação na espessura. Entretanto, ao aumentar o diâmetro interno da vareta combustível, o raio da pastilha combustível também sofreu um aumento. A razão entre o volume de moderador e o volume de combustível foi alterada, tornando-se menor. Além disso, como não houve variação da massa de elemento fissil, sua densidade decresceu.

 Tabela 14. Comparação da diferença percentual entre os valores k<sub>inf</sub> do ECB revestido com liga de FeCrAl

 com alteração na espessura do revestimento.

	k <sub>inf</sub>	Desvio do código (o)	$\Delta k \%$
Espessura 0	1,22860	0,000096	-
Espessura 1	1,26136	0,000094	2,666
Espessura 2	1,27135	0,000093	3,479

# 6.3 Resultado: Análise do ECB revestido com liga de FeCrAl durante a evolução do combustível

Para dar seguimento aos estudos do impacto da redução da espessura da liga de ferrocromo-alumínio, o elemento combustível foi simulado durante a queima. A Figura 35 apresenta os valores de fator de multiplicação infinito de nêutrons durante a evolução do combustível. A ordem de grandeza do desvio padrão ( $\sigma$ ) do código para todos os cálculos realizados é 10<sup>-4</sup>.

É possível perceber que todas as curvas apresentaram perfis gráficos semelhantes. A Figura 35 ainda evidenciou que ao empregar o revestimento de FeCrAl com espessura mais fina, o ECB apresentou melhor aproveitamento de nêutrons térmicos, que se refletiu em maiores valores de k<sub>inf</sub> ao longo da queima. Quando esta redução ocorreu por meio de um decréscimo do raio externo da vareta combustível, procedimento nomeado como Espessura 2, foram obtidos os valores de k<sub>inf</sub> mais elevados, pois não houve redução da densidade do material físsil. Entretanto, próximo da queima de 27,5 MWd/kgU, o sistema ainda tornou-se subcrítico. Esse fato implica que é necessário reduzir ainda mais a espessura do material, para além da margem de segurança ou faz-se necessário um aumento do enriquecimento do combustível.



Figura 35. Fator de multiplicação infinito durante a evolução do combustível para variação de espessura do revestimento de FeCrAl do ECB.

Após a análise de  $k_{inf}$ , realizou-se uma variação de 50 K na temperatura média padrão do combustível, mantendo a temperatura dos demais parâmetros constantes, a fim de verificar o comportamento do coeficiente de reatividade de temperatura do combustível ao alterar a espessura do revestimento. A Figura 36 e a Figura 37 descrevem o comportamento de  $\alpha_F$  para um decréscimo e posterior acréscimo na temperatura de operação do combustível.

Observou-se que em ambas as Figuras, os casos simulados apresentaram valores negativos de  $\alpha_F$ . Esses foram resultados desejáveis, pois asseguraram a estabilidade do reator ao adotar a liga de FeCrAl como revestimento de combustível – mesmo com dimensões mais finas.



Figura 36. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50 K.



Figura 37. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50 K.

É interessante verificar a possibilidade de substituir o revestimento convencional pelas ligas de FeCrAl. Mas para um bom desempenho desse material, é necessário diminuir sua
espessura para reduzir a seção de choque macroscópica de absorção de nêutrons térmicos. Por isso, também foi analisado o coeficiente de reatividade de temperatura do moderador. Esse é um dos coeficientes fundamentais para a segurança de instalações nucleares. Para que seja assegurada a estabilidade do reator em condições normais de operação e em condições de acidente, é desejável que  $\alpha_M$  apresente valores negativos.

A Figura 38 apresenta os valores de  $\alpha_M$  durante a evolução do combustível. Observouse que o ECB sem decréscimo na espessura de seu revestimento apresenta, no início da queima, valores positivos para  $\alpha_M$ . Ao efetuar a diminuição da espessura da liga de ferro-cromoalumínio por meio do aumento do raio interno da vareta combustível, processo Espessura 1, foi registrado um pico positivo em aproximadamente 0,3 MWd/kgU. O comportamento mais desejável foi retratado pelo procedimento Espessura 2, que exibiu todos os valores de coeficiente de temperatura do moderador negativos ao longo da queima. Este fato indicou que há a possibilidade de utilizar a liga de FeCrAl com a espessura mais fina, obtida pelo método "Espessura 2".



Figura 38. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50 K.

A seguir foi feita a análise da razão dos fluxos térmico e total por material ao longo da queima. A Figura 39 apresenta a razão entre os fluxos térmico e total no combustível do ECB,

para cada um dos casos simulados. A Figura 40 mostra essa mesma razão, mas para o revestimento.

