

CONDUTIVIDADE TÉRMICA DE PASTILHAS DE COMBUSTÍVEL NUCLEAR DE UO₂-BeO NAS TEMPERATURAS DE 25 °C E 100 °C

D. M. Camarano, F. A. Mansur, A. M. M. dos Santos, W. B. Ferraz
Av. Presidente Antônio Carlos, 6.627, Campus da UFMG - Pampulha
CEP 31270-901 – Belo Horizonte/MG – Brasil – dmc@cdtn.br
Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear

RESUMO

O combustível de UO₂ é um dos combustíveis nucleares mais utilizados em reatores térmicos e apresenta muitas vantagens, como elevado ponto de fusão, compatibilidade química com revestimento, dentre outras. Entretanto, a sua condutividade térmica é relativamente baixa, podendo causar, durante a operação do reator, um elevado gradiente radial de temperatura, degradando prematuramente as pastilhas de UO₂. Uma alternativa para aumentar a condutividade térmica do UO₂ é a presença de aditivos como o óxido de berílio (BeO). Pastilhas de UO₂ e UO₂-BeO foram obtidas a partir da mistura homogênea de pós de UO₂ e de BeO, com adições de 2% e 3% em peso de BeO. As pastilhas foram sinterizadas a 1750 °C por 3 h sob atmosfera de H₂ após prensagem uniaxial de 400 MPa. A densidade das pastilhas foi determinada pelo método de penetração e imersão com xilol e a difusividade térmica, o calor específico e a condutividade térmica foram determinados à temperatura ambiente e a 100 °C de acordo com a ASTM-E-1461. As medidas de difusividade térmica foram realizadas empregando-se o método Flash Laser. A condutividade térmica obtida a 25 °C aumentou com a adição de 2% e 3% de BeO, respectivamente, 19% e 28%. Já para as medições realizadas a 100 °C, a condutividade térmica aumentou, para estes mesmos teores de BeO, 20% e 31%. Esses percentuais de aumento são em relação aos obtidos nas pastilhas de UO₂.

Palavras-chave: Óxido de Berílio com dióxido de urânio, Combustível Nuclear, Difusividade Térmica, Condutividade Térmica.

INTRODUÇÃO

O combustível nuclear de dióxido de urânio (UO₂) é o combustível mais utilizado em reatores à água leve (LWR - *Light Water Reactor*) por ter um elevado ponto de fusão, ser estável física e quimicamente e pela sua capacidade de retenção de produtos de fissão. Contudo, sua principal limitação está relacionada com a sua baixa condutividade térmica, o que afeta diretamente a temperatura da pastilha de combustível, a liberação de gases provenientes da fissão nuclear e o

comportamento mecânico das varetas de combustível durante a operação do reator. Uma alternativa para evitar esse problema, garantindo economia devido à maior durabilidade do combustível, é aumentar a condutividade das pastilhas combustíveis, por meio da adição de um material de maior condutividade compatível com o UO_2 , como o óxido de berílio (BeO)⁽¹⁻⁵⁾. Este combustível, constituído de uma mistura de UO_2 - BeO , tem como grande vantagem uma condutividade térmica mais elevada em relação ao combustível convencional, levando a um aumento da vida útil do combustível⁽⁶⁻⁹⁾.

Continuando os estudos prévios realizados no Laboratório de Medição de Propriedades Termofísicas (LMPT) do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear (CDTN)⁽¹⁰⁾, este trabalho apresenta os resultados obtidos com pastilhas de óxidos mistos de urânio e berílio com 2% e 3% em peso de BeO , assim como o processo de fabricação destas pastilhas. As densidades das pastilhas sinterizadas foram obtidas pelo método geométrico e de penetração e imersão por xilol^(11,12). A microestrutura das pastilhas foi analisada por microscopia óptica, microscopia eletrônica de varredura (MEV) e espectroscopia por dispersão de energia (EDS). A difusividade térmica, o calor específico e a condutividade térmica foram determinados conforme ASTM-E-1461⁽¹³⁾. As medidas de difusividade térmica foram realizadas empregando-se o método do Flash Laser⁽¹⁴⁾.

