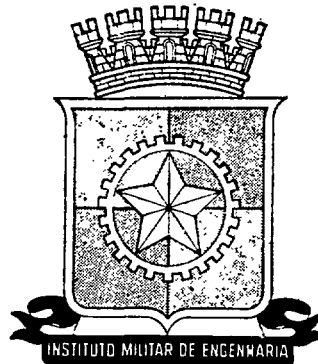


87701164

INIS-nf--4006

**IME**



ASPECTOS E APLICAÇÃO DA TÉCNICA ETCH-PIT  
NA DETECÇÃO DA DISTRIBUIÇÃO  
DE URÂNIO EM SÓLIDOS

POR

Ivanor Antonio Sachett

INSTITUTO MILITAR DE ENGENHARIA

PRAÇA GEN. TIBÚRCIO PRAJA VERMELHA ZC 82  
RIO DE JANEIRO GUANABARA  
BRASIL

**INSTITUTO MILITAR DE ENGENHARIA**

**ASPECTOS E APLICAÇÃO DA TÉCNICA  
ETCH-PIT NA DETECÇÃO DA DISTRIBUIÇÃO  
DE URÂNIO EM SÓLIDOS**

**POR**

**Ivanor Antonio Sachett**

**TESE SUBMETIDA  
COMO REQUISITO PARCIAL  
PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE**

**MESTRE EM CIÊNCIAS**

**Assinatura do Orientador da Tese**

*Andres Sy Ong*  
**ANDRES SY ONG**

**Rio, abril de 1973**

A meus pais  
Aos amigos  
Severino e Yara

## AGRADECIMENTO

O Autor externa sua gratidão ao amigo e colega Dr. Andres Sy Ong pela orientação efetiva, sem a qual este trabalho não teria alcançado conclusão.

Agradece também ao M. Sc. Luiz O. B. Aghina, Chefe da Divisão de Projetos do IEN, pelo fornecimento das amostras, ao M. Sc. Roberto Stasiulevicius, Chefe do Laboratório de Neutrônica do IEN, pelo auxílio prestado e a Luiz A. B. França, operador do Reator Argonauta do IEN, pela irradiação das amostras.

O agradecimento é estendido ao Instituto Militar de Engenharia, em especial à Seção de Energia Nuclear, onde este trabalho foi realizado, e ao Centro de Pesquisas de Materiais, pela contínua colaboração prestada.

Expressa também seu reconhecimento ao Conselho Nacional de Pesquisa pela subvenção deste trabalho, e à Comissão Nacional de Energia Nuclear pela concessão de bolsa de estudo durante o Curso e publicação deste trabalho.

## SUMÁRIO

Este trabalho tem por objetivo apresentar aspectos relativos ao emprego de lâminas padronizadas de vidro para microscópio como detectores de traços do estado sólido, bem como apresentar algumas medidas de distribuição de urânio em sólidos.

Inicialmente, são apresentados estudos sobre os parâmetros relacionados às propriedades do detector utilizado e os resultados da medida dos mesmos que se necessita conhecer para medir-se a distribuição do urânio nas amostras estudadas.

A seguir, relatam-se os resultados obtidos na determinação da distribuição do urânio em amostra de elementos combustíveis do reator de pesquisa Argonauta do Instituto de Engenharia Nuclear - Rio de Janeiro, mais especificamente da interface revestimento-massa combustível.

Finalmente, alguns dados relativos ao grau de contaminação, pelo urânio, dos materiais de uso corrente durante os trabalhos de laboratório, são apresentados.

## ABSTRACT

The purpose of this work is to present some aspects related to the use of standard glass microscope slide as solid state track detector, as well as studies of measurement of distribution of uranium in various solids determined by means of this technique.

First part treats the behaviors of the various parameters related to the properties of the detector and the results of the measurements of the same.

The second part includes results obtained on the determination of distribution of uranium in samples of fuel elements of the "ARGONAUT" research reactor of Instituto de Engenharia Nuclear - Rio de Janeiro. The samples were taken from the fuel-cladding interface.

In the last part is presented some data on levels of contamination of the laboratory equipment in use by uranium during the course of this work.

## LISTA DE FIGURAS

1	Defeitos na superfície do vidro revelados após ataque com HF 10,94%	5
2	Pastilha de elemento combustível do Reator Argonauta	7
3	Esquema do equipamento usado na eletrodeposição de filmes sobre placas planas circulares de alumínio	8
4	Reticulado da Câmara de Levy nos aumentos de 50X, 100X, 200X e 500X, respectivamente	10
5	Variação da densidade superficial de traços com o tempo de ataque	12
6	Distribuição superficial de traços sem a ocorrência de superposição. Tempo de ataque de 300 segundos, aumento de 200X	13
7	Distribuição superficial de traços no caso de superposição generalizada. Tempo de ataque de 230 segundos, aumento de 500X	13
8	Geometria de traços com $V_t$ constante, o ângulo do cone é $\text{sen } V_g/V_t$	16
9	Velocidade de ataque do ácido fluorídrico à superfície do vidro, $V_g$ equivalente a $\text{tg}\alpha$	17
10	Variação do diâmetro do traço com o tempo de ataque	19
11	Traços de fragmentos de fissão utilizados para estudo de diâmetro. Tempo de ataque de 1.300 segundos, aumento de 500X	20
12	Velocidade de remoção de material ao longo do traço	21
13	Variação do ângulo crítico com o tempo de ataque	22
14	Distribuição superficial de traços obtida pela irradiação de um monocristal de $\text{UO}_2$ , aumento de 500X, tempo de ataque de 200 segundos	23
15	Distribuição superficial de traços obtida pela irradiação de um filme de nitrato de urânio	26
16	Distribuição superficial de traços obtida pela irradiação de um monocristal natural $\text{UO}_2$	26
17	Perfil parcial do revestimento de uma pastilha de elemento combustível do Reator Argonauta. Aumento de 50X	28

