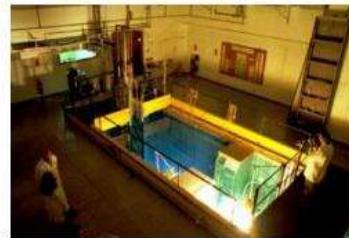




MATERIAIS DE APLICAÇÃO NA ENGENHARIA NUCLEAR



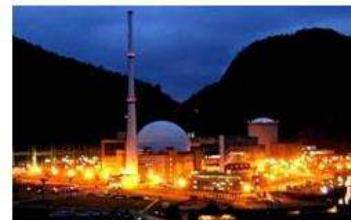
Materiais dos Reatores Nucleares



Profs. Arnaldo Andrade e Raquel Lobo



Ipen



Resistência Mecânica

A resistência mecânica é geralmente expressa como as características de **tensão-deformação** de um material. A irradiação melhora a resistência à tração final do aço estrutural enquanto diminui a tenacidade e a ductilidade. Dependendo do **fluxo de neutrons** e da **temperatura de irradiação**, a recuperação pode ocorrer simultaneamente, o que irá finalmente aliviar algumas das tensões residuais e pode ter um efeito de recozimento no material em questão. O aumento da temperatura e a fluência de neutrons ajudam a recuperar parte da resistência mecânica e dureza perdida devido à irradiação a temperaturas mais baixas. Variantes incomuns também podem ocorrer, tais como o desenvolvimento de um **ponto de escoamento** em materiais que anteriormente não o apresentavam e mudança na **sensibilidade a fatores como a taxa de deformação**.

Ductilidade, Dureza e Fragilização

O endurecimento e a fragilização pela irradiação levam à diminuição da ductilidade. A fragilização de aços expostos à radiação é direta ou indiretamente causada pelos deslocamentos de átomos de suas posições originais devido às colisões por partículas energéticas. Após a colisão, ocorre uma cascata de deslocamento que consiste em diversas vacâncias no meio, cercadas por uma nuvem de átomos intersticiais. A maioria dos defeitos se recombina e participa do processo de dano induzido pela radiação, juntamente com a pequena quantidade restante de alguns defeitos pontuais migrantes. Portanto, é evidente que o dano por radiação de um vaso de pressão do reator, por exemplo, é proporcional ao número de nêutrons que atingem o material com energia suficiente para induzir deslocamento (s) de átomo. Cascatas de deslocamento menores fornecem uma oportunidade mais fraca para a recombinação, portanto, pode-se afirmar que os nêutrons moderados podem ser relativamente mais prejudiciais.

Tenacidade

O efeito combinado de fragilização e diminuição da ductilidade pode finalmente levar à falha por fratura dos componentes primários do reator. A resistência mecânica e ductilidade constituem a tenacidade de um material estrutural e uma alteração na tenacidade do revestimento do combustível e do vaso de pressão causa particularmente vários problemas na operação, desempenho, economia e segurança do reator.

Temperatura de transição dúctil-frágil (DBTT)

Um dos maiores problemas enfrentados com os aços usados em aplicações de reatores é a fragilização induzida por irradiação. O endurecimento do aço devido à irradiação reduz a ductilidade e aumenta a **temperatura de transição dúctil-frágil** em vigor. Após a irradiação, a DBTT aumenta acima da temperatura ambiente e pode ocorrer **fratura frágil** em vez de **fratura dúctil**. O deslocamento da DBTT é um parâmetro crítico particularmente para a segurança de vasos de pressão e pode ser atribuído a **vacâncias, intersticiais, discordâncias** que são formadas pelo deslocamento de átomos de posições de rede para posições intersticiais e átomos de impureza.

Cladding and other in-core structures

Zircaloy é usado para:

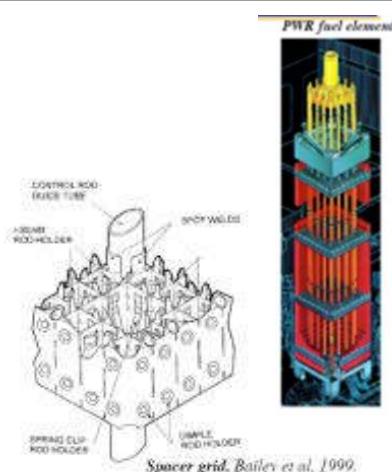
- Encamisante do combustível
- Grade espaçadora, dutos que sustentam o conjunto do combustível (BWR)

Aço inox (stainless steel – SS) é usado para:

- Placa de grade inferior (sustenta conjunto combustível)
- Equipamento principal (vaso, defletor), secador de vapor (BWR), controlador das barras de controle (PWR)

Inconel (alto níquel, Fe, Cr)

- designs especiais de grade
- Tubo –U no gerador de vapor (PWR)



Cladding and other in-core structures

- Early LWR cladding and internals were stainless steel
 - excessive corrosion in 300°C water
 - neutron absorption is too large
- Zirconium alloy (Zry) developed in the 1950s
 - Zry-2: 1.5% Sn, 0.5% Cr, Ni, Fe; balance Zr.
 - Zry-4: no Ni
 - Sn is substitutional
 - Cr, Ni and Fe form intermetallic precipitates ($ZrFe_2$, $ZrCr_2$ and Zr_2Ni)
 - Add strength and corrosion resistance
 - good corrosion resistance in water at 300°C (Corrosion resistance further improved by reducing Sn < 1.0% and adding Nb)
 - low neutron absorption cross section
 - adequate strength to ~ 600°C due to Sn addition
- But:
 - expensive (high cost since no other commercial Zr use + Hf separation)
 - anisotropic (hexagonal close packed structure) properties
 - chemically reactive with H, O and N
 - must be separated from Hf impurity; Hf is a strong neutron absorber

Cladding Performance

- Cladding integrity assures fission product containment
 - Breach of cladding referred to as fuel “failure”
 - Failure generally precludes continued use of fuel element/bundle
- Cladding integrity degrades during irradiation
 - Temperature, pressure and neutron flux cause “creep”
 - High coolant pressure causes creepdown (LWRs)
 - High fission gas release causes outward creep (LMRs)
 - Radiation damage causes swelling (embrittlement)
 - Corrosion by coolant
 - Interaction with fuel

Fuel-Cladding Interaction

- Fuel-Cladding Mechanical Interaction (FCMI)
 - Fuel swelling and/or cladding creepdown closes gap
 - Continued swelling/creep stresses cladding
- Fuel-Cladding Chemical Interaction (FCCI)
 - Once in contact, fuel and cladding can react chemically
 - Reaction often produces a brittle layer that thins the cladding wall
 - As cladding wall thins, cladding stresses increase



PHYSICAL PROPERTIES

Atomic Number	40
Atomic Weight	91,22
Density	6,5 g/cm ³
Elasticity Module	96.000 MPa
Melting Point	1875 °C
Boiling Point	3577 °C
Allotropic Modification	865 °C
Linear Thermal Expansion Coefficient	5,8x10 ⁻⁶ /°C
Specific Heat	0,067 cal /g/ °C
Specific Electrical Resistance	40 μΩ/cm
Macroscopic Cross-Section for Thermal Neutrons	0,0079 cm ⁻¹

Acc. J.H. Schemel "ASTM Manual on Zirconium and Hafnium", ASTM STP 639 (1977) p.4

Zircaloy Composition

Alloy-Element	Zircaloy-2	Zircaloy-4
Tin	1.20 - 1.70	1.20 - 1.70
Iron	0.07 - 0.20	0.18 - 0.24
Chromium	0.05 - 0.15	0.07 - 0.13
Nickel	0.03 - 0.08	-
Fe+Cr+Ni	0.18 - 0.38	-
Fe+Cr		0.28 - 0.37
Oxygen	0.09 - 0.16	0.09 - 0.1
Silicon	0.005-0.012	0.005-0.012