METODOLOGIA

Fabricação das pastilhas

Pós de óxido de berílio com dióxido de urânio foram misturados durante 3 h utilizando-se um aparelho mecânico rotativo. Os teores de BeO das misturas foram de 2% e 3% em peso. Cada mistura de pós foi prensada em uma prensa hidráulica com uma pressão de compactação de 400 MPa. As pastilhas obtidas foram sinterizadas a 1750 °C durante 3 h em um forno horizontal sob atmosfera de H_2 . Pastilhas de UO_2 também foram obtidas para comparação dos resultados obtidos com os das pastilhas contendo as misturas de UO_2 - BeO . Foram produzidas 9 pastilhas no total, sendo 3 para cada teor de óxido de berílio (0%, 2% e 3%) e uma das pastilhas de cada tipo foi utilizada apenas para a determinação da densidade e análise microestrutural.

Densidade das pastilhas

A densidade geométrica ρ ($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$) de cada amostra foi determinada a partir de medições do diâmetro D (cm), espessura L (cm) e da massa m (g) utilizando um micrômetro e uma balança analítica calibrada, através da Eq. (A):

$$\rho = \frac{m}{\frac{\pi \cdot D^2 \cdot L}{4}} \quad (\text{A})$$

A densidade das pastilhas sinterizadas também foi determinada pelo método de penetração e imersão com base no princípio de Arquimedes, utilizando xilol como líquido de imersão ^(11,12). Este método tem maior precisão e exatidão do que o método geométrico.

Análise microestrutural

Análise microestrutural das amostras foi realizada por microscopia óptica (Leica, DM4500P) e microscopia eletrônica de varredura (Carl Zeiss, Sigma VP). Amostras das pastilhas foram preparadas pelas técnicas usuais de metalografia. Para o lixamento utilizou-se lixas de carbetto de silício (SiC) com granulometrias sequenciais de 300 a 600 *mesh* e para o polimento foram utilizadas pastas de diamante de 3 μm e 1 μm .

Para a microscopia eletrônica de varredura, as amostras polidas foram recobertas com uma fina camada de ouro. Espectroscopia de energia dispersiva - EDS (Bruker, XFlash 4.0) foi realizada por elétrons secundários para obter as imagens microestruturais e por elétrons retroespalhados para identificar a composição química dos elementos presentes na matriz ou precipitados.

Determinação da difusividade térmica

A difusividade térmica das pastilhas foi medida através do método Flash Laser ⁽¹³⁾, à temperatura ambiente e a 100 °C, de acordo com a norma ASTM-E-1461 ⁽¹⁴⁾. Este método se baseia na aplicação uniforme de um flash intenso de energia radiante sobre uma face da amostra em que o pulso de calor difunde unidirecionalmente para a sua face oposta. A fonte de energia radiante utilizada foi um laser de CO₂ de comprimento de onda de 10,6 μm (Bioluz, BL 80i) e o tempo de

pulso foi de 15 ms. O aumento da temperatura da face oposta da amostra é limitado a um valor máximo de 3 °C e foi medido por um termômetro infravermelho calibrado (Raytek, RAYMMLTSSF1L). Para a aquisição e processamento do sinal elétrico foi utilizada uma placa multifuncional da National Instruments de 16 bits (USB-6251) e um *software* desenvolvido pela equipe do LMPT/CDTN na plataforma *Labview*. Todas as pastilhas foram revestidas com uma camada fina de carbono, a fim de garantir uma absorção uniforme do feixe de laser. A Fig. 1 apresenta a bancada experimental do LMPT/CDTN.