Notou-se que, tanto para a análise da razão entre os fluxos térmico e total no combustível quanto no revestimento, houve um endurecimento do fluxo ao longo da queima. Isso aconteceu porque durante a depleção do combustível, o material físsil vai sendo consumido e a quantidade de nêutrons térmicos tende a diminuir. Ainda ficou evidente nas Figuras 39 e 40 que o menor valor inicial da razão entre os fluxos, foi obtido pelo processo Espessura 1, quando comparado à referência. Tal resultado é justificado pelo aumento do diâmetro interno da vareta combustível simulada.

Quando utilizou-se como revestimento a liga de FeCrAl com redução na espessura, representada por Espessura 2, foi obtido, em comparação às outras situações simuladas em ambas Figuras, maior fluxo térmico em relação ao fluxo total. Isso aconteceu porque ao reduzir a dimensão do revestimento, a liga de FeCrAl sofreu um decréscimo em sua seção de choque de absorção e isso permitiu que mais nêutrons térmicos estivessem disponíveis no sistema.



Figura 39. Razão entre os fluxos térmico e total no combustível para o ECB revestido com FeCrAl.



Figura 40. Razão entre os fluxos térmico e total no revestimento para o ECB revestido com FeCrAl.

As Figuras 41 a 43 apresentam, consecutivamente, a taxa de reação total e as taxas de captura e espalhamento totais para os revestimentos de FeCrAl. Sabe-se que a taxa de reação de um determinado material é proporcional ao produto do fluxo de nêutrons pela seção de choque macroscópica deste material para uma determinada interação.

Observou-se que a liga de FeCrAl com espessura reduzida, nomeada como Espessura 2, foi o material que menos interagiu com nêutrons, como retratado na Figura 41. Entretanto, ao observar a Figura 42, verificou-se que esta configuração da liga de ferro-cromo-alumínio apresentou a maior taxa de captura total. Este fato pode ser justificado a partir dos gráficos de fluxo analisados anteriormente, os quais mostraram que, para essa geometria de revestimento, obteve-se o maior fluxo de nêutrons térmicos. Ao analisar a Figura 43, notou-se que esta configuração apresentou a menor taxa de espalhamento entre os materiais simulados.



Figura 41. Taxa de reação total nos revestimentos de FeCrAl do ECB.



Figura 42. Taxa de captura nos revestimentos de FeCrAl do ECB.



Figura 43. Taxa de espalhamento nos revestimentos de FeCrAl do ECB.

Diversos estudos (Chen et al., 2017; Gamble et al., 2017; Pint, 2017 e Terrani et al., 2014) afirmam que para um bom desempenho das ligas de ferro-cromo-alumínio é preciso reduzir a espessura do revestimento – para minimizar o impacto de sua seção de choque de absorção de nêutrons térmicos – associado a um possível aumento do enriquecimento do combustível.

Neste estudo, até o momento, verificou-se que a redução do diâmetro externo da vareta combustível – para a produção de um revestimento de FeCrAl mais fino – apresentou, quando comparado à liga sem alterações na geometria, resultados satisfatórios como aumento nos valores de k<sub>inf</sub> em estado estacionário e durante a queima, coeficientes de reatividade de temperatura do combustível e moderador negativos, maior fluxo térmico e menor taxa de reação total com nêutrons. Apesar destes bons resultados, ao ser analisada conjuntamente aos demais candidatos aos revestimentos propostos, a liga de FeCrAl ainda apresentou resultados quantitativamente menores.

Partindo deste ponto e baseado nas informações coletadas a cerca deste material, foi realizado um estudo sobre o desempenho do revestimento de ferro-cromo-alumínio ao variar sua espessura em conjunto com o aumento do enriquecimento do combustível. Esta análise teve

o objetivo de verificar se, para um bom desempenho neutrônico desta liga, é necessário utilizar os dois processos.

### 6.4 Análise da variação da espessura da liga de FeCrAl em conjunto com o aumento do enriquecimento do combustível

Após análise dos resultados anteriores, verificou-se que o ECB possui o desempenho mais favorável ao reduzir o diâmetro externo da vareta combustível, mantendo constante o raio da pastilha. Mas estes resultados ainda apresentaram-se menos satisfatórios que os dos demais materiais analisados neste estudo. Partindo deste ponto, foi proposto o aumento do enriquecimento do combustível para tentar minimizar a absorção de nêutrons por parte das ligas de FeCrAl, enquanto revestimento. O combustível, de acordo com a referência (OECD, 2006), é UO<sub>2</sub> fresco com <sup>235</sup>U enriquecido a 4%.

Nesta etapa do estudo, o ECB com redução na espessura do revestimento, referenciado na seção anterior como Espessura 2, foi modelado e simulado com novos valores de enriquecimento, variado até as proximidades do limite atualmente permitido. O combustível teve o isótopo <sup>235</sup>U enriquecido a 4,4%, 4,8% e 4,9%. Para o revestimento, adotou-se a liga de ferro-cromo-alumínio com composição descrita pela Tabela 6.