18 Perfil parcial de traços do filme de $U_3O_8$ que permaneceu aderido ao revestimento visto na Figura anterior. Aumento de 50X	28
19 Perfil parcial do revestimento de alumínio de uma pastilha de elemento combustível. Aumento de 200X	30
20 Perfil de traços correspondente ao filme de $U_3O_8$ que permaneceu aderido ao revestimento visto na Figura 19	30
21 Revestimento de alumínio contendo, aderida, uma espessa camada de massa combustível	31
22 Perfil de traços da camada de massa combustível vista na Figura anterior	32
23 Traços obtidos pela irradiação de uma amostra contendo óleo contaminado com $U_{235}$ . Aumento de 200X	34
24 Variação do tamanho do traço, devido à não homogeneidade das propriedades do vidro. Aumento de 50X	34
25 Traços provenientes do urânio residual à descontaminação do revestimento de alumínio. Aumento de 200X	36
26 Superfície do revestimento de alumínio contaminado. Aumento de 200X	36



## INDICE

	página
<b>Sumário</b>	<b>iii</b>
<b>Lista de Figuras</b>	<b>v</b>
<b>I - INTRODUÇÃO</b>	<b>1</b>
1.1 - Resumo e Objetivo	1
1.2 - Revisão de Literatura	2
<b>II - PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL</b>	<b>4</b>
2.1 - Preparação e Revelação do Detector	4
2.2 - Preparação das Amostras	5
2.2.1 - Elemento Combustível	5
2.2.2 - Monocristal Natural de Dióxido de Urânio	8
2.2.3 - Filmes de Nitrato de Uranila	8
2.2.4 - Materiais Contaminados de Uso Corrente em Laboratório	9
2.3 - Levantamento de Dados	9
2.3.1 - Determinação do Tempo Ótico de Revelação dos Traços	11
<b>III - RESULTADOS E DISCUSSÕES</b>	<b>14</b>
3.1 - Medida de Concentração de Urânio nas Amostras	14
3.1.1 - Método Indireto	15

3.1.2 - Método Direto	20
3.1.2.1 - Caso $\delta > R$	20
3.1.1.2 - Caso $\delta < R$	24
3.2 - Estudos de Perfis	27
3.3 - Estudo de Contaminação	33
3.3.1 - Pós Residuais	33
3.3.2 - Lixas	33
3.3.3 - Revestimento de Alumínio	35
IV - CONCLUSÃO	37
V - LISTA DE REFERÊNCIAS	38
VI - ANEXOS	41
6.1 - Seção de Choque de Fissão para Neutrons Térmicos do U <sup>235</sup>	41

## 1. INTRODUÇÃO

### 1.1 - RESUMO E OBJETIVO

Partículas ionizantes pesadas, passando através de sólidos cristalinos podem provocar danos ao longo de sua trajetória, os quais são vistos diretamente ao microscópio eletrônico, ou indiretamente por meio de uma dissolução química preferencial do material danificado, de modo que traços sejam revelados. Tem-se mostrado que o método de ataque químico tem uma grande sensibilidade e permite a visualização dos traços ao microscópio ótico. Qualquer material dielétrico pode ser usado para a gravação de traços originados pelos fragmentos de fissão, tais como os resultantes de fissão do  $U^{235}$ .

No presente trabalho, essa técnica de revelação química de danos, conhecida como técnica etch-pit, foi aplicada para o estudo da distribuição de urânio em amostras como: interface massa combustível-revestimento de alumínio de elementos combustíveis, cristais de urânio naturais, filmes de nitrato de urânio, etc. O vidro foi escolhido como detector, devido ao fato das características de revelação dos traços serem bem conhecidas e pela facilidade de aquisição.

Este trabalho tem por objetivo apresentar aspectos relativos ao uso do vidro como detector de traços do estado sólido, bem como algumas medidas da distribuição de urânio em sólido.

Inicialmente são estabelecidas as condições ideais de revelação do detector empregado, e são levantados parâmetros para cálculo do chamado fator geometria, relacionados às propriedades do detector e que entra como fator de correção na expressão que relaciona a densidade superficial de traços no detector com a concentração de urânio na amostra que dá origem aos traços.

A seguir são apresentados resultados obtidos na determinação da distribuição de urânio em amostras de elementos combustíveis do reator de pesquisas do Instituto de Engenharia Nuclear (IEN) do Rio de Janeiro. O perfil da interface massa combustível-revestimento é estudado com a finalidade de verificar se existem interações entre o urânio da massa combustível com a estrutura do revestimento.

Finalmente são apresentados alguns dados relativos ao grau de contaminação de materiais como: lixas, óleos, etc, bem como o próprio alumínio do revestimento, que foram usados constantemente durante as experiências.

## 1.2 - REVISÃO DE LITERATURA

A técnica etch-pit teve sua origem com a descoberta feita pelos pesquisadores Silk e Barnes<sup>(1)</sup> em 1959, de que os fragmentos de fissão produziam traços em mica. Após este acontecimento, tem sido enorme o número de publicações relacionadas a essa técnica. O objetivo aqui não será a revisão completa dessa literatura, mas sim citar as publicações encontradas que foram de maior interesse nesse trabalho.

As três melhores revisões de literaturas relacionadas com o desenvolvimento e aplicações dessa técnica, bem como tipos e características dos detectores usados, foram publicadas por Fleischer, Price e Walker<sup>(2-4)</sup>.

Datação de traços de fissão<sup>(5-9)</sup> por contagem dos traços acumulados da fissão espontânea do urânio, tem sido largamente usada em geologia para estudar problemas como movimentos continentais, aurora do homem primitivo, etc. Fleischer, Price<sup>(10)</sup> realizaram trabalho de datação de vidros naturais como "tektitas" e um vidro libanês. Para este último a idade determinada foi de  $34 \pm 6$  milhões de anos.

Várias aplicações da técnica etch-pit na detecção de neutrons rápidos e térmicos tem sido realizadas<sup>(11-13)</sup>, vários autores<sup>(13)</sup> realizaram trabalhos empregando a mica como detector de neutrons e concluíram que a sensibilidade do método depende da concentração do elemento físsil no detector e que a quantidade de urânio presente naturalmente na mica permite medidas de fluências térmicas desde  $10^{16}$  até  $10^{21}$  neutrons/cm<sup>2</sup>.

A técnica tem sido aplicada com sucesso no campo da Astrofísica<sup>(14-21)</sup>. Traços de raios cósmicos galácticos com  $Z \approx 26$  tem sido encontrados em meteoritos e a presença ocasional de traços muito longos tem sido usada para inferir a existência de raios cósmicos mais pesados que o ferro<sup>(14)</sup>.