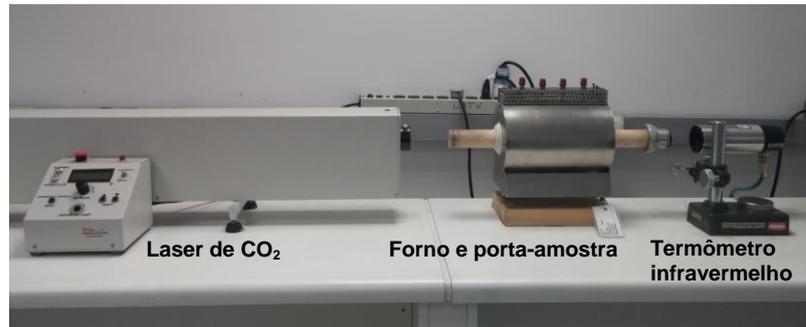


Figura 1 – Montagem utilizada no LMPT para a determinação da difusividade térmica por meio do método Flash Laser.

A difusividade térmica α ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$) foi calculada a partir da espessura da amostra L (m) e do tempo $t_{1/2}$ (s) requerido para a temperatura da face oposta atingir o seu valor máximo, através da Eq. (B):

$$\alpha = \frac{1,38 \cdot L^2}{\pi^2 \cdot t_{1/2}} \quad (\text{B})$$

Determinação do calor específico

O calor específico (C_p) das pastilhas foi obtido a partir do conhecimento da quantidade de calor previamente determinada utilizando uma amostra de referência (Pirocerâmico 9606) de calor específico conhecido ($800 \text{ J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$), submetida aos mesmos parâmetros utilizados para o aquecimento das pastilhas de combustível nuclear, conforme ASTM-E-1461 ⁽¹⁴⁾. O C_p foi determinado por meio da Eq. (C), onde Q corresponde à quantidade de calor absorvida por unidade de área da face da amostra ($\text{J}\cdot\text{m}^{-2}$), ρ à densidade da amostra ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$), L à espessura da amostra (m), T_M à temperatura máxima atingida na face oposta da amostra (K) e T_i corresponde à

temperatura inicial da amostra (K). O calor específico, em $\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$, foi determinado a partir de cinco medições de cada pastilha.

$$C_p = \frac{Q}{\rho \cdot L \cdot (T_M - T_i)} \quad (\text{C})$$

Determinação da condutividade térmica

A condutividade térmica k ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$) foi determinada matematicamente pelo produto do valor da difusividade térmica α ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$), calor específico C_p ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$) e densidade ρ ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$), pela Eq. (D):

$$k = \alpha \cdot \rho \cdot C_p \quad (\text{D})$$

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Fabricação e densidade das pastilhas

Na Tab. 1 são apresentados dados das pastilhas sinterizadas. Os valores das densidades das pastilhas sinterizadas obtidas pelo método de penetração e imersão por xilol foram para UO_2 , $\text{UO}_2\text{-2\%BeO}$ e $\text{UO}_2\text{-3\%BeO}$, respectivamente, 93,7%, 95,4% e 95,3% das suas densidades teóricas (DT). Na tabela são também mostradas as densidades teóricas dessas pastilhas.

A diferença máxima entre as densidades das pastilhas sinterizadas obtidas geometricamente e pelo método de penetração e imersão por xilol foi de 2,25%, indicando boa reprodutibilidade entre ambos os métodos utilizados.

Tabela 1 – Resultados da caracterização física das pastilhas sinterizadas.