A modelagem e simulação do elemento combustível, para o cálculo de criticalidade em estado estacionário e análise durante a evolução do combustível, foi realizada por meio do código SERPENT. Empregou-se 10000 partículas e 2000 gerações ativas.

No cálculo de criticalidade, no estado estacionário, foi analisada a variação percentual de k<sub>inf</sub> ao aumentar o enriquecimento do combustível para a configuração proposta do ECB revestido com liga de ferro-cromo-alumínio.

Para a análise durante a queima, avaliou-se os seguintes parâmetros:

- a) Fator de multiplicação infinito (k<sub>inf</sub>) para o ECB com variação do enriquecimento do combustível;
- b) Coeficiente de reativade de temperatura do combustível (α<sub>F</sub>) para uma variação de 50 K na temperatura de operação do combustível. Os valores foram obtidos por meio da Equação (6);
- c) Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador (α<sub>M</sub>) para um acréscimo de 50 K na temperatura de operação do moderador. Os valores foram por meio da Equação (7);
- d) Razão entre os fluxos térmico e total no combustível e no revestimento;

- e) Acompanhamento da composição dos produtos de fissão altamente absorvedores, <sup>135</sup>Xe (formado diretamente por fissão ou decaimento do iodo-135) e <sup>149</sup>Sm (produto indireto da fissão do <sup>235</sup>U, formado pelo decaimento do neodímio-149); visto que são estes os isótopos de maior importância na análise de absorção de nêutrons por produtos de fissão;
- f) Taxas de reação total, captura total e espalhamento total do revestimento.

# 6.5 Resultado: Análise do ECB, no estado estacionário, com variação do enriquecimento do combustível.

A Tabela 15 apresenta os valores do fator de multiplicação infinito e a diferença percentual destes dados, no estado estacionário. O ECB foi revestido com uma liga de FeCrAl, conforme a metodologia denominada "Espessura 2" anteriormente analisada, e o combustível foi sujeitado à variação de enriquecimento.

Observou-se que ao elevar o enriquecimento do combustível, houve um aumento dos valores de  $k_{inf}$ . O modelo apresentou resultados de  $k_{inf}$  maiores ao adotar o enriquecimento de combustível igual a 4,9%. Quando comparado ao enriquecimento de 4% do <sup>235</sup>U proposto pela referência (OECD, 2006) houve uma diferença percentual de 4,292%, que implica em uma disponibilidade maior de nêutrons térmicos para fissão.

com redução na espessara do revestimento e variação do em igueemento do combustiven				
	Enriquecimento de U <sup>235</sup> (%)	$\mathbf{k}_{\mathrm{inf}}$	Desvio do código ( $\sigma$ )	Δk %
Espessura 2	4,0	1,27135	0,000093	-
	4,4	1,2999	0,000093	2,246
	4,8	1,32096	0,000089	3,902
	4,9	1,32591	0,000089	4,292

Tabela 15. Comparação da diferença percentual entre os valores kinf do ECB revestido com liga de FeCrAlcom redução na espessura do revestimento e variação do enriquecimento do combustível.

## 6.6 Resultado: Análise do ECB, durante a evolução do combustível, com variação do enriquecimento do combustível.

Dando seguimento aos estudos sobre o desempenho da liga de FeCrAl, enquanto revestimento, ao variar o enriquecimento do combustível, o ECB foi simulado durante a queima. A Figura 44 apresenta os valores obtidos para o fator de multiplicação infinito de nêutrons durante a evolução do combustível. A ordem de grandeza do desvio padrão ( $\sigma$ ) do código é de 10<sup>-4</sup>.

É possível visualizar que todas as curvas apresentaram perfis gráficos similares. A Figura 44 ainda evidencia que, ao adotar o enriquecimento de 4,4% para o combustível, o sistema apresentou, em aproximadamente 30 MWd/kgU de queima, valores de k<sub>inf</sub> menores que 1, o que torna o sistema subcrítico. Este fato também foi observado no ECB sem alteração no enriquecimento. Para os enriquecimentos do combustível nos valores de 4,8% e 4,9%, observou-se um bom aproveitamento de nêutrons térmicos. A Figura 44 ainda mostra que, para um enriquecimento de 4,9% do <sup>235</sup>U, o elemento combustível apresentou o melhor desempenho, ao longo do período avaliado, que se refletiu em maiores valores do fator de multiplicação infinito. Este fato pode ser justificado pela presença de maior quantidade de elemento físsil no sistema que, associado à redução da espessura do revestimento, promoveu uma diminuição da absorção de nêutrons térmicos pela liga de ferro-cromo-alumínio.



Figura 44. Evolução de k<sub>inf</sub> ao longo da queima para variação do enriquecimento do combustível do ECB.