Um método para medir baixas concentrações de urânio em mica, pelo uso desta técnica, foi desenvolvido por Price e Walker<sup>(22)</sup>, e concentrações de até  $10^{-13}$  fração total de átomos foram determinadas.

A aplicação da técnica como um instrumento metalográfico, como por exemplo, a aplicação no estudo da distribuição de urânio em ligas metálicas, foi realizado por Rosenbaum e Armijo<sup>(23)</sup>, que detectaram a distribuição do urânio difundido em titânio.

Muito poucos trabalhos foram até agora publicados, relativos ao emprego da

técnica etch-pit no estudo da distribuição de urânio em amostras de elementos combustíveis. Elleman e Kesler<sup>(24)</sup> estudaram a distribuição de urânio em cristais de iodeto de cério dopados com urânio e também em partículas utilizadas para fabricação de elementos combustíveis, partículas estas compostas de um núcleo de  $UO_2$  com diâmetro de 200 microns e um revestimento de carbono pirolítico de espessura 120 microns.

## 2. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

### 2.1 - PREPARAÇÃO E REVELAÇÃO DO DETECTOR

Lâminas padronizadas de vidro para microscópio, de fabricação nacional, Barrio & Cia. Ltda. - SP, foram utilizadas como detectores de traços do estado sólido. As lâminas de vidro foram divididas em quatro partes, sendo então lavadas sucessivamente com água corrente, álcool e acetona.

Cada um dos detectores foi então colocado em contacto com amostras contendo urânio, cuja concentração desejava-se determinar, e irradiados com neutrons térmicos, no Reator do IEN.

Para revelar os vestígios deixados pelos fragmentos de fissão sobre o detector, fragmentos estes originados da fissão do  $U^{235}$  da amostra, o mesmo foi atacado, por um tempo de 200 segundos, com uma solução de ácido fluorídrico 10,94% em peso, neutralizado a seguir com hidróxido de amônio 20% em peso durante 15 minutos e lavado com água durante 20 minutos. Esse processamento químico removeu o material danificado ao longo das trajetórias dos fragmentos de fissão e causou traços que permaneceram como uma característica permanente da superfície do vidro.

Em algum desses detectores observou-se um grande número de defeitos, que dificultou a observação dos traços revelados. Somente após a revelação do detector tais defeitos eram visíveis ao microscópio metalúrgico padrão, com aumento  $\geq 50X$ . Na Figura 1 são mostrados tais defeitos.

Um tipo principal de defeito, comum a todas as lâminas, era o da não uniformidade do ataque pelo ácido fluorídrico. Tal defeito caracterizava-se por uma irregularidade de ataque superficial crescente no sentido do centro para as bordas da lâmina, ou seja, a velocidade de ataque pelo ácido aumentava do centro para a periferia. Para evitar esses defeitos, procedeu-se preliminarmente um ataque com HF 10,94% em peso por 50 segundos. Desta maneira os defeitos foram revelados, e pela observação ao microscópio no aumento 50X, escolheram-se as regiões menos danificadas da lâmina para serem cortadas e usadas como detectores.

Os detectores usados possuíam dimensões de 2 cm x 2 cm, e eram revelados quimicamente, prendendo-se um a um, por vácuo, a extremidade do eixo de um agitador mecânico, dotado de um succionador de borracha, e mergulhando-se sob agitação de 60±

10 rpm, nas soluções já mencionadas.

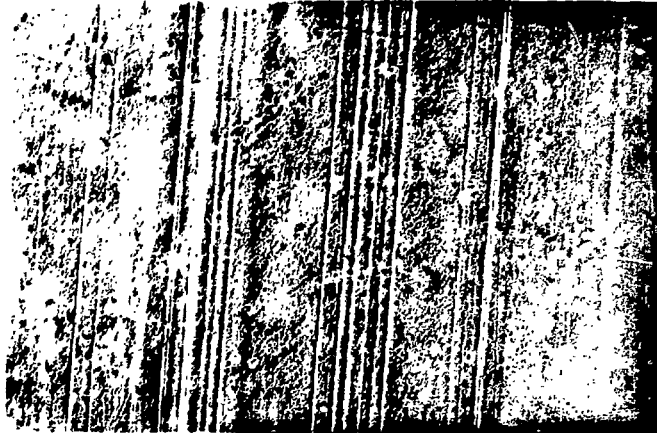


Figura 1 - Defeitos na superfície do vidro revelados após ataque com HF 10,94%.

O procedimento de preparação e revelação do detector descrito acima foi utilizado em todas as experiências que serão descritas posteriormente. As concentrações das soluções e velocidade do agitador foram parâmetros mantidos constantes em todos os experimentos. O tempo de ataque foi variado conforme a necessidade de cada trabalho.

## 2.2 - PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS

Foram preparadas amostras para a medida da concentração de urânio a partir de: elementos combustíveis do Reator Argonauta-IEN, filmes de nitrato de urânio, monocristal natural de urânio e materiais contaminados de uso corrente em laboratório, tais como óleos, lixas, etc.

### 2.2.1 - ELEMENTO COMBUSTÍVEL

Um elemento combustível do Reator Argonauta do IEN, de dimensões externas de 15 cm x 17 cm x 61 cm, é constituído de 17 placas planas. As placas são feitas de uma

mistura de Alumínio e  $U_3O_8$ , ambos pó, sendo o  $U_3O_8$  enriquecido a 20%. Essa mistura, que constitui a massa combustível, é prensada e revestida por uma matriz de alumínio. As dimensões de cada placa são 0,24 cm x 17 cm x 61 cm e sua composição em peso é: (25)

Pós de Alumínio	37,0%
$U_3O_8$ com $U^{235}$	7,4%
$U_3O_8$ com $U^{238}$	29,6%
Alumínio da matriz	26,0%

Na preparação das amostras foram utilizadas pastilhas de elemento combustível, cujas características são apresentadas na Figura 2. Essas pastilhas foram obtidas a partir das placas planas, fazendo-se um furo sobre as mesmas.