Composição das pastilhas /DT	Nº	Altura (cm)	Diâmetro (cm)	Massa (g)	Densidade geométrica (g·cm ⁻³)	Densidade (a) (g·cm ⁻³)
UO ₂ (10,96 g·cm ⁻³)	BE 062	0,8350	0,9372	5,8010	10,07	10,27
	BE 063	0,2481	0,9386	1,7466	10,18	-
	BE 064	0,2323	0,9400	1,6472	10,22	-
UO ₂ -2%BeO (10,41 g·cm ⁻³)	BE 065	0,8679	0,9354	5,7966	9,72	9,93
	BE 066	0,2629	0,9375	1,7540	9,67	-
	BE 067	0,2594	0,9356	1,7360	9,73	-
UO ₂ -3%BeO (10,24 g·cm ⁻³)	BE 068	0,8830	0,9363	5,7587	9,47	9,76
	BE 069	0,2684	0,9321	1,7645	9,63	-
	BE 070	0,2619	0,9336	1,7216	9,60	-

(a) Densidade determinada pelo método de penetração e imersão por xilol.

Análise microestrutural

Nas Fig. 2 e 3 são apresentadas micrografias de microscopia eletrônica de varredura e microscopia óptica das pastilhas de UO₂ e UO₂-BeO.

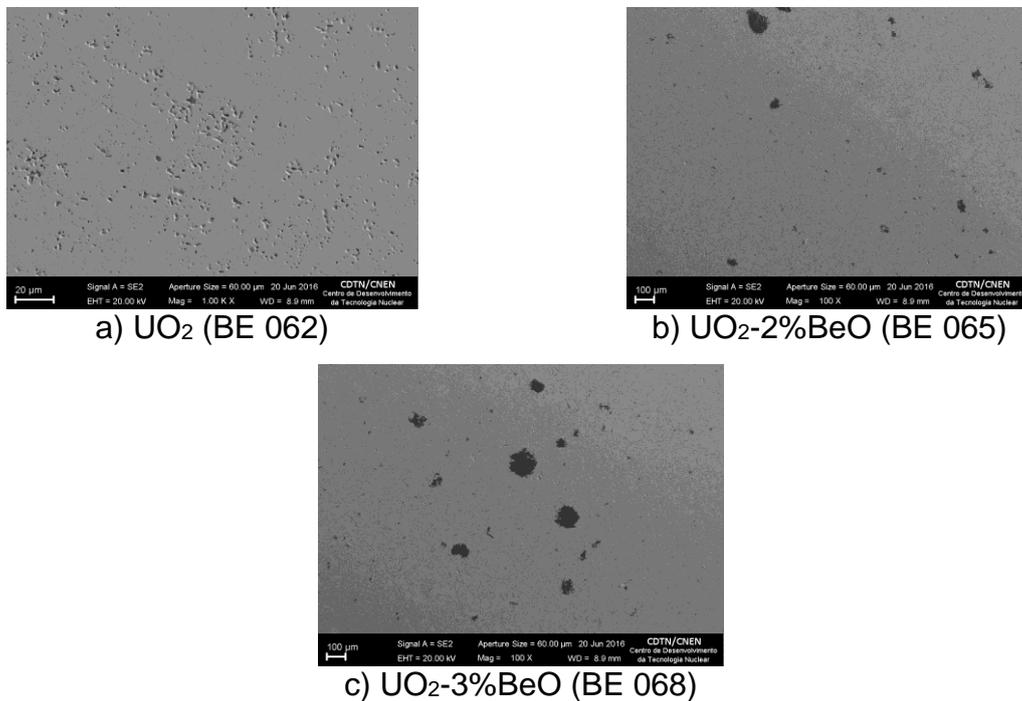


Figura 2 – Micrografias de microscopia eletrônica de varredura das pastilhas de UO₂ e UO₂-BeO.