Depois de realizada a análise do fator de multiplicação infinito do ECB, sucedeu-se uma variação de 50 K na temperatura de operação do combustível. Foram mantidas constantes as temperaturas dos demais parâmetros. Esta variação teve o objetivo de proporcionar um estudo do coeficiente de reatividade de temperatura do combustível.

A Figura 45 e a Figura 46 descrevem, consecutivamente, o comportamento de  $\alpha_F$  para um decréscimo e posterior acréscimo na temperatura média padrão do combustível. Os resultados foram obtidos por meio da Equação (6).

Observou-se em ambas Figuras que, para uma variação da temperatura,  $\alpha_F$  apresentou valores negativos para todos os casos simulados, ao longo da queima. Este fato é fundamental, pois assegura a confiabilidade de utilizar a liga de FeCrAl como revestimento, na geometria proposta, para diferentes teores de enriquecimento do combustível. O coeficiente de reatividade do combustível com valores negativos não permite que a potência do reator aumente de forma descontrolada.



Figura 45. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um decréscimo de 50 K.



Figura 46. Coeficiente de reatividade de temperatura do combustível para um acréscimo de 50K na temperatura.

Para analisar a possibilidade de usar a liga de ferro-cromo-alumínio como revestimento para combustíveis com enriquecimento maior que o proposto pela referência (OECD, 2006) foi realizado um estudo do coeficiente de reatividade de temperatura do moderador ( $\alpha_M$ ). Este é um dos principais parâmetros de segurança de instalações nucleares e determina o comportamento final do reator em resposta à variação de temperatura no núcleo. É desejável que este parâmetro apresente valores negativos.

A Figura 47 exibe os resultados de  $\alpha_M$  para um aumento de 50 K na temperatura de trabalho do moderador. As temperaturas dos demais parâmetros foram mantidas constantes, conforme dados disponibilizados por (OECD, 2006). Os resultados foram obtidos por meio da Equação (7).

Notou-se que, para um aumento da temperatura do moderador, o ECB com  $^{235}$ U enriquecido a 4,9% apresentou valores de  $\alpha_M$  positivos no início do ciclo, em aproximadamente 0,3 MWd/kgU. Quando submetido aos demais enriquecimentos, o elemento combustível apresentou comportamento satisfatório, exibindo valores negativos para o coeficiente de reatividade de temperatura do moderador. Este fato indica a possibilidade de se utilizar como revestimento a liga de FeCrAl com espessura reduzida para combustíveis enriquecidos em até 4,8%%.



Figura 47. Coeficiente de reatividade de temperatura do moderador para um acréscimo de 50 K.

O parâmetro analisado em seguida foi a razão entre o fluxo térmico e o fluxo total, por material, ao longo da queima. A Figura 48 apresenta a razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no combustível do ECB sob diferentes teores de enriquecimento. A Figura 49 mostra essa mesma razão, mas o material em análise é o revestimento.

Em ambas as Figuras ficou evidente o endurecimento da razão entre os fluxos ao longo da queima. Isso acontece porque à medida em que o combustível é consumido, a quantidade de nêutrons térmicos, em comparação ao total de nêutrons disponíveis no sistema, tende a diminuir.

Na Figura 48 e na Figura 49 observou-se que o ECB apresentou maior fluxo térmico para o enriquecimento de 4%. E, à medida em que aumentou-se gradualmente o enriquecimento do combustível, o valor inicial da razão decresceu. Isso aconteceu devido ao aumento da absorção de nêutrons no combustível. Ao mesmo tempo, a queima de material físsil gerou produtos de fissão que também absorvem nêutrons. Os isótopos de maior importância na análise absorção de nêutrons por produtos de fissão são o xenônio-135 (<sup>135</sup>Xe) e o samário-149 (<sup>149</sup>Sm); seus comportamentos durante a evolução do combustível estão descritos nas Figuras 50 e 51, respectivamente. Devido às suas elevadas seções de choque de absorção, o aparecimento destes isótopos no reator tende a diminuir a reação em cadeia. Com o aumento do enriquecimento do

combustível, houve maior produção de iodo-135, visto que este isótopo vem da fissão de <sup>235</sup>U, consequentemente, houve maior formação de <sup>135</sup>Xe, que resultou em diminuição do fluxo de nêutrons. Quando a concentração de <sup>135</sup>Xe diminuir, haverá um decréscimo da absorção neutrônica e portanto, um aumento do fluxo. Já a concentração de Sm-149 durante a operação aumenta até atingir o equilíbrio, e desde então, o samário é estável e sua concentração permanece essencialmente constante. Para maiores valores de enriquecimento do combustível, tem-se maior presença de <sup>235</sup>U. Visto que <sup>149</sup>Sm é um produto de fissão indireto deste isótopo, houve, também, uma maior concentração de samário-149 ao longo da queima.



Figura 48. Razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no combustível do ECB para diferentes enriquecimentos.