ADVANCED ZR ALLOYS FOR PWR COMMERCIALLY INTRODUCED

FRAMATOME

„M5“: Zr 1 Nb solid tube, with optimized chemical composition and „low temperature“ fabrication process, recrystallized

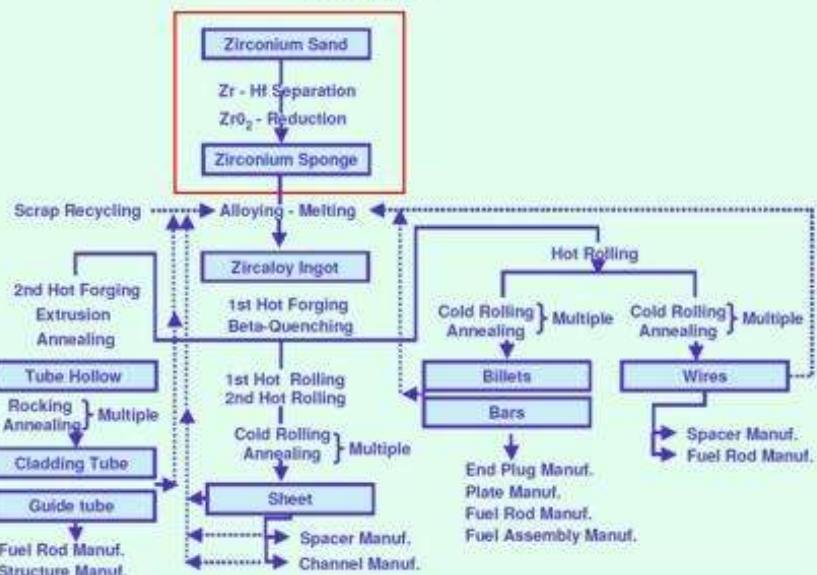
SIEMENS

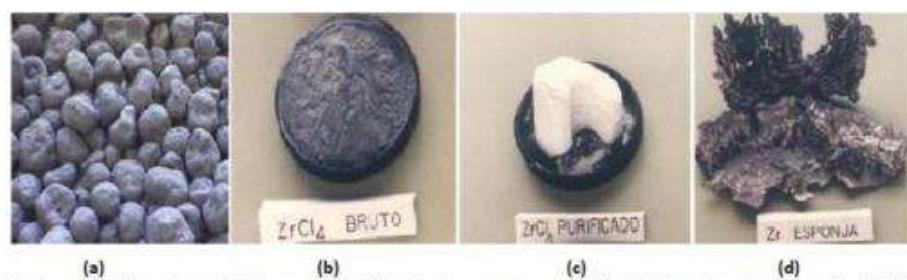
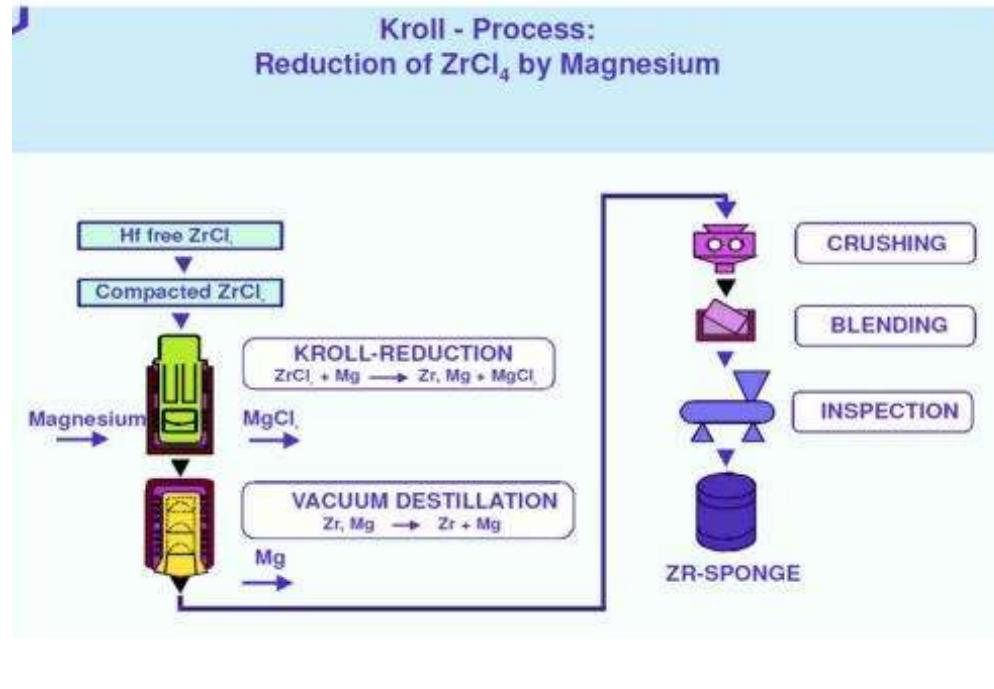
„ELS 0.8 Duplex“: OD-Liner with Zry-4 with 0.8 Sn on standard Zircaloy-4, fabrication similar to optimized Zircaloy-4

WESTINGHOUSE

„ZIRLO™“: Zr1Nb1Sn 0.1Fe solid tube, with special heat treatments

MANUFACTURING ROUTES - WESTERN TECHNOLOGY OVERVIEW





Independentemente do processo de separação de Zr/Hf, o próximo passo na produção comercial de ligas de Zr no Ocidente é a redução de $ZrCl_4$ para Zr metálico.

O processo químico básico é:



Este processo é chamado em homenagem ao seu inventor, o "processo Kroll".

O tetracloreto de Zr já bastante puro é reduzido a Zr metálico usando Mg metálico como redutor. A pureza do Mg é muito importante para não introduzir novas impurezas no Zr metálico.

Este processo termina com um Zr metálico muito poroso, chamado "esponja" de Zr. Grandes pedaços de esponja Zr são esmagados mecanicamente em tamanhos menores.

Além de alguns elementos voláteis como cloro e magnésio, todas as impurezas presentes nesta fase permanecerão com o Zr e, portanto, também terminarão na liga de Zr. As impurezas mais comuns são ferro, nitrogênio, oxigênio e alumínio.

Fusão

A fusão é realizada em um forno a arco a vácuo com eletrodo consumível e um cadrinho de cobre resfriado a água.