Com a finalidade de detectar-se a possível presença de urânio na estrutura do revestimento, quatro tipos de pastilha foram utilizadas: sem nenhuma preparação, irradiada, aquecida e, por último, aquecida e irradiada. Cada pastilha foi, então, separada em duas partes por corte transversal através da massa combustível (plano XY). Em cada uma das partes foi então processada, por raspagem mecânica, a separação da massa combustível do alumínio da matriz. Nessa operação tomou-se o cuidado de remover ao máximo possível a massa combustível, que permanecia aderida ao revestimento, sem danificá-lo. Realizada esta operação, o alumínio do revestimento foi dividido em várias partes, por cortes longitudinais, paralelos a um determinado diâmetro.

Cada uma dessas partes foi, então, plastificada com acrílico, de maneira a permanecer exposto um dos planos longitudinais (plano XZ, Figura 2), procedendo-se a seguir o polimento mecânico. A face exposta foi passada sucessivamente nas lixas 240, 320, 400 e 600, numa polidora manual, seguindo-se o polimento com alumina e óxido de magnésio numa polidora mecânica.

Tornou-se, então, necessário processar a descontaminação, devido ao fato de que a camada de urânio aderida ao revestimento era liberada durante o polimento, contaminando a amostra. A descontaminação se processou da seguinte maneira: um jato de  $HNO_3$  1N fervente foi passado, durante 5 minutos, tomando-se especial cuidado para dirigir o jato de ácido no sentido do revestimento para a camada aderente de massa combustível, isto é, paralelo ao eixo OZ. Deste modo, o  $U_3O_8$  reagia com o  $HNO_3$  formando nitrato de urânio que, sendo solúvel em água, era arrastado, descontaminando a amostra. Da mesma forma que a anterior, passou-se um jato de água fervente durante 5 minutos, para a remoção do nitrato de urânio residual.



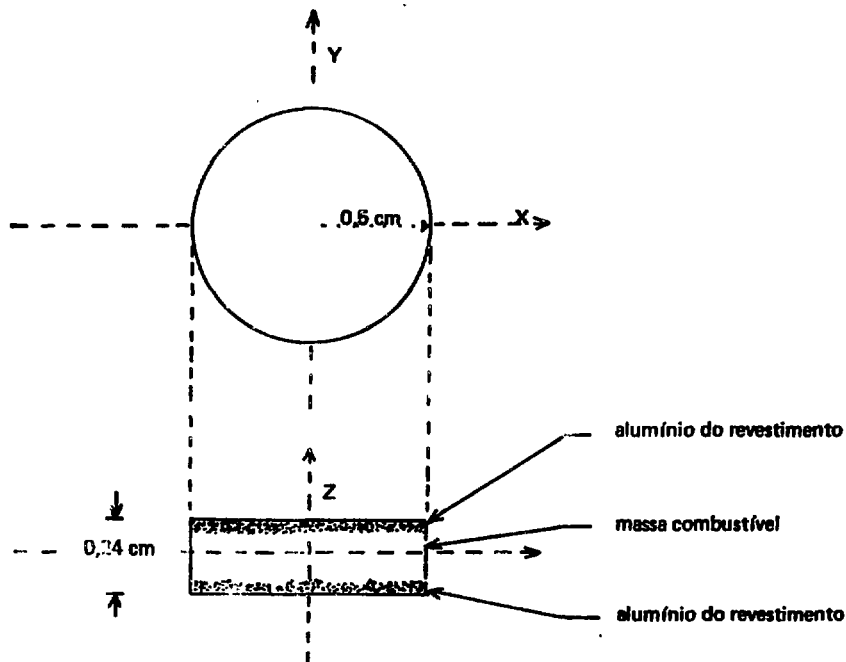


Figura 2 - Pastilhas de elemento combustível do Reator Argonauta.

A superfície limpa foi colocada em contato com a de um detector de vidro preparado conforme seção 2-1, e o conjunto introduzido num tubo de plástico de polietileno, sendo uma extremidade fechada e outra conectada a uma bomba de vácuo. Feito o vácuo da ordem de  $10^{-3}$  mm Hg, colocou-se a parte do tubo contendo a amostra por aproximadamente 10 segundos num forno aquecido a  $500^{\circ}\text{C}$ . Ocorreu, então, a aderência das paredes do tubo aos contornos do conjunto, promovendo o fechamento, sob vácuo, do mesmo.

As amostras preparadas conforme o descrito acima foram irradiadas com neutrons térmicos em fluência desde  $10^7$  até  $10^{12}$  neutrons/cm<sup>2</sup>.

### 2.2.2 - MONOCRISTAL NATURAL DE DIÓXIDO DE URANIO

Um monocristal natural de  $UO_2$  foi dividido em duas partes. Cada uma destas partes foi plastificada, polida e preparada para irradiação conforme o procedimento descrito na seção 2.2.1. As amostras foram irradiadas com neutrons térmicos numa fluência da ordem de  $10^{10}$  neutrons/cm<sup>2</sup>.

### 2.2.3 - FILMES DE NITRATO DE URANILA

Sobre placas planas circulares de alumínio, de diâmetro 1,5 cm e pesando desde 20 até 40 mg, depositou-se eletroquimicamente um filme de nitrato de uranila. O equipamento utilizado para eletrodeposição pode ser visto na Figura 3. A solução utilizada foi de nitrato de uranila em 15 ml de álcool isopropílico.