Figura 49. Razão entre o fluxo térmico e o fluxo total no revestimento do ECB para diferentes enriquecimentos.



Figura 50. Concentração de Xenônio-135 durante a evolução do combustível para diferentes enriquecimentos.



Figura 51. Concentração de Samário-149 durante a evolução do combustível para diferentes enriquecimentos.

As Figuras de 52 a 54 apresentam, respectivamente, a taxa de reação total e as taxas de captura e espalhamento totais para o revestimento de FeCrAl submetido ao combustível com diferentes enriquecimentos.

Como já mencionado anteriormente, a taxa de reação de um material é proporcional ao fluxo de nêutrons e à seção de choque macroscópica para uma determinada interação com nêutrons. Um dos requisitos para que um material seja considerado um bom revestimento de combustível nuclear é ser transparente para nêutrons.

Como pode ser observado nas Figuras, à medida em que o enriquecimento do combustível sofreu acréscimos, as taxas de reação total, de captura e espalhamento, respectivamente, sofreram uma redução. Com o aumento do enriquecimento, o fluxo de nêutrons tornou-se mais endurecido e por isso a liga de FeCrAl – que possui elevada seção de choque de absorção de nêutrons térmicos – tende a apresentar um melhor desempenho. Sendo assim, observou-se que o ECB revestido com liga de ferro-cromo-alumínio de espessura mais fina e com combustível enriquecido a 4,9%, apresentou menores taxas de captura e espalhamento, sendo estes dados considerados como os resultados mais desejáveis.



Figura 52. Taxa de reação total para o revestimento de FeCrAl quando submetido a diferentes enriquecimentos do combustível.



Figura 53. Taxa de captura no revestimento de FeCrAl quando submetido a diferentes enriquecimentos de combustível.



Figura 54. Taxa de espalhamento no revestimento de FeCrAl quando submetido à variações no enriquecimento do combustível.

Diante do estudo neutrônico, realizado nesta dissertação, a cerca de novos materiais considerados como possíveis revestimentos de combustível nuclear, foi possível extrair algumas conclusões importantes apresentadas no capítulo seguinte.

#### CAPÍTULO 7. CONCLUSÕES

Este trabalho de dissertação mostrou que as ligas aprimoradas de zircônio, ZIRLO e OPT ZIRLO, possuem comportamentos neutrônicos semelhantes, que são justificados pelas similaridades em suas composições. Todas as ligas de zircônio estudadas, nesta dissertação, apresentaram coeficientes de reatividade de temperatura do combustível e do moderador negativos durante a queima. Este fato garante a estabilidade do reator para operar em condições normais e em caso de acidente ao adotar tais materiais como revestimento de combustível nuclear. Entretanto, ao analisar as ligas avançadas de zircônio em relação ao Zircaloy, estas apresentaram algumas desvantagens. O OPT ZIRLO mostrou maior fator de multiplicação infinito, em estado estacionário e durante a evolução do combustível – com e sem o uso de varetas de combustível com veneno queimável, que o ZIRLO; mas estes valores apresentaram-se menores que o do revestimento padrão do ECB. Ainda verificou-se que o OPT ZIRLO capturou menos nêutrons térmicos e possui maior taxa de espalhamento que seu antecessor, ZIRLO. Mas, de modo geral, estes materiais são menos transparentes para nêutrons que o Zircaloy. E, por fim, mesmo que sejam consideradas como ligas avançadas, ainda estão sujeitas às fragilidades do zircônio, visto que este é o principal componente destes materiais.

O carbeto de silício reforçado com fibras de Hi-Nicalon tipo S, SiC HNS, possui boa resistência à corrosão, baixa seção de choque de absorção de nêutrons térmicos e boa condutividade térmica – que permite ao reator operar em temperaturas menores que ao adotar o revestimento convencional. O material cerâmico, ao ser comparado com o Zircaloy, apresentou valores de kinf maiores, no estado estacionário e durante a evolução do combustível, mesmo em presença de veneno queimável. Também apresentou valores negativos para os coeficientes de reatividade de temperatura do combustível e do moderador, o que assegura a segurança inerente do reator ao adotar tal revestimento. Para as mesmas condições de operação do ECB revestido com Zircaloy, o SiC HNS exibiu maior fluxo térmico em relação ao fluxo total, o que implica em mais nêutrons térmicos disponíveis no sistema. Ademais, verificou-se que este material cerâmico possui menor taxa de captura de nêutrons térmicos ao longo da queima, quando comparado aos demais materiais estudados. Esta é uma característica desejável, visto que para ser considerado um bom revestimento de PWR, o mesmo não deve possuir alta afinidade com nêutrons térmicos. Diante do ligeiro ganho nêutronico apresentado, pode-se concluir que há uma potencial possibilidade de substituir o Zircaloy pelo carbeto de silício reforçado com fibras de Hi-Nicalon tipo S, (SiC HNS).