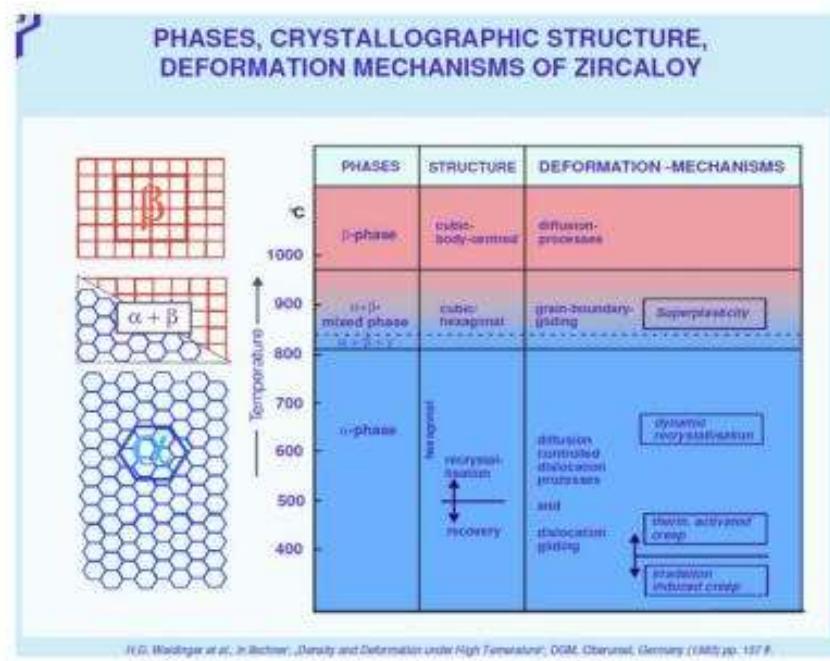
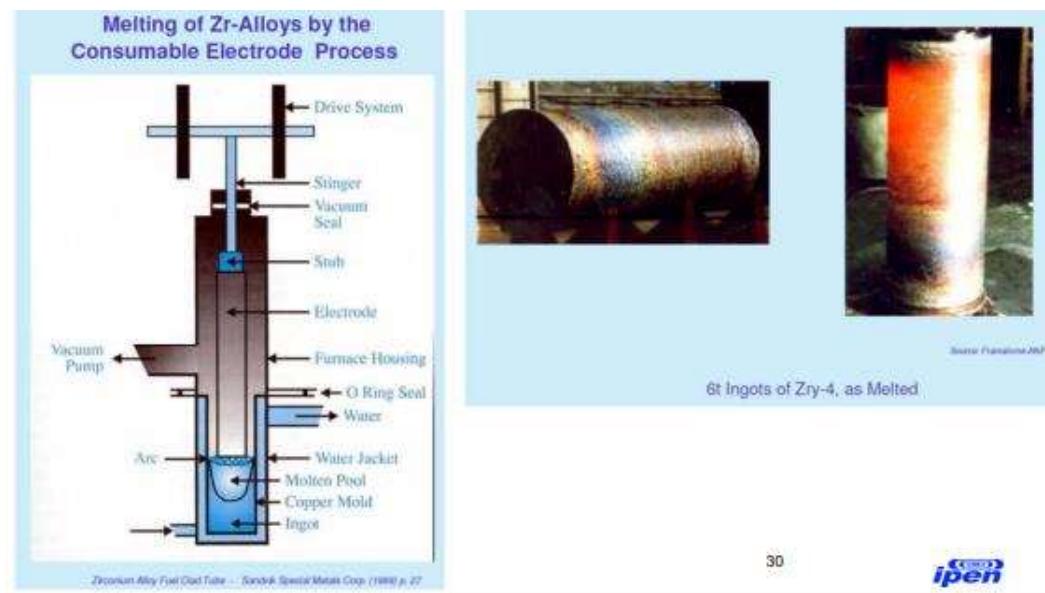
A temperatura de fusão é de 1850 °C.

Um campo magnético rotativo é aplicado à zona fundida para melhor mistura.

Dependendo do cliente, 2 ou 3 passos de fusão são aplicados.

A primeira e segunda fusão ocorre sob vácuo 10^{-2} a 10^{-3} Torr, a terceira fusão ocorre sob vácuo 10^{-4} Torr.

A fusão requer muita experiência prática para minimizar a variação radial e longitudinal dos elementos de liga, uma vez que a solubilidade dos vários elementos é diferente na fase líquida e na fase sólida.



Processo de Têmpera Beta

A têmpera beta é uma das etapas mais importantes do processo de adicionar elementos de liga / fusão até o acabamento do produto final.

Por um lado, essa etapa do processo facilita a "esquecimento" do material da influência de todo o processamento anterior. Por outro lado, ela define as condições iniciais para todos os processos termo-mecânicos subsequentes que agora são mantidos dentro da faixa de temperatura da fase alfa.

A têmpera beta consiste nas seguintes igualmente importantes quatro fases de processo:

1. Aquecimento

por aquecimento induutivo ou por aquecimento por radiação num forno (aquecido eletricamente)

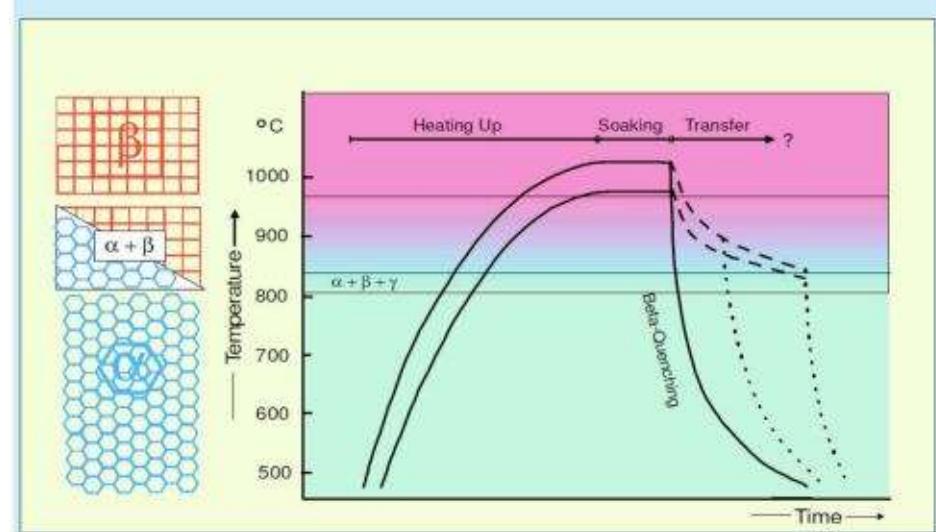
2. Recozimento (Imersão) na faixa de temperatura da fase beta (<1050 ° C)

3. Transferência do equipamento de aquecimento (forno elétrico, aquecimento por indução, etc.) para a instalação de têmpera (banho de água)

4. Têmpera, isto é, o material é resfriado rapidamente do intervalo de temperatura da fase beta para o intervalo de temperatura da fase alfa (temperatura ambiente).



KEY PROCESSES
„BETA -QUENCHING“



Deformação a Quente - Têmpera Beta

O lingote final fundido tem uma estrutura bruta a ser deformada e também deve ser reduzido a dimensões menores passo a passo.

Para este propósito várias deformações a quentes são necessárias. No Ocidente, substituídas por modernas etapas de pré-forjamento a quente de alta eficiência.

Esses processos reduzem o diâmetro externo original do lingote de ~ 630 mm para ~ 180 mm no final.

A **têmpera beta** é um passo essencial para toda a produção de material da Zircaloy. Pode ser realizado antes do **forjamento-alfa** ou antes da **extrusão a quente**.

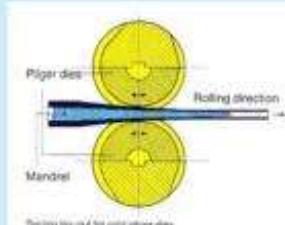
Para material tubular, é adicionado um processo de extrusão a quente: depois de usinar os lingotes deformados a quente em tarugos com furos.

Com este processo são fabricados **tubos-mãe** que são o produto inicial para os processos de deformação a frio que terminam como **tubos de revestimento** ou **tubos-guia** para combustível nuclear.

34



Cold Deformation Pilgering



During the cold pilger-rolling process, the tube is reduced both in diameter and in wall thickness by means of two contiguous grooved rolls mounted one on top of the other which pass it over a conical mandrel.

Source: Framatome ANP/NRC

Cold Deformation I

From Tube Hollow to Final Tubes:

FR cladding tubes,
Structural tubes, like guide tubes (PWR fuel) or water rods (BWR fuel)

For fabricating cladding tubes

today starting dimensions of 80 to 85 mm O.D. are used and
the cold deformation (i.e. rocking = pilgering) occurs in four steps
from tube hollow to final cladding tube.

Important parameters for these cold deformation steps are

- the degree of cold work and
- the "q-factor": Δ wall-thickness : Δ O.D.

After each cold deformation step

an intermediate annealing is necessary to recrystallize the material that became very hard and brittle during the cold deformation.

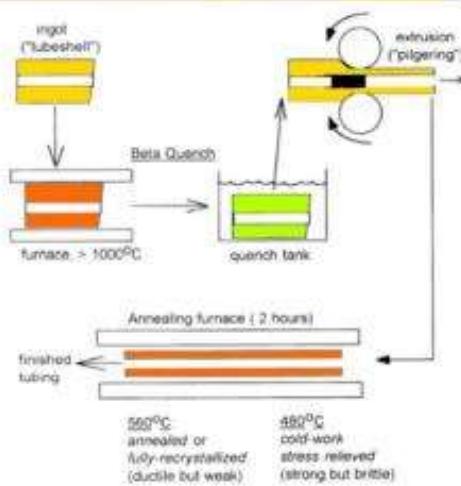
Normally an annealing procedure at ~750 °C/2h is used.