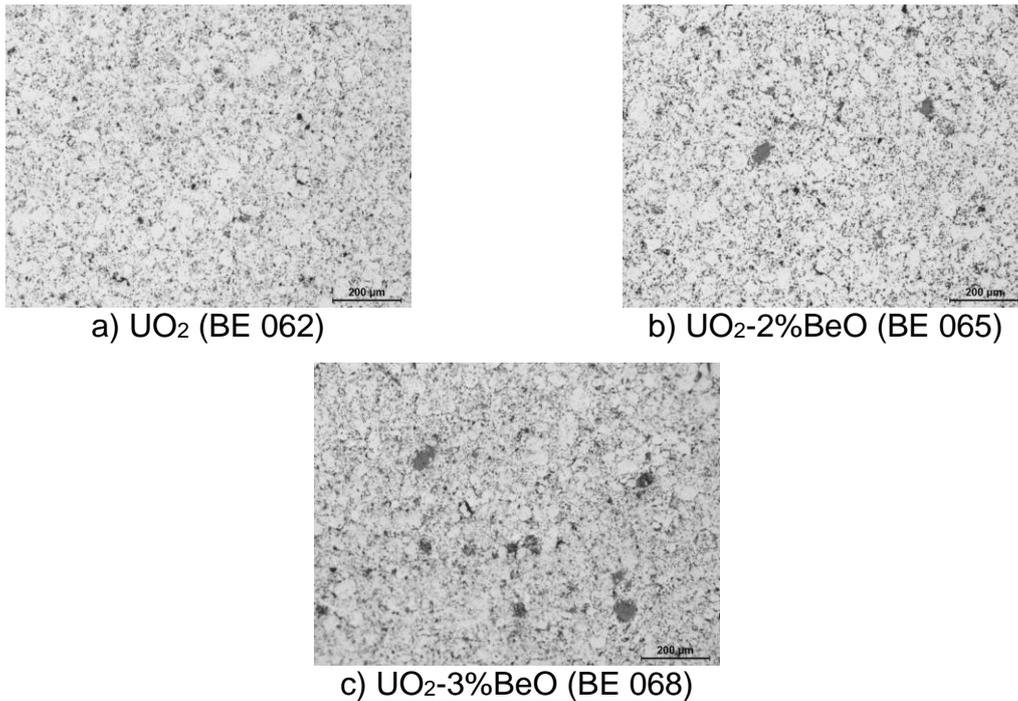


Figura 3 – Micrografias de microscopia óptica das pastilhas de UO₂ e UO₂-BeO.

As micrografias indicam a presença de precipitados e de poros nas pastilhas. Análise de EDS por mapeamento de elementos mostrou que as fases de UO₂ e BeO estão presentes sem a formação de uma solução sólida, com o BeO disperso na matriz de UO₂.

Propriedades termofísicas

Os resultados de difusividade térmica das pastilhas são apresentados na Tab. 2. Observou-se um aumento médio na difusividade térmica das pastilhas contendo 2% e 3% de BeO em relação à pastilha de UO₂, respectivamente, de 14% e 21% à temperatura de 25 °C e de 15% e 22% à temperatura de 100 °C.

Na Fig. 4 é apresentado o valor da difusividade térmica em função da temperatura, onde há uma diminuição da difusividade térmica com o aumento da temperatura. A diferença máxima no valor da difusividade térmica entre as pastilhas de mesma composição foi de 2,5% (pastilha de UO₂-3%BeO à temperatura de 100 °C).

Tabela 2 – Difusividade térmica das pastilhas de combustível nuclear a 25 °C e 100 °C.

		Temperatura (°C)	
		25	100
Composição das pastilhas	Nº	Difusividade térmica ($10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	
UO ₂	BE 063	3,09	2,62
	BE 064	3,02	2,64
UO ₂ -2%BeO	BE 066	3,48	2,98
	BE 067	3,47	3,04
UO ₂ -3%BeO	BE 069	3,67	3,24
	BE 070	3,69	3,16