Ligas de ferro-cromo-alumínio têm sido cotadas como candidatas a revestimento de combustível nuclear por sua ótima resposta à oxidação quando comparadas ao Zircaloy. Entretanto, estes materiais possuem um ponto de fusão mais baixo que o do revestimento convencional e maior seção de choque de absorção de nêutrons térmicos, para uma mesma espessura. Estes fatores são considerados como penalidades neutrônicas deste material. Para o ECB revestido com uma liga de FeCrAl operando sob as mesmas condições adotadas para o ECB com os demais materiais em análise, verificou-se que os valores obtidos para o fator de multiplicação infinito foram menores que ao adotar o revestimento convencional. Quando submetido à análise do coeficiente de reatividade de temperatura do combustível, a liga de FeCrAl apresentou valores negativos, como é desejável; mas obteve valores positivos, em alguns pontos da queima, para o coeficiente de reatividade de temperatura do moderador, mesmo em presença de varetas com veneno queimável. Este fato não permite assegurar a confiabilidade de se utilizar esta liga sob as mesmas condições dos demais materiais analisados. Ainda foi observado que o sistema com FeCrAl apresentou um menor fluxo térmico em relação ao fluxo total. Isto pode ser explicado por sua elevada seção de choque de nêutrons térmicos. Consequentemente, foi verificado que este material é altamente absorvedor e espalhador quando comparado aos demais candidatos aos revestimentos estudados.

No intuito de diminuir a penalidade neutrônica da liga de FeCrAl, enquanto revestimento, reduziu-se sua espessura e elevou-se o enriquecimento do combustível. Para estas novas condições de operação, foi observado que o desempenho mais favorável foi obtido com a redução do diâmetro externo do revestimento para um enriquecimento de 4,8% do combustível.

Os valores de fator de multiplicação infinito obtidos foram próximos aos do Zircaloy e, ao fim da queima, o sistema não tornou-se subcrítico. Também foi observado que os coeficientes de reatividade de temperatura do combustível e do moderador foram negativos, isto garante a confiabilidade em adotar a liga de ferro-cromo-alumínio como revestimento sob estas condições. Verificou-se também que houve uma melhoria no fluxo térmico disponível no sistema e que as taxas de captura e espalhamento de nêutrons foram reduzidas, o que é desejável para um bom revestimento de combustível nuclear. Assim, pode-se concluir que a liga de FeCrAl com combustível enriquecido a 4,8% e espessura reduzida tem potencial aplicabilidade como revestimento em substituição ao Zircaloy.

Entretanto, é necessário avançar com a realização de estudos termo-hidráulicos para comprovar a possibilidade de substituir o revestimento padrão pelo SiC HNS e pela liga de FeCrAl. Então, como futuro trabalho pretende-se avaliar as propriedades físico-químicas dos compostos de carbeto de silício e das ligas de FeCrAl, mas também apresentar uma avaliação neutrônica destes materiais quando submetidos à irradiação e suas respectivas atuações em condições de acidente, associados ao combustível convencional de dióxido de urânio e a outros combustíveis avançados considerados tolerantes à acidentes. Para tal, será modelado e simulado o núcleo de um PWR revestido com carbeto de silício reforçado com fibras de Hi-Nicalon tipo S e também revestido com ligas de FeCrAl. O comportamento do sistema tolerante a acidente será analisado a fim de verificar se é mantido um desempenho adequado do combustível e do revestimento durante a operação normal e em casos de acidente. Almeja-se identificar combinações de parâmetros de projeto de combustível, por meio da variação da espessura do revestimento e design da pastilha, de forma a manter a potência e a duração do ciclo em PWRs já existentes, possibilitando que estes materiais tolerem a perda ativa de refrigerante por um período de tempo maior em cenários de acidentes graves. E assim, espera-se contribuir com os esforços para o desenvolvimento da tecnologia PWR tolerante à acidentes, quanto à seleção de materiais e as especificações de parâmetros para manter o desempenho e compatibilidade com a infraestrutura PWR já existente.

#### **REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS**

Ahn, K., Joo, K., Park, S-P., **Safety Evaluation of Silicon Carbide and Zircaloy-4 Cladding during a Large-Break Loss-of-Coolant Accident.** Energies, 11, 3324, 2018.

Azevedo, C. R. F., Selection of fuel cladding material for nuclear fission reactors. Enginee ring Failures Analysis, v.18, p.1943-1962, 2011.

Bowman, S. M., Keno-VI Primer: A Primer for criticality calculation with SCALE/KENO-VI using GeeWiz. OakRidge, Tennesee, USA: ORNL/TM-2008/069, 2008.