Final fabrication steps are:

- final annealing
- finishing

Zircaloy tube fabrication process

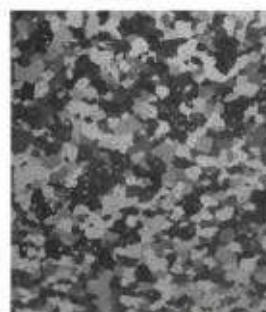
- Produce "sponge" Zr
- Alloying (Sn, Cr, Fe, ...) & forging ingots, drilling central holes
- Beta quenching & machining to form "tubeshell"
- Beta-quench as-received tubeshell
- Repeated pilgering to reduce tube diameter and wall thickness
- Final anneal



Zircaloy tube fabrication process

Zircaloy following 2 hour furnace anneal

1000x

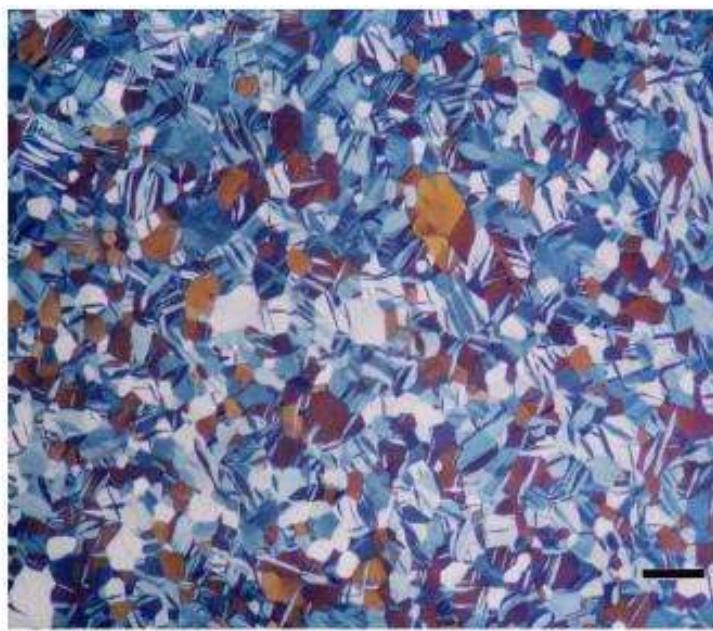


580°C: annealed, fully re-crystallized. Ductile, but not strong.

1000x

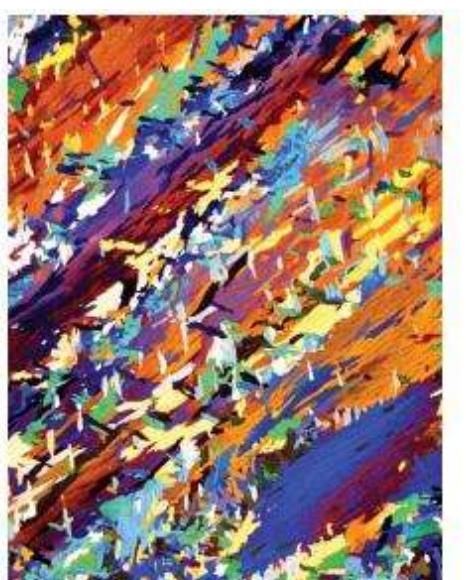


480°C: cold-worked, stress relieved. Strong, but not ductile.



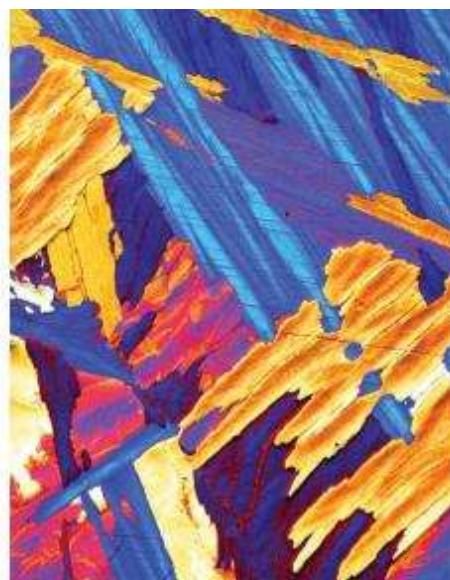
©ASM International®
rf0053

100 μm



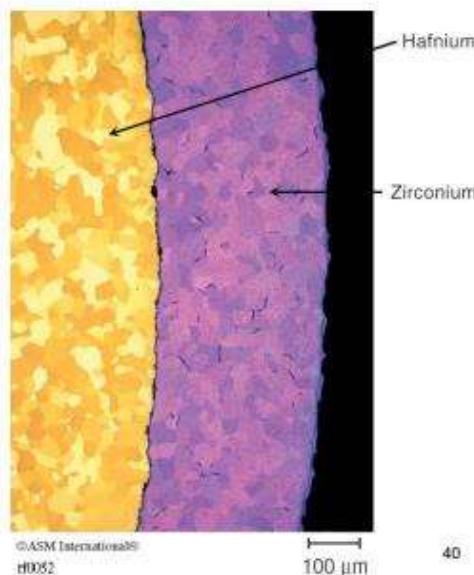
©ASM International®
rf0014

100 μm



©ASM International®
rf0008

200 μm



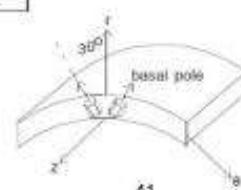
Zircaloy texture

- Structural metals are polycrystalline, containing many small (few μm) grains (*individual crystals with a characteristic lattice structure*)
- Depending on lattice structure, material may be *isotropic* (fcc) or *anisotropic* (hcp, Zry)
- Physical (thermal conductivity) and mechanical (strength, ductility) are directionally-dependent in anisotropic single crystals
- Whether single crystal anisotropy persists in a polycrystalline structural component depends on the fabrication process

Grain orientation during processing

Crystal structure	Random	Oriented
Isotropic	no	No
Anisotropic	no	yes

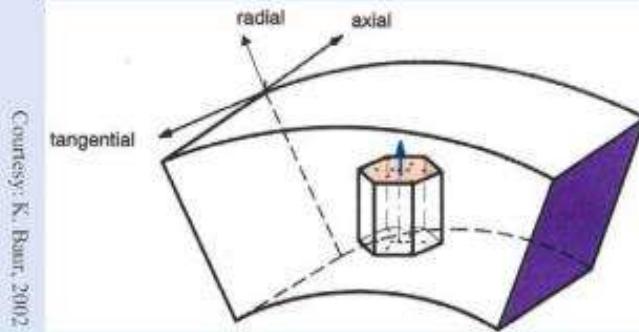
- Zircaloy fabricated by “pilgering” has texture - basal poles point:
 - $\sim 30^\circ$ from radial direction (r)
 - $\sim 60^\circ$ from the azimuthal direction (θ)
 - $\sim 90^\circ$ from the axial direction (z)



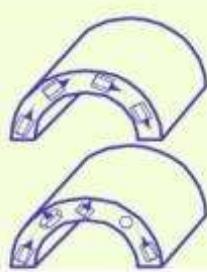
41

Cladding – Resulting Texture

Radial orientation of c-axis due to high reduction in diameter (beneficial for later hydride precipitation):