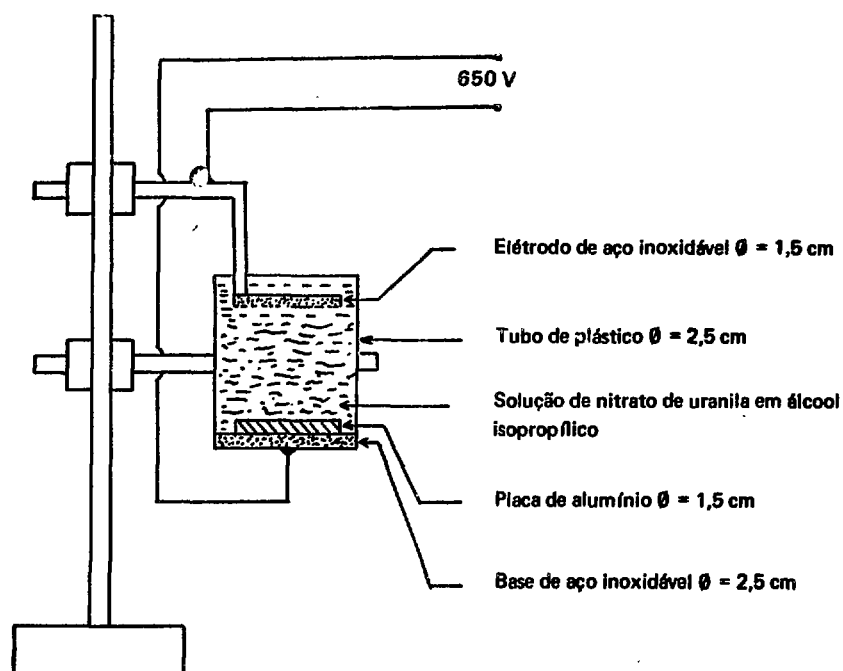


Figura 3 - Esquema do equipamento usado na eletrodeposição de filmes sobre placas circulares de alumínio

A concentração de nitrato de uranila era ajustada de tal forma que para uma diferença de potencial entre eletrodos de 650 V corresponderia a uma corrente de 5 mA. Determinou-se o peso do filme depositado, por diferença entre o peso da placa de alumínio antes e após a eletrodeposição. As pesagens necessárias foram efetuadas numa eletrobalaça marca CAHN que, para amostras com peso no intervalo de 0 até 40 mg, fornece uma precisão de  $10^{-5}$  g. Essas lâminas contendo filmes foram preparadas para irradiação conforme procedimento descrito em seção 2.2.1. A fluência de neutrons térmicos utilizada neste caso atingiu no máximo a  $10^7$  neutrons/cm<sup>2</sup>.

#### 2.2.4 - MATERIAIS CONTAMINADOS DE USO CORRENTE EM LABORATÓRIO

Amostras de materiais de uso constante neste trabalho tais como: vidros, lixas, óleos, etc., que se supunha estarem contaminados por urânio, foram coletados e preparados para irradiação conforme já descrito. A fluência de neutrons térmicos neste caso foi da ordem de  $10^{12}$  neutrons/cm<sup>2</sup>.

#### 2.3 - LEVANTAMENTO DE DADOS

As lâminas de vidro usadas como detectores após a revelação foram observadas ao microscópio metalográfico padrão, marca LEITZ-WETZLAR, com luz refletida nos aumentos de 50X, 100X, 200X e 500X.

O aumento a ser utilizado na observação microscópica dependia da densidade superficial de traços apresentada sobre a área danificada do detector. Assim, para baixas densidades superficiais de traços, usavam-se os aumentos de 50X e 100X, de maneira a varrer a maior área possível. Para densidades maiores restringia-se a área em observações, isto é, usavam-se os aumentos de 200X e 500X. Os detectores que apresentavam uma densidade superficial de traços tal que ocorria a superposição generalizada dos mesmos, eram rejeitados. Cada área observada, de interesse no trabalho em andamento, foi fotografada.

Medidas quantitativas desses traços foram feitas, por contagens dos mesmos sobre fotografias. Quando necessitava-se de uma visão mais ampla das distribuições superficiais dos traços, as contagens eram feitas sobre a projeção do negativo fotográfico, conseguida

com o auxílio de um projetor de slides. A área a ser contada era escolhida arbitrariamente sobre a fotografia ou projeção do negativo fotográfico. Uma área de 5 cm x 7 cm sobre a fotografia geralmente era contada. A equivalência entre essa área e a área real sobre a superfície do detector foi feita por comparação com as dimensões fotográficas de uma câmara de contagem de corpúsculos de Levy. Essa câmara é constituída de uma lâmina de vidro, possuindo uma área reticulada de  $1\text{mm}^2$  dividida em 400 quadrados de 0,025 mm de lado. A Figura 4 mostra alguns desses lados nos aumentos de 50X, 100X, 200X e 500X, respectivamente.

Para cada filme fotográfico utilizado, as quatro últimas posições eram reservadas para fotografar a câmara de contagem de corpúsculos. Dessa maneira, qualquer dimensão entre as demais fotografias podia ser medida por comparação com as fotografias da câmara. Para o caso de imagem projetada sobre uma tela a partir do negativo, o aumento do tamanho da imagem em relação ao do negativo era fornecido pela razão entre a medida do afastamento de dois traços quaisquer sobre a imagem projetada e a medida da distância correspondente sobre a imagem no negativo fotográfico.

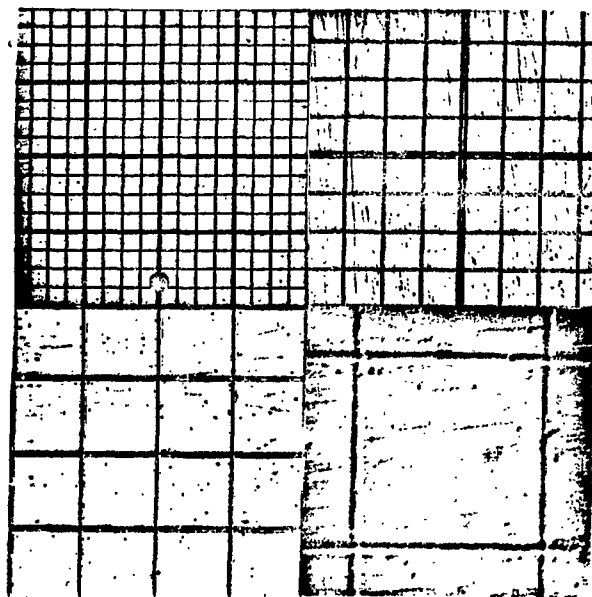


Figura 4 - Reticulado da Câmara de Levy nos aumentos de 50X, 100X, 200X e 500X, respectivamente.