Carpenter, D., Comparison of Pellet Cladding Machanical Interaction for Zircaloy and Silicon Carbide Clad Fuel Rods in PWR. Departament of Nuclear Engineering, Massachusetts Institute of Technology, 2006.

Chen, S., Yuan, C., Neutronic analysis on potential accident tolerant fuel-cladding combination U<sub>3</sub>Si-FeCrAl. Science and Technology of Nuclear Installations, 2017.

Comstock, R. J., Sabol, G., Schoenberger, G., Influence of Processing Variables and Alloy Chemistry on the Corrosion Behavior of ZIRLO Nuclear Fuel Cladding. American Society for Test and Materials, West Consohohocken, 1996.

Cox, B., **Some thoughts on the mechanisms of in-reactor corrosion of zirconium alloys**. Journal of Nuclear Materials, v.336, p.331-368, 2005.

Duan, Z., Yang, H., Satoh, Y., Murakami, K., Kano, S., Zhao, Z., Shen, J., Abe, H., Current status of materials development of nuclear fuel cladding tubes for light water reactors. Nuclear Engineering and Desing, v.316, p.131-150, 2017.

Duderstadt, J. J.; Hamilton, L. J. Nuclear Reactor Analisys. John Wiley & Sons, Inc., Nova York, 1976.

Eletrobrás Termonuclear S.A. Eletronuclear. **Final Safety Analysis Report Central Nuclear Almirante Álvaro Alberto.** Rio de Janeiro, Brasil. UNIT2. Rev. 13, 2013.

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 <u>http://dx.doi.org/10.1557/opl.2015.125</u>

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

Ferón, D. **Overview of nuclear materials and nuclear corrosion science and engineering.** Woodhead Publishing Series in Energy. France, p. 31-56. 2012. Foster, J. P., Yueh, H. K., Comstock, R. J., **ZIRLO Cladding Improvement.** Journal of ASTM International, v.5, n.7, 2008.

Frost, B. R. T., Nuclear Fuel Elements. Pergamon Press, EUA, 1982.

Gamble, K. A., Barani, T., Pizzocri, D., Hales, J. D., Terrani, K. A., Pastore, G., An investigation of FeCrAl cladding behavior under normal operating and loss coolant conditions. Journal of Nuclear Energy, v. 491, p.55-66, 2017.

Hales, J. D., Gamble, K. A., **Preliminary Evaluation of FeCrAl Cladding and U-Si FUEL for Accident Tolerant Fuel Concepts**. Fuels Modeling and Simulation Departament, Idaho National Laboratory, Idaho Falls, EUA, 2015.

Hallstadius, L., Johnson, S., Ladoha, E., Cladding for high performance fuel. Progress in Nuclear Energy, v.57, p.71-76, 2012.

Heinisch, H. L., Grenwood, L. R., Weber, W. J., Willifond, R. E., **Displacement Damage Cross Section Neutron-Irradiated Silicon Carbide.** Journal of Nuclear Materials, v.895, p.307-311, 2002.

Jung, Y. I., Seol, Y. N., Choi, B. K., Park, J. Y., Jeong, Y. H., Effect of Cr on the creep properties of Zirconium alloys. Journal of Nuclear Materials, v.396, p.303-306, 2010.

Kim, W. J., Kim, D., Park, J. Y., Fabrication and Material Issues for the Apliccation of SiC Composites to LWR Fuel Cladding. Nuclear Engineering and Technology, v.45, p.565-572, 2013.

Kim, H. R., Kim, H. G., Yang, J. H., Yang-Hyun, K., **On The Minimum Thickness of FeCrAl Cladding for Accident Tolerant Fuel.** American Nuclear Society, v.198, 2017.

Koyang, T., Katoh, Y., Singh, G., Snead, M., SiC/SiC Cladding Materials Properties Handbook. Oak Ridge National Laboratory, Oak Rigde, Tennessee, USA, 2017.

Lake, J. A., Bennett, R. G., Kotek, J. F., Next Generation Power. Scientific American, v.289, p.72-79, 2002.

Lee, Y., McKrell, T. J., Yue, C., Kazami, S. M., Safety Assessment of SiC Cladding Oxidation under Loss-of-Coolant Accident Conditions in Light Water Reactors. Nuclear Technology, v.183, p.210-227, 2013.

Lemaignan, C., **Zircomium alloys: properties and characteristics.** Comprehensive Nuclear Materials, v.2, p.217-232, 2012.

Leppanen, J., Pusa, M., Viitanen, T., Valtavirta, V., Kaltiaisenaho, T., **The Serpent Monte C** arlo code: Status, development and applications in 2013. Annals of Nuclear Energy, v.82, p .142-150, 2015.