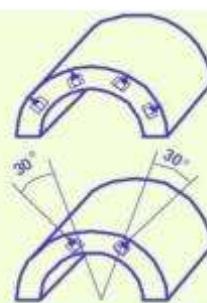


CRYSTAL TEXTURE IN ZR ALLOY CLADDING TUBES



Circumferential
Texture of basal poles

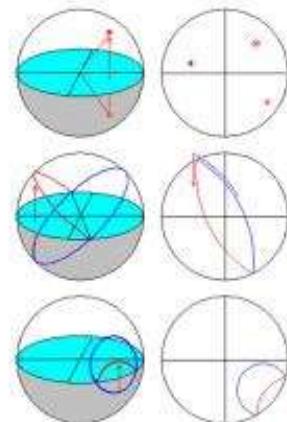
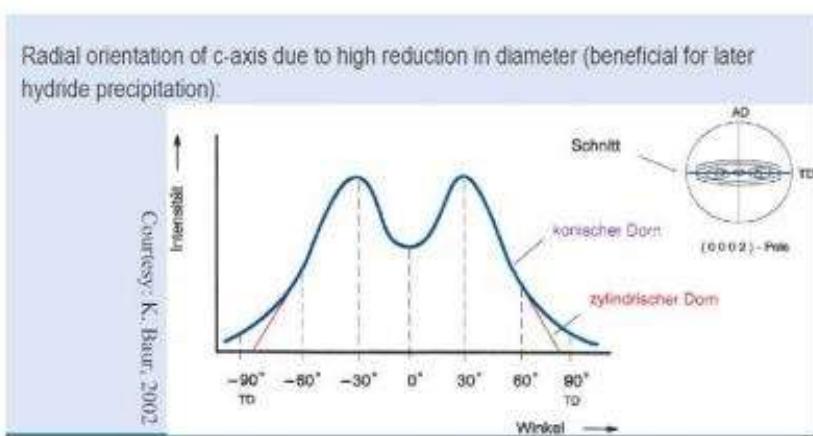
Random Texture
of basal poles



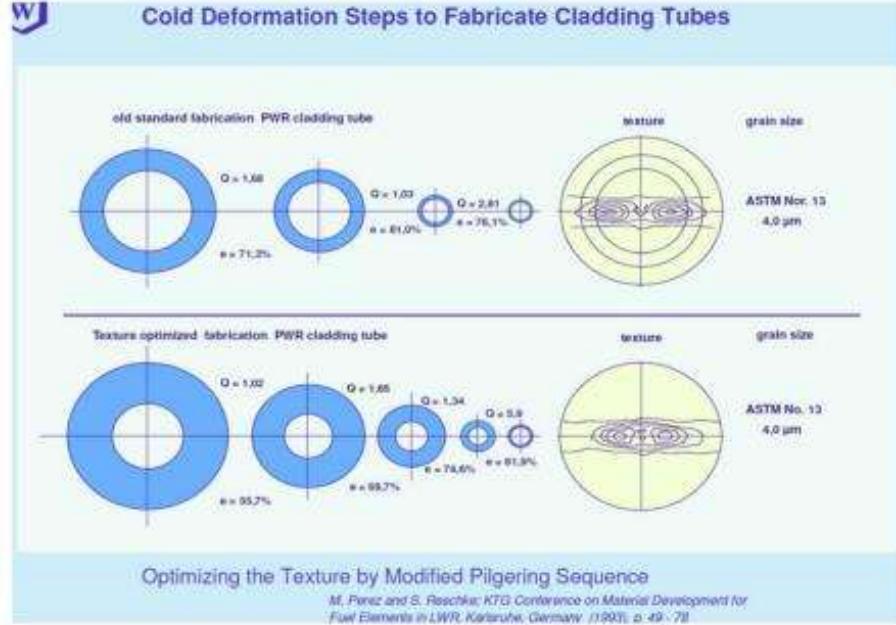
Radial Texture
of basal poles

Usual Texture
of basal poles
in cladding tube

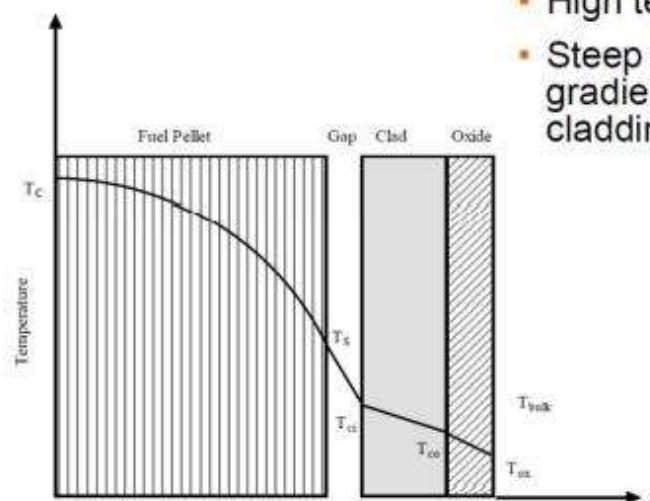
Cladding – Resulting Texture



Cold Deformation Steps to Fabricate Cladding Tubes

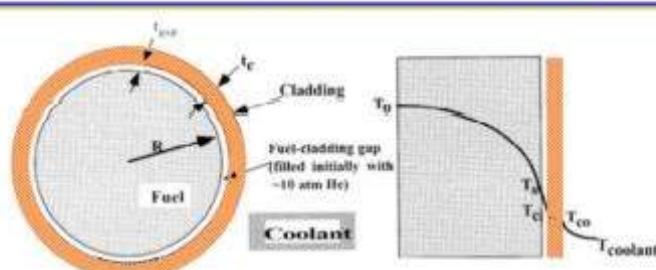


Typical Temperature Distribution



- High temperatures in fuel
- Steep temperature gradients in fuel and cladding

Temperature distribution in a fuel pin



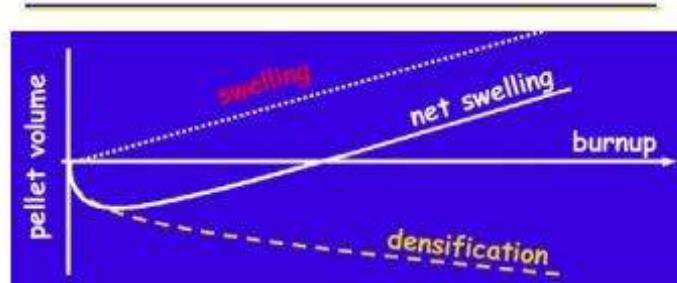
Fuel and Cladding Thermal Properties

Material	Density ρ (g/cm ³)	Heat capacity C_p (J/g-K)	Thermal conductivity k (W/cm-K)	Thermal expansion α (K ⁻¹)
UO_2	10.98	0.33	0.03	1.2×10^{-5}
Zry	6.5	0.35	0.17*	6.5×10^{-6} (r) 5.6×10^{-6} (r) 10.4×10^{-6} (z) 9.6×10^{-6}
s.s.	8.0	0.5	0.17	



Interação Pastilha-Revestimento (Pellet-Cladding Interaction – PCI)

Interação Combustível-Revestimento



Densification as pores in fuel sinter
Swelling due to solid and gaseous fission products
Xe and Krypton insoluble in UO_2

Interação Combustível-Revestimento (PCI)

Interação Mecânica Combustível-Encamisante (Fuel-Cladding Mechanical Interaction – FCMI)

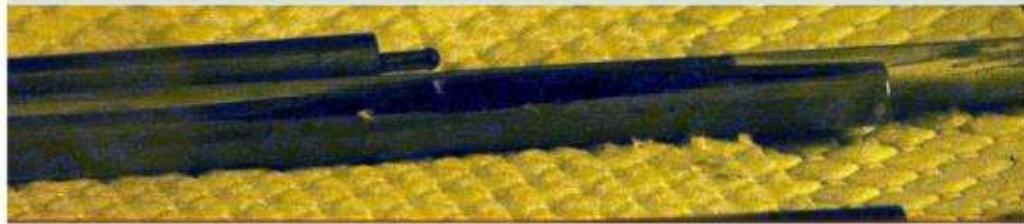
- Inchaço do combustível e/ou contração por fluência do encamisante fecha o "gap"
- O progresso do inchaço/fluência sobrecarrega o encamisante