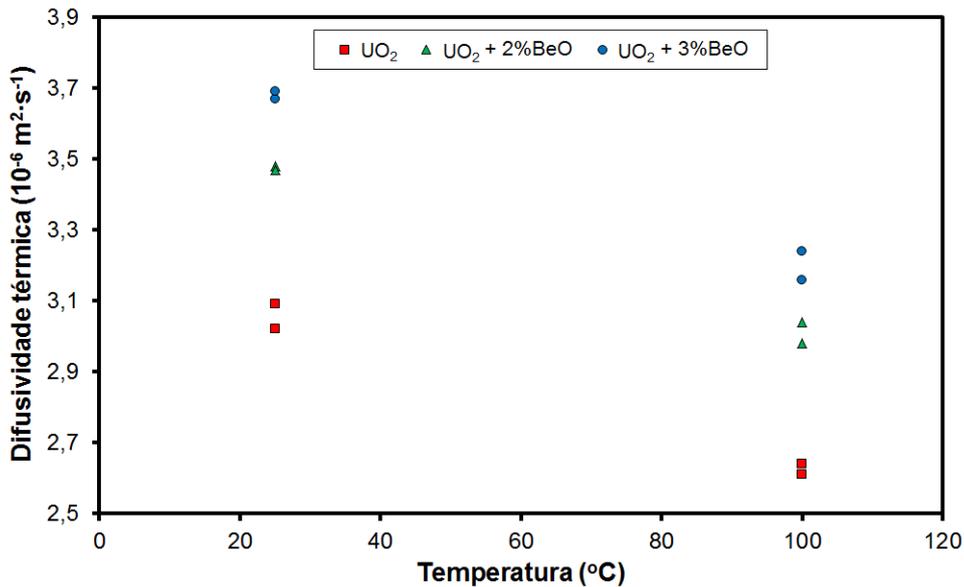


Figura 4 – Difusividade térmica das pastilhas de UO₂ e UO₂-BeO a 25 °C e 100 °C.

Na Tab. 3 são apresentados os valores obtidos para a condutividade térmica e o calor específico das pastilhas nas temperaturas de 25 °C e 100 °C. Na Fig. 5 é apresentado o valor da condutividade térmica em função da temperatura. Verificou-se um aumento no valor da condutividade térmica e do calor específico com o aumento do teor de BeO em comparação com as pastilhas de UO₂. Para as pastilhas contendo 2% e 3% em peso de BeO, o aumento da condutividade térmica é de, respectivamente, 19% e 28% à temperatura de 25 °C e de 20% e 31% à temperatura de 100 °C. Este resultado evidencia que o óxido de berílio é um aditivo potencial a ser utilizado com o combustível nuclear convencional de UO₂, visando o aumento da condutividade térmica. A diferença máxima do valor da condutividade

térmica entre as pastilhas de mesma composição foi de 1,8% (pastilha de UO_2 à temperatura de 25 °C). Os valores obtidos do calor específico apresentaram uma tendência de aumento com o aumento do teor de BeO. As propriedades termofísicas das pastilhas são compatíveis com aquelas determinadas teoricamente da literatura ^(1,6,9).

Tabela 3 – Condutividade térmica e calor específico do UO_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$ a 25 °C e 100 °C.

Composição das pastilhas	Nº	Temperatura (°C)			
		25		100	
		Condutividade térmica ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)	Calor específico ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)	Condutividade térmica ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)	Calor específico ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)
UO_2	BE 063	7,13	224,70	6,87	255,27
	BE 064	7,26	234,20	6,85	252,61
$\text{UO}_2\text{-2\%BeO}$	BE 066	8,50	245,97	8,22	277,89
	BE 067	8,60	249,65	8,21	271,94
$\text{UO}_2\text{-3\%BeO}$	BE 069	9,17	255,87	9,06	286,65
	BE 070	9,29	257,93	8,90	288,57