Macieira, K., Castro, V. F., Faria, R. B., Pereira, C., Costa, A. L., Análise Neutrônica de Nov os Materiais para Revestimento de Combustível Nuclear para PWR. Quarta Semana de E

ngenharia Nuclear e Ciência das Radiações – IV Sencir, Escola de Engenharia, Universidade F ederal de Minas Gerais, Belo Horizonte, v.4, p.490-498, 2018.

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 – IN AC, Santos, 2019.

Magalhães, I. R., Faria, R. B., Pereira, C., Study of Physical and Chemical Characteristics o f new Claddings for Nuclear Fuel in new Generation PWRS. International Nuclear Atlanti c Conference – INAC, Santos, 2019.

Maiorino, J. R., Stefani, G. L., Moreira, J. M. L., Rossi, P. C. R., Santos, T. A., Feasibility to convert an advanced PWR from UO2 to a mixed U/ThO2 core – Part I: Parametric studi es. Annals of Nuclear Energy, v.102, p.47-55, 2017.

OECD, Organization for Economic co-Operation and Development, **Burn-up Credit Critical** ity Benchmark – Phase II-D – PWR-UO<sub>2</sub> Assembly Study of Control Rods Effects on Sp ent Fuel Composition. NEA N° 6227, ISBN: 92-64-02316-X, France, 2006. Olander, D. and Motta, A., Light Water Reactors Materials. Nuclear American Society, v.1, 2011.

Ott, L. J., Robb, K. R., Wang, D., **Preliminary assessment of accident tolerant fuels on LWR performance during normal operation and under DB an BDB accident conditions**. Journal of Nuclear Materials, v. 488, p. 520-533, 2014.

Pan, G., Garde, A. M., Atwood, A. R., **Performance and Property Evaluation of High-Burnup Otimized ZIRLO Cladding.** Zirconium in the Nuclear Industry: 17<sup>th</sup> International Symposium, STP 1543, p.607-627, 2015.

Pierron, O. N., Koss, D. A., Motta, A. T., Chan, K. S., **The Influence of Hydrede Blisters on the Fracture of Zircaloy-4.** Journal of Nuclear Materials. v.322, 2003.

Pint, B. A., Performance of FeCrAl for accident-tolerant fuel cladding in high-temperature steam. Corrosion Reviews, v.35, 08/2017.

Rashed, A. H., Properties and Characteristics of Silicon Carbide. Poco Graphite, Inc., 2002.

Sabol, G. P., Kilp, g. R., Balfour, M. G., Roberts, E., **Development of a cladding alloy for high burnup.** ASTM STP 1023, p.227-244, 1989.

Sabol, G. P., Comstock, R. J., Weiner, R. A., Larouere, P., Stanutz, R. N., In-reactor Corrosion Performance of ZIRLO and Zircaloy-4. Zirconium in the Nuclear Industry. In: Tenth International Symposium, ASTM International, 1994.

Stempien, J. D., Carpenter, D. M., Kohse, G., Kazimi, M. S., Characteristics of composite silicon carbide fuel cladding after irradiation under simulated PWR conditions. Nuclear Technology, v. 183, Julho de 2013.

Terrani, K. A., Zinkle, S. J., Snead, L. L., Advanced oxidation-resistant iron-based alloys for LWR fuel cladding. Journal of Nuclear Materials, v.448, p.420-435, 2014.

Terrani K. A., Karlsen, T. M., Yamamoto, Y., **Report on Design and Preliminary Data of Halden In-Pile Creep Rig.** ONRL/TM-2015/507, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, USA, 2015.

Terrani, K. A., Yamamoto, Y., **Input Correlations for Irradiation Creep of FeCrAl and SiC Based on In-Pile Halden Test Results.** Oak Ridge National Laboratory (ONRL), Oak Ridge, Tennessee, USA, 2016.

Wikmark, G., Hallstadius, L., Yuek, K., Cladding to sustain corrosion, creep and growth at high burn-ups. Nuclear Engineering and Technology, v.41, p.143-148, 2009.

World Nuclear Association (WNA), relatório atualizado em fevereiro/2018. <u>http://www.worldnuclear.org/information-library/current-and-future-generation/plans-fornewreactorsworldwide.aspx</u>

World Nuclear Association. World Nuclear Performance Report 2019, relatório publicado em Agosto/2019.

https://www.world-nuclear.org/our-association/publications/online-reports/world-nuclear-performance-report.aspx

Yuek, H. K., Kesterson, R. L., Comstock, R. J., Shah, H. H., Colburn, D. J., Dahlback, M., Hallstadius, L., **Improved ZIRLO Cladding Performance through Chemistry and Process Modifications.** Journal of ASTM International, v.2, n.6, 2005.

Zhang, Z. G., Feng, Z. H., Jiang, X. J., Zhang, X. Y., Ma, M. Z., Liu, R. P., Microstructure and tensile properties of novel Zr-Cr binary alloys processed by hot rolling. Materials Science and Engineering, v.652, p.77-83, 2016.