### 2.3.1 - DETERMINAÇÃO DO TEMPO ÓTIMO DE REVELAÇÃO DOS TRAÇOS

O tempo ótimo de revelação corresponde àquele em que a densidade superficial de traços revelados é máxima. Fez-se a determinação de tempo ótimo de revelação levantando-se a curva de densidade superficial de traços versus tempo de ataque, Figura 5. Os traços foram obtidos por irradiação, com uma fluência de neutrons térmicos de  $4,8 \times 10^8$  neutrons/cm<sup>2</sup> de uma amostra contendo urânio enriquecido a 20% em contato com um detector de vidro. Inicialmente a densidade superficial de traços é crescente, devido ao fato de que um maior número de traços vão se tornando visíveis ao microscópio ótico, à medida que o tempo de ataque é aumentado. A partir de 180 segundos essa densidade torna-se constante, significando que todos os traços revelados são visíveis ao microscópio ótico e permanecem como uma característica permanente da superfície do vidro. Como mostra a Figura, qualquer tempo maior que 180 segundo satisfaz a condição de tempo ótimo, pois após esse tempo a densidade superficial é máxima e constante. A distribuição superficial de traço sobre o detector, correspondente a um tempo de 300 segundos, pode ser vista na Figura 6.

A curva apresentada na Figura 5 é válida para o caso em que a densidade superficial de traços é tal que a superposição generalizada dos mesmos não ocorre.

Quando a densidade superficial de traços é elevada, a superposição generalizada ocorre. Neste caso a densidade superficial de traços revelados, isto é, que vão se tornando visíveis ao microscópio ótico, cresce rapidamente e devido a ocorrência da superposição, torna-se impraticável a contagem e portanto, a determinação da densidade. Na Figura 7 vemos uma fotografia da superfície de um detector, em que ocorre a superposição generalizada dos traços.

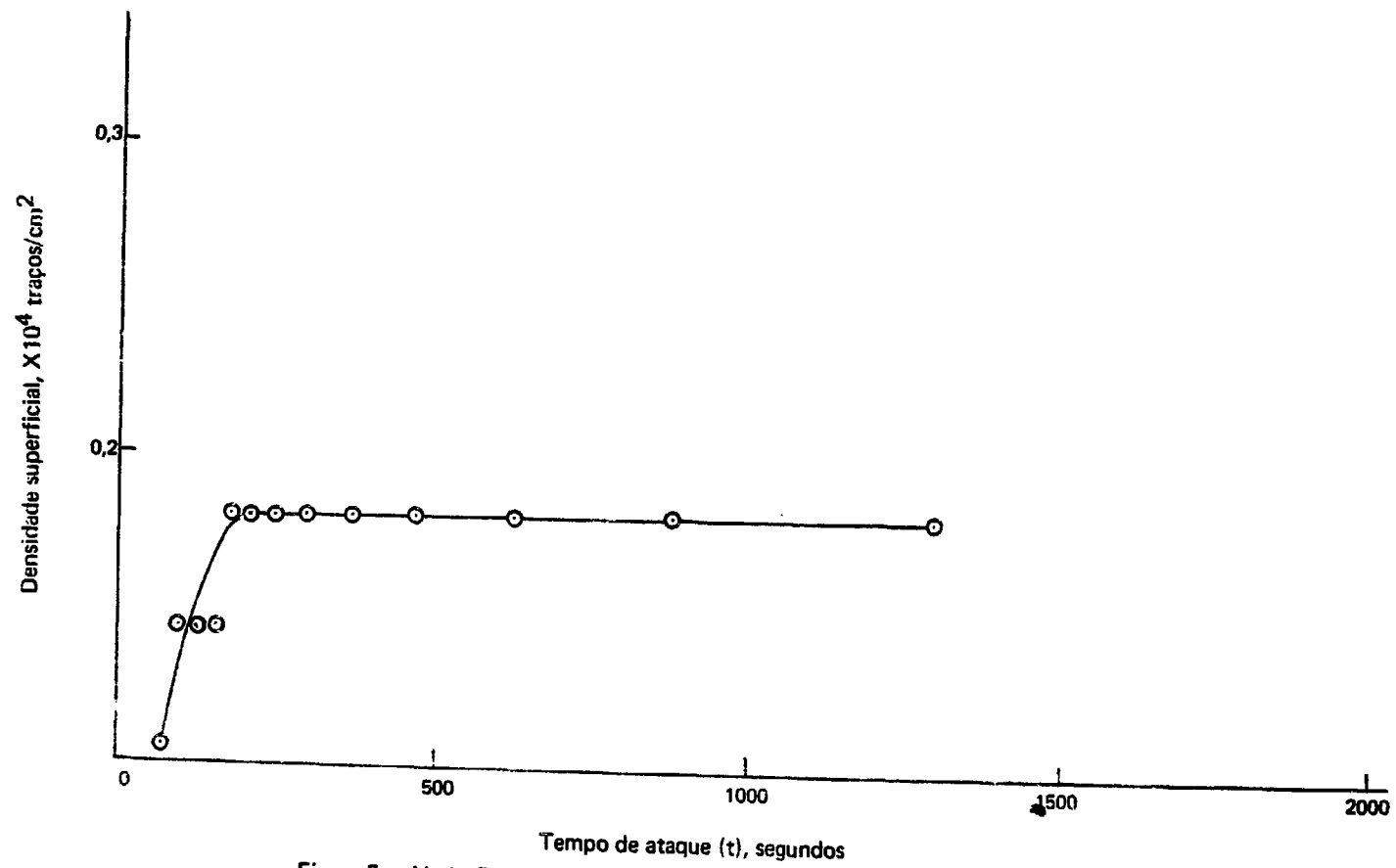
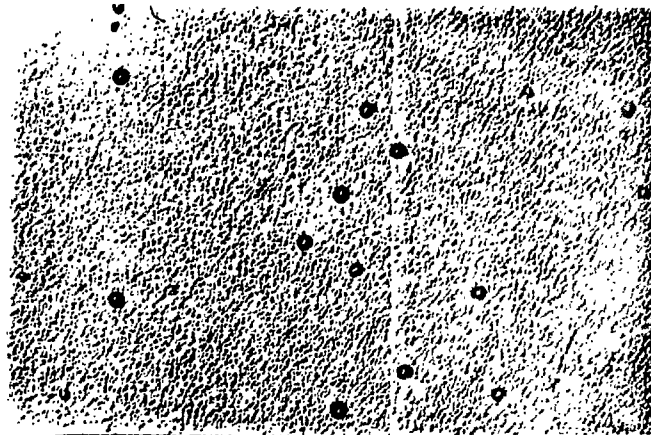
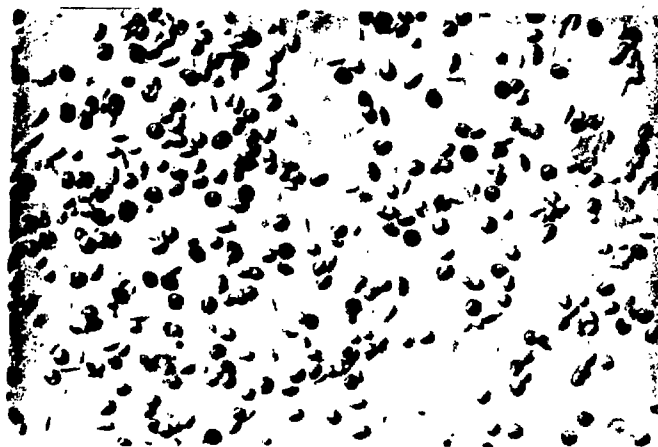