Interação Química Combustível-Encamisante (Fuel-Cladding Chemical Interaction – FCCI)

- Uma vez em contato, o combustível e o encamisante podem reagir quimicamente
- A reação produz frequentemente uma camada frágil que reduz a parede do encamisante
- Conforme a parede do encamisante fica mais fina, as tensões nele aumentam

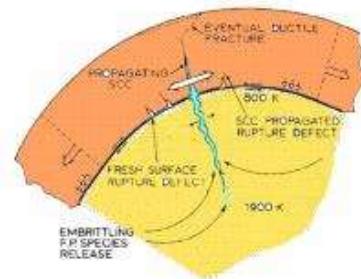
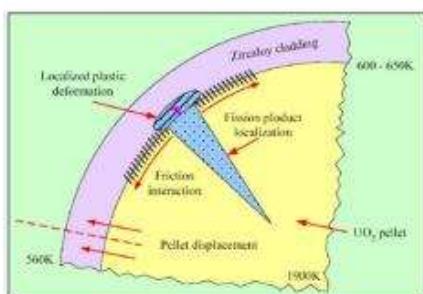
PCMI

radial expansion of pellets might lead to long axial cracks



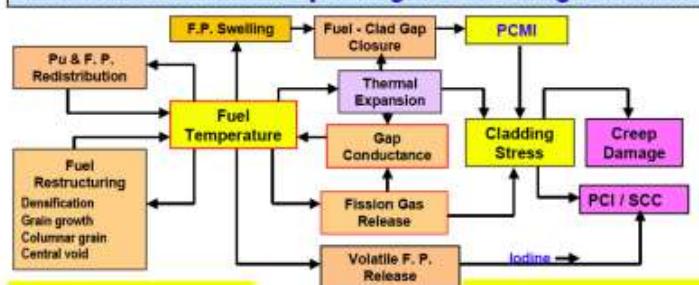
Interação Pastilha-Revestimento

PCI: Stress concentrations at cracks



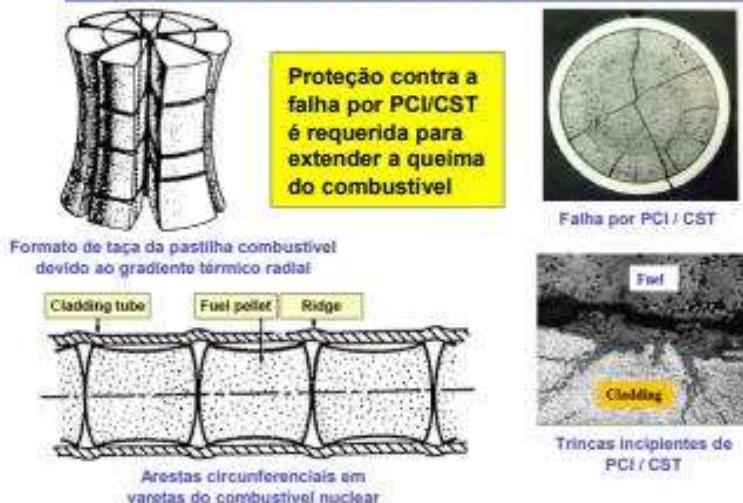
Ambiente do Combustível

Interactive Phenomena Operating in Fuel during Irradiation



*Resposta do Combustível à Irradiação
(extensão da vida útil)*

Interação Pastilha Revestimento em Queima Elevada



Fuel and Cladding Performance

Table I.2 lists the causes of failed fuel elements identified in both BWRs and PWRs over a four-year period. Even though PWRs in the U. S. produce only twice as much power as BWRs, they discharge eight times as many failed fuel elements. Fretting failures at spacer grids dominate the tabulation for both reactor types. The large number of fretting failures due to grid-to-rod flow-induced vibration dominates the PWR failure causes. This particular type of failure is not observed in BWRs, although debris-induced fretting is the principal source of flaw production in this reactor type.

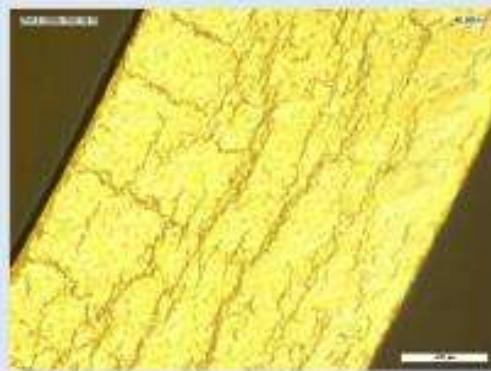
Pellet-cladding interaction is a failure mode unique to BWRs. After a year or so of operation, the fuel swollen by fission products contacts the cladding, resulting in significant tensile stress in the metal. Zircaloy is sufficiently brittle to support cracks that grow radially outward under the combined influence of the stress and the chemical action of certain fission products (I, Cd) at the tip of the crack. The crack eventually penetrates the cladding wall, thereby breaching the fuel rod.

Table I.2 Failed fuel rods in U. S. LWRs 1994 – 1997 (Courtesy O. Ozer, EPRI)

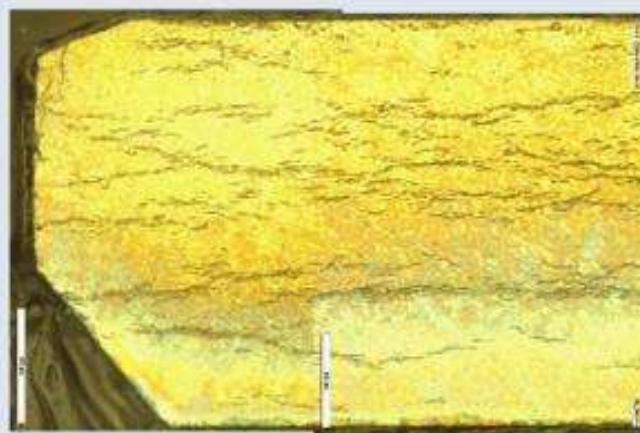
Reactor Type	Cause of fuel rod failure	Number In 4 years
PWR	Handling	4
	Grid-to-rod fretting (debris)	32
	Grid-to-rod fretting (flow-induced vibration)	270
	Corrosion	15
	Fabrication	26
	Unknown	81
	Total	428
BWR	Grid-to-rod fretting (debris)	13
	Corrosion	6
	Fabrication	3
	Pellet-cladding interaction	6
	Unknown	22
	Total	50

Evaluation by metallography and FEM

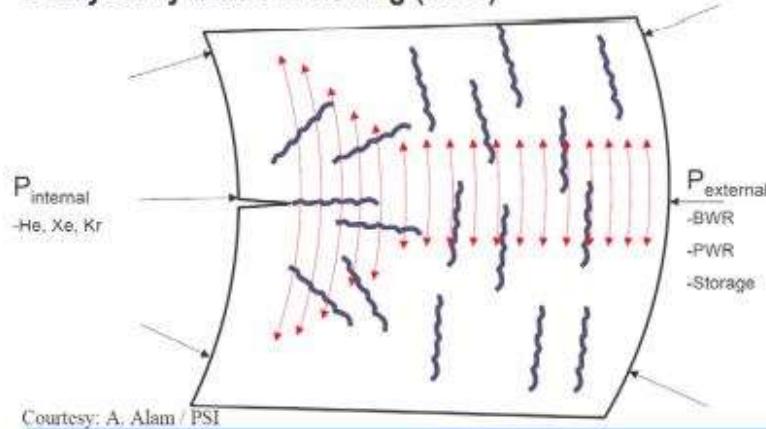
Metallographic cross section: sample position with higher tensile stress at the inside and lower tensile stress at the outside due to a bending moment.