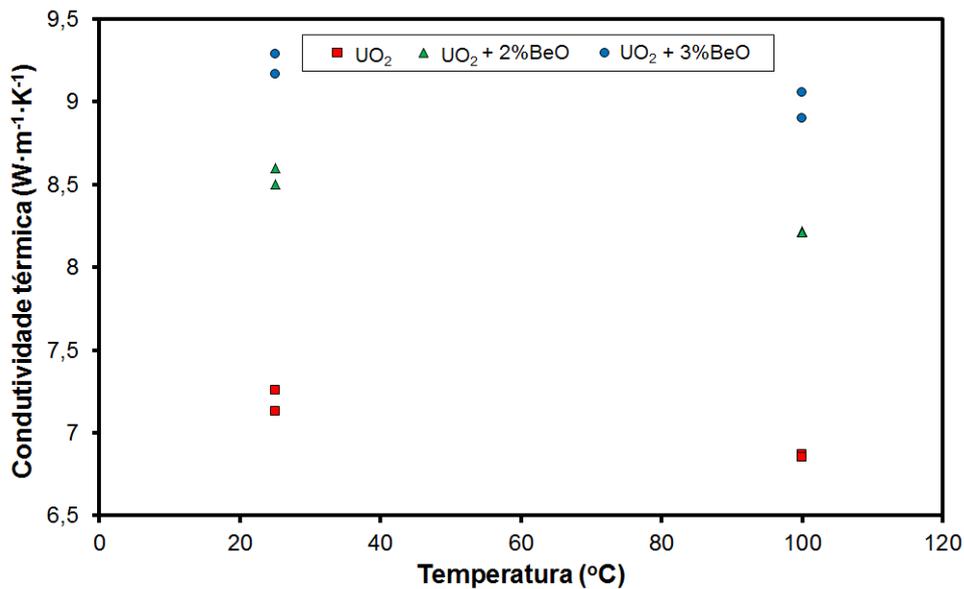


Figura 5 – Condutividade térmica das pastilhas de UO_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$ a 25 °C e 100 °C.

CONCLUSÕES

Pastilhas de UO_2 e $\text{UO}_2\text{-BeO}$ foram obtidas com teores de 2% e 3% em peso de óxido de berílio e com pressão de compactação de 400 MPa.

Foram observados precipitados de BeO dispersos na matriz de UO_2 através da análise microestrutural das amostras, indicando que as fases de UO_2 e BeO estão presentes sem a formação de uma solução sólida.

Um aumento da difusividade térmica e da condutividade térmica foi verificado à medida que se adicionou BeO ao UO_2 . Para as pastilhas contendo 2% e 3% de BeO, o aumento da difusividade térmica foi de 14% a 22%. A condutividade térmica apresentou um aumento de 19% a 31%.

Os resultados obtidos neste trabalho evidenciam que o óxido de berílio é um aditivo potencial a ser utilizado na fabricação do combustível nuclear convencional de UO_2 com objetivo de elevar a condutividade térmica das pastilhas.

AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem o apoio financeiro do CNPq – Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico e Rede GTD SIBRATEC – Rede de Serviços Tecnológicos em Geração, Transmissão e Distribuição de Energia Elétrica.

REFERÊNCIAS

1. KOVALISHINA A. A., PROSYOLKOVA V. N., SIDORENKO V. D., STOGOVB Y. V. On the Possibility of Using Uranium–Beryllium Oxide Fuel in a VVER Reactor. *Phy. At. Nuc.*, v.77, n.14, p.1661-1663, 2014.
2. LI D. S., GARMESTANI H., SCHWARTZ J. Modeling thermal conductivity in UO_2 with BeO additions as a function of microstructure. *J. Nuc. Mat.*, v.392, p.22-27, 2009.
3. ZHOU W., LIU R., REVANKAR S. T. Fabrication methods and thermal hydraulics analysis of enhanced thermal conductivity $\text{UO}_2\text{-BeO}$ fuel in light water reactors. *Ann. Nuc. Energy*, v.81, p.240-248, 2015.
4. SOLOMON A. A., REVANKAR S. T., MCCOY J. K. Enhanced Thermal Conductivity Oxide Fuels. Project Nº. 02-1802005, Award Nº DE-FG07-02SF22613, 2006. Disponível em: <http://www.osti.gov/scitech/servlets/purl/862369-iDA0bl/>. Acesso em 09 de agosto de 2016.