Figura 5 - Variação da densidade superficial de traços com o tempo de ataque.



**Figura 6** - Distribuição superficial de traços sem a ocorrência de superposição. Tempo de ataque de 300 segundos, aumento de 200X.



**Figura 7** - Distribuição superficial de traços no caso de superposição generalizada. Tempo e ataque de 230 segundos, aumento de 500X.

### 3. RESULTADOS E DISCUSSÕES

#### 3.1 - MEDIDA DE CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO NAS AMOSTRAS

A medida da concentração dos traços revelados sobre os detectores de vidro foi observada como sendo geralmente proporcional à concentração de urânio na amostra, com a concentração superficial de traços adequadamente representada por: (24)

$$N_p = \phi_t \sigma_f N_U (1 - \text{sen } \theta_c) \quad (1)$$

$$N_p = \text{número de traços/cm}^2$$

$$\phi_t = \text{fluência de neutrons térmicos (n/cm}^2\text{)}$$

$$\sigma_f = \text{seção de choque de fissão para neutrons térmicos do U}^{235} \text{ (cm}^2\text{)}$$

$$N_U = \text{átomos de U}^{235}/\text{cm}^2$$

(1 - sen  $\theta_c$ ) = fator de geometria que leva em conta a fração de fragmentos de fissão, os quais não são revelados devido a que penetram na superfície com um ângulo menor que o ângulo crítico  $\theta_c$ .

Para o caso em que a espessura da amostra exceda o alcance dos fragmentos de fissão, a quantidade  $N_U$  na equação (1) é dada por:

$$N_U = N_O R_{eff} \quad (2)$$

onde  $N_O = N_a I C \quad (3)$

e  $R_{eff} = R \cos^2 \theta_c / (1 - \text{sen } \theta_c) \quad (4)$

$$N_O = \text{átomos de U}^{235}/\text{cm}^3$$

$$R_{eff} = \text{alcance efetivo dos fragmentos de fissão (cm)}$$

$$N_a = \text{número de átomos por cm}^3 \text{ de amostra}$$

$$I = \text{abundância isotópica do U}^{235}$$



- C = fração de átomos de urânio na amostra  
 R = alcance real dos fragmentos de fissão (cm)

Como o interesse é determinar-se a concentração de urânio na amostra ( $N_0$ ), relacionando as equações (1) e (2) teremos:

$$N_0 = N_D / \theta_t \sigma_f R \cos^2 \theta_c \quad (5)$$

Para calcular  $N_0$  é necessário conhecer-se o ângulo crítico  $\theta_c$ , característico do tipo de detector empregado. Dois métodos de determinação do ângulo crítico foram utilizados: o método indireto e o método direto.

### 3.1.1 - MÉTODO INDIRETO

O ângulo crítico  $\theta_c$  é uma função do material usado como detector e aproxima-se de  $90^\circ$  quando a taxa de remoção de material ao longo do traço aproxima-se da taxa de remoção de material da região não danificada. O fator de correção na equação (1), envolvendo o ângulo crítico, reflete o fato de que traços que interceptam a superfície do detector sob um ângulo menor que  $\theta_c$  não serão observados, devido a que a taxa de remoção de material da região não danificada excede a taxa de penetração superficial resultante do ataque ao longo do traço.

No caso mais simples a geometria do traço é determinada pela ação de dois processos: dissolução química ao longo do traço do fragmento de fissão a uma taxa constante  $V_t$  e ataque geral sobre a superfície do sólido e sobre a superfície interior do traço atacado a uma taxa menor  $V_g$ , que é constante e isotrópica<sup>(4)</sup>. A Figura 8 ilustra como esse processo dá origem ao cone que tem o traço original como o eixo. O diâmetro do traço  $D$  e seu comprimento  $l$  resultaram da competição entre os efeitos de  $V_g$  e  $V_t$ , ambos  $D$  e  $l$  sendo menores, conforme menor seja o excesso de  $V_t/V_g$  ou, equivalentemente, quanto maior seja o ângulo do cone<sup>(4)</sup>.

$$\theta_c = \text{arc sen } V_g/V_t \quad (6)$$

No caso de incidência normal,

$$l = (V_t - V_g) t \quad (7)$$

$$D = 2V_g \left[ (V_t - V_g)/(V_t + V_g) \right]^{1/2} \quad (8)$$

Se  $L$  é o comprimento do traço sobre o qual  $\theta$  é efetivamente constante e o  $t$  de tempo de ataque, então a equação (7) é válida quando  $t < L/V_t$  e a equação (8) quando  $t < (L/V_g) \{ 1 + [(1 - \text{sen } \theta) (\cos \theta/2 + \text{sen } \theta/2) / (\cos \theta/2 - \text{sen } \theta/2) \cos \theta] \}$ .

No caso do presente trabalho foram determinados experimentalmente  $V_g$  e  $D$  para diferentes tempos de ataque, calculando-se então,  $V_t$  pela expressão (8) e através da expressão (6), com valores de  $V_g$  e  $V_t$ , critica-se  $\theta_c$ .

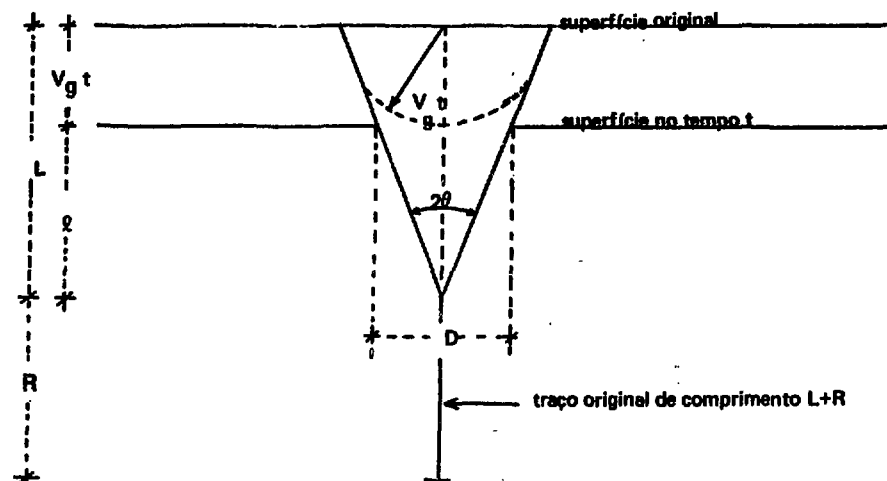


Figura 8 - Geometria do traço com  $V_t$  constante, o ângulo do cone é  $\text{sen } V_g/V_t$  (4).

A Figura 9 fornece uma relação linear entre a espessura removida do vidro e o tempo de ataque, a qual foi obtida utilizando-se o mesmo procedimento experimental já descrito na seção 2.2.1.

A taxa de remoção superficial, igual ao coeficiente angular da reta, foi de  $4,28 \times 10^{-2}$  microns/s. A lâmina de vidro empregada neste caso possuía dimensões de 2,66 cm x 2,615 cm x 0,135 cm e peso de 2,3329 gramas. A espessura removida após cada ataque foi calculada pela expressão:

$$\Delta L = (L_0/2) (1 - m_i/m_0) \quad (9)$$

$\Delta L$  = espessura total removida após o  $i$ -ésimo ataque

$L_0$  = espessura inicial da lâmina

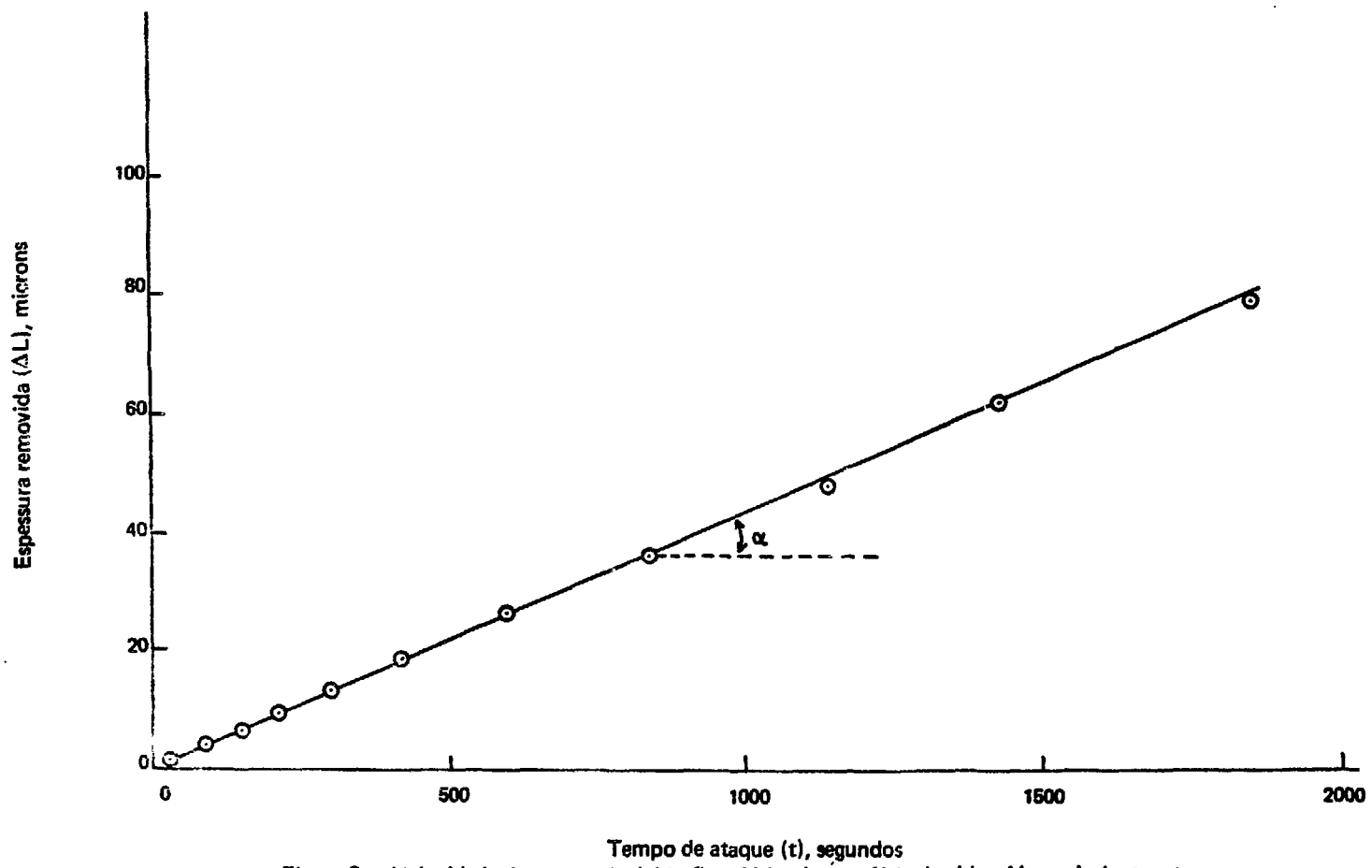


Figura 9 - Velocidade de ataque do ácido fluorídrico à superfície de vidro,  $V_g$  equivalente a  $\text{tg } \alpha$ .

$m_0$  = peso inicial da lâmina

$m_i$  = peso da lâmina no  $i$ -ésimo ataque