„Normal“ hydride distribution due to texture



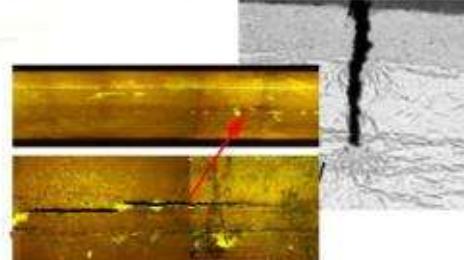
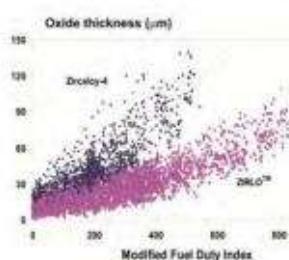
Delayed Hydrides Cracking (DHC)



Dalton Nuclear Institute

High burnup fuel assemblies

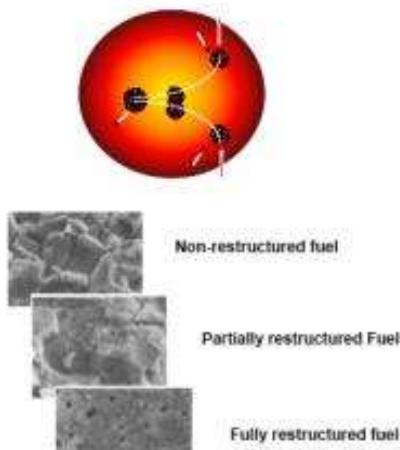
- Corrosion performance of Zr cladding
- Hydrogen pick up
- Delayed Hydride Cracking
- Pellet Cladding Interaction
- Irradiation induced Growth and Creep



knowledgegement: Westinghouse and Studsvik Nuclear

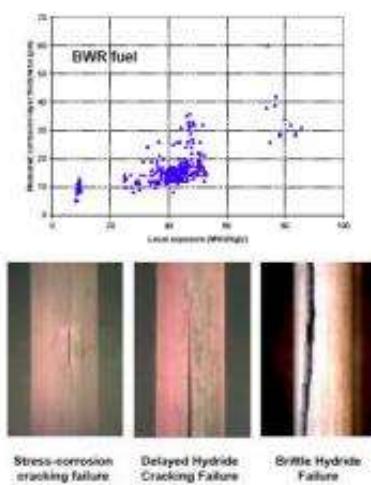
Preuss

Challenges for Materials at High Burnup... Fuel



- Typical fission rate in a UO₂ grain:
10 $\mu\text{m}^4\text{s}^{-1}$... 10⁹ μm^{-3} in 3 years
(cf. ~7. 10¹⁰ atoms in UO₂)
- The 2 fission products (~70, 100MeV) cause ~10⁵ displacements over ~8 μm
→ ~1 dpa/day
- At "end of life" (EOL) each atom has been displaced a few thousand times!
- Thermo-mechanical characteristics of fuel affected quite drastically,
e.g. so-called high burnup structure affects fission gas release

Challenges for Materials at High Burnup... Cladding



- Chemical reactions at cladding outer surface accelerated at high burnup, e.g.
 - Oxide layer thickness grows to increase corrosion rate
 - Cladding oxidation liberates H₂ from H₂O, fraction picked up by Zr, precipitates into hydrides → failure probability enhanced
- Other physical-chemical processes as well
 - Stress-corrosion cracking, controlled by iodine release at inner surface due to pellet thermal expansion
 - Zr-iodides formed aggressive enough to cause cracking

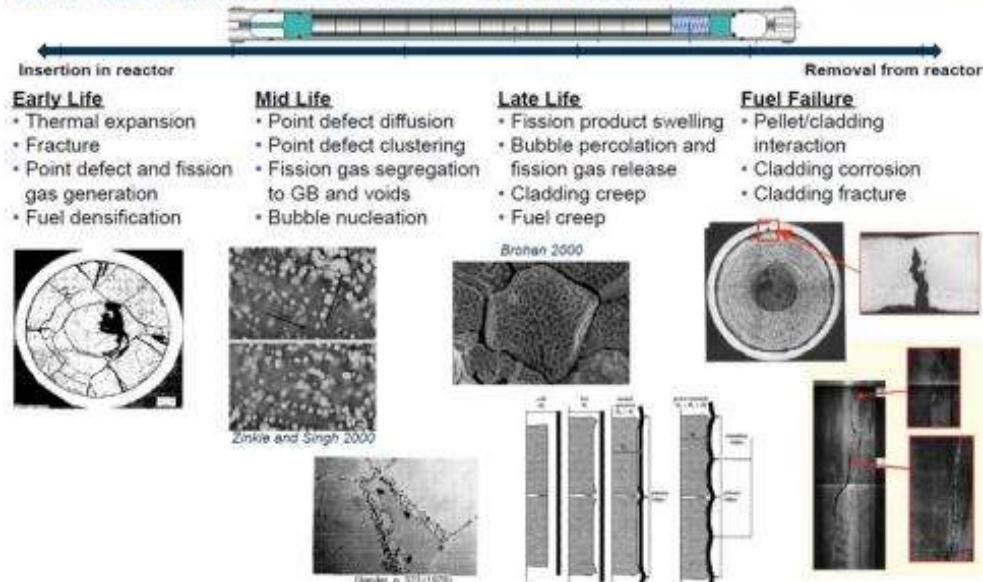
Desempenho do Revestimento (Cladding)

- Cladding integrity assures fission product containment
- Breach of cladding referred to as fuel "failure"
- Failure generally precludes continued use of fuel element/bundle
- Cladding integrity degrades during irradiation
 - Temperature, pressure and neutron flux cause "creep"
 - High coolant pressure causes creepdown (LWRs)
 - High fission gas release causes outward creep (LMRs)
 - Radiation damage causes swelling (embrittlement)
 - Corrosion by coolant
 - Interaction with fuel

Fenômenos Limitantes da Vida

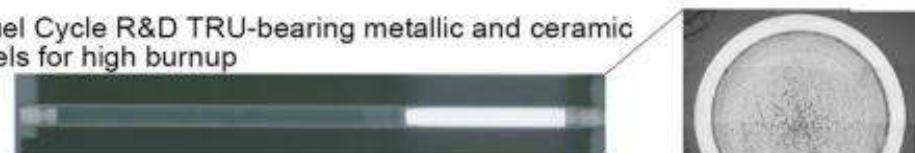
- Cladding breach ends a fuel element's use
- Cladding breach occurs due to:
 - Embrittlement of zirconium cladding due to corrosion/hydriding by water coolant and stresses induced by FCMI (LWRs) → motivates development of corrosion-resistant cladding alloys
 - Creep rupture of cladding due to fission gas pressurization, accelerated by cladding thinning due to FCCI (LMRs) → motivates development of creep-resistant cladding alloys
- Burnup limit set to preclude cladding breach during irradiation

Microstructure Evolution in LWR Fuel

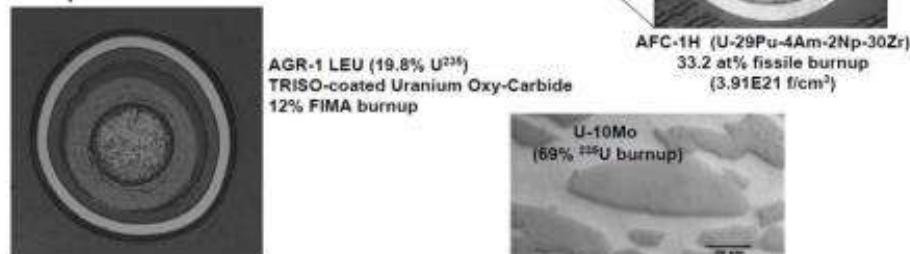


Current Fuel Development Efforts

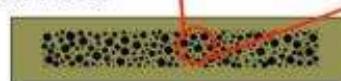
- Fuel Cycle R&D TRU-bearing metallic and ceramic fuels for high burnup



- High Temperature Gas Reactor TRISO Fuels



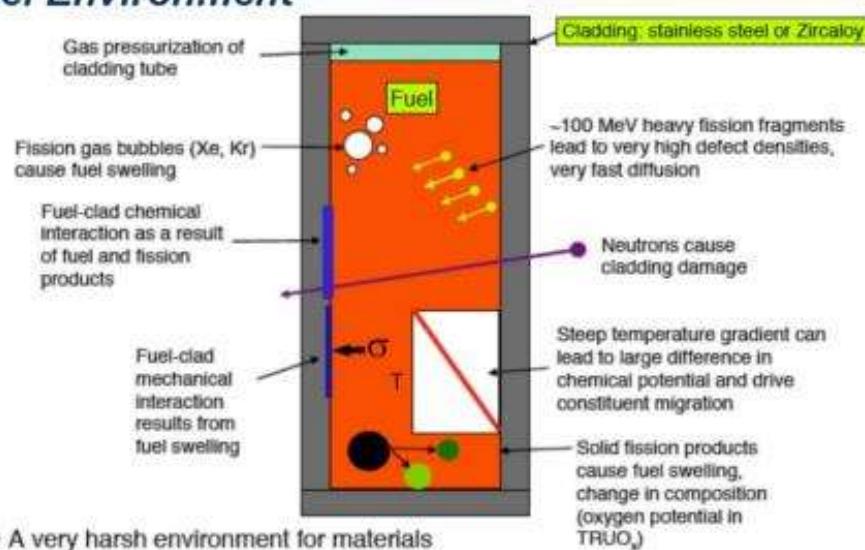
- Reduced Enrichment Dispersion Fuels



Fuel Assembly Performance

- Design Functions
 - Provide support and protection for the fuel-pin bundle and other components of the subassembly
 - Provide a controlled path for the primary coolant
 - Provide a compact structural unit that can be easily moved in and out of the core by a refueling machine
 - Interact with adjacent subassemblies, retaining ring, and core support plates in a manner that assures safe and predictable reactor geometry
- Design Issues
 - Swelling, creep, fatigue, toughness
 - Reduced limits for elements

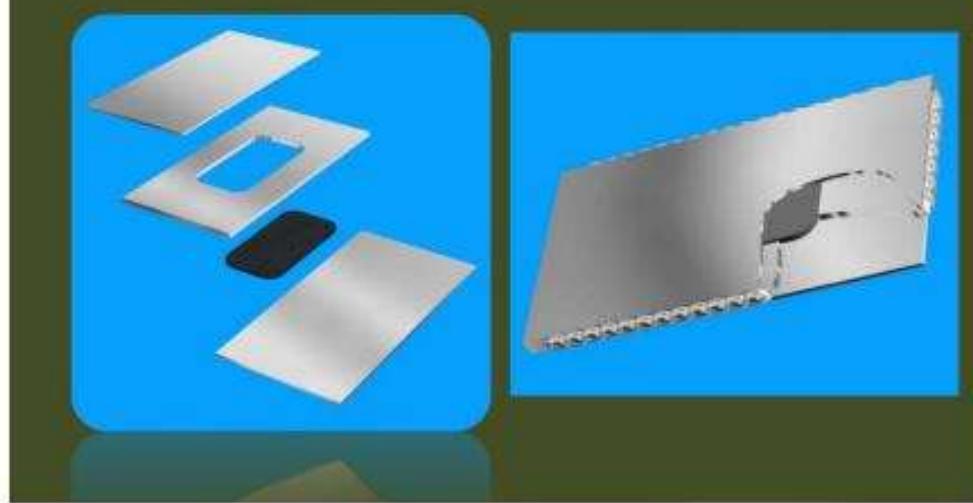
Fuel Environment



Combustível MTR



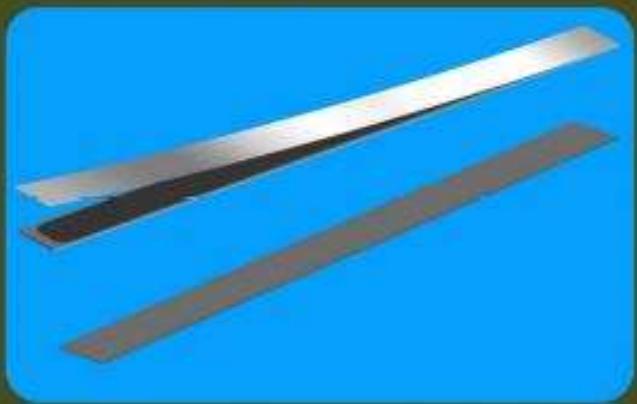
O COMBUSTÍVEL A BASE DE DISPERSÃO – TIPO MTR



O Combustível a Base de Dispersion – Tipo MTR

Formado pela montagem de Placas Combustíveis paralelas, fabricadas segundo a técnica do sanduíche

(Picture Frame Technique)



12

Laminação a Quente





Operação de Cravamento



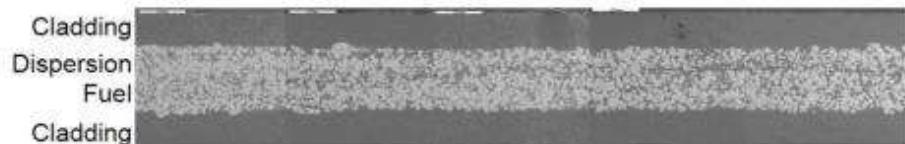
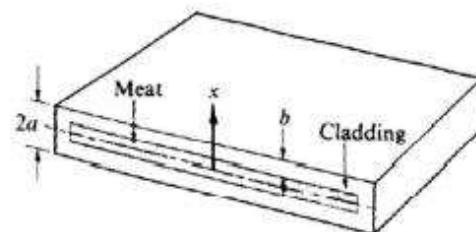
Controle Dimensional

Radiografia



Plate Fuel

- Research and test reactors (ATR, HFIR)
- Dispersion fuels (i.e., fuel particles in metal matrix)
- Solid fuel foils
- No plenum



O COMBUSTÍVEL À BASE DE DISPERÇÃO - TIPO MTR

Formado pela montagem de Placas Combustíveis paralelas, fabricadas segundo a técnica do sanduíche (Picture Frame Technique)



Os Elementos Combustíveis da Dispersão Fabricados no Brasil

Elemento Combustível Padrão – U_3O_8 com $1,9 \text{ gU/cm}^3$

Elemento Combustível Padrão – U_3O_8 com $2,3 \text{ gU/cm}^3$

Elemento Combustível de Controle – U_3O_8 com $2,3 \text{ gU/cm}^3$

Elemento Combustível Padrão – U_3Si_2 com $3,0 \text{ gU/cm}^3$

Desenvolvimento Tecnológico [U_3Si_2]

- 1- Com base na experiência adquirida na produção de miniplacas de dispersão U_3Si_2/Al com $4,8 \text{ gU/cm}^3$, planeja-se fabricar um EC parcial com 2 placas combustíveis de tamanho natural contendo alta concentração de urânio ($4,8 \text{ gU/cm}^3$) usando U_3Si_2 ;
- 2- Irradiação no reator IEA-R1 das miniplacas de dispersão U_3Si_2/Al com $4,8 \text{ gU/cm}^3$, usando o sistema de irradiação desenvolvido no projeto BRA/4/047;



Armazenamento temporário do Combustível Queimado



92

DEPÓSITOS INICIAIS DE BAIXA E MÉDIA ATIVIDADE DA CENTRAL DE ANGRA DOS REIS

ANGRA 1

CAPACIDADE: 8285 VOLUMES

OCUPAÇÃO: 6902 VOLUMES

ANGRA 2

CAPACIDADE: 1644 VOLUMES

OCUPAÇÃO: 111 VOLUMES



Planos futuros: 2 novos depósitos em construção c/ capacidade para 8698 volumes.

GERÊNCIA DE REJEITOS DE ALTA ATIVIDADE No Brasil...

Depósito inicial em "piscina"
isolado do ambiente externo,
situada no interior da unidade