5. IAEA, Thermophysical Properties Database of Materials for Light Water Reactors and Heavy Water Reactors. TECDOC 1496, 2006. Disponível em http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/te_1496_web.pdf. Acesso em 02 de Agosto de 2016.
6. ISHIMOTO S., HIRAI M., ITO K., KOREI Y. Thermal Conductivity of UO₂-BeO Pellet. J. Nuc. Sci. Tech., v.33, n.2, p.134-140, 1996.
7. MCCOY K., MAYS C. Enhanced thermal conductivity oxide nuclear fuels by co-sintering with BeO: II. Fuel performance and neutronics. J. Nuc. Mat., v.375, p.157-167, 2008.
8. KIM S. K., KO W.I., KIM H. D., REVANKAR S. T., ZHOU W., JO D. Cost-benefit analysis of BeO-UO₂ nuclear fuel. J. Nuc. Mat., v.52, p.813-821, 2010.
9. CHANDRAMOULI D., REVANKAR S. T. Development of Thermal Models and Analysis of UO₂-BeO Fuel during a Loss of Coolant Accident. Int. J. Nuc. Energy, v.2014, p.1-9, 2014.
10. FERREIRA R. A. N., CAMARANO D. M., MIRANDA O. Beryllium Project: Development in CDTN of uranium dioxide fuel pellets with addition of beryllium oxide to increase the thermal conductivity. In: International Nuclear Atlantic Conference, Recife, PE, 2013.
11. MAIER G. Dichte und Porositätsmessung nach der Penetrations-Immersions Methode: Überprüfung und Möglichkeiten zur Verbesserung. Erlangen: Kraftwerk Union (Arbeits-Bericht), 1978.
12. FERREIRA R. A. N., LOPES J. A. M. Implementation of a fuel pellets density and open porosity measurement system by the xylol penetration-immersion method at CDTN. In: International Nuclear Atlantic Conference, Santos, SP, 2007.
13. ASTM E1461, 2013, Standard Test Method for Thermal Diffusivity by the Flash Method, ASTM International, West Conshohocken, PA, 2013, DOI: 10.1520/E1461.
14. PARKER W. J., JENKINS R. J., BUTLER C. P., ABBOT G. L. Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity. J. Appl. Phys., v.32, n.9, p.1679-1684, 1961.

INCREASE OF THERMAL CONDUCTIVITY OF URANIUM DIOXIDE NUCLEAR FUEL PELLETS WITH BERYLLIUM OXIDE ADDITION

ABSTRACT

The UO_2 fuel is one of the most used nuclear fuel in thermal reactors and has many advantages such as high melting point, chemical compatibility with cladding, etc. However, its thermal conductivity is relatively low, which leads to a premature degradation of the fuel pellets due to a high radial temperature gradient during reactor operation. An alternative to avoid this problem is to increase the thermal conductivity of the fuel pellets, by adding beryllium oxide (BeO). Pellets of UO_2 and UO_2 -BeO were obtained from a homogenized mixture of powders of UO_2 and BeO, containing 2% and 3% by weight of BeO and sintering at 1750 °C for 3 h under H_2 atmosphere after uniaxial pressing at 400 MPa. The pellet densities were obtained by xylol penetration-immersion method and the thermal diffusivity, specific heat and thermal conductivity were determined according to ASTM E-1461 at room temperature (25 °C) and 100 °C. The thermal diffusivity measurements were carried out employing the laser flash method. The thermal conductivity obtained at 25 °C showed an increase with the addition of 2% and 3% of BeO corresponding to 19% and 28%, respectively. As for the measurements carried out at 100 °C, there was an increase in the thermal conductivity for the same BeO contents of 20% and 31%. These values as a percentage of increased conductivity were obtained in relation to the UO_2 pellets.

Key-words: Beryllium oxide with uranium dioxide, Nuclear Fuel, Thermal diffusivity, Thermal Conductivity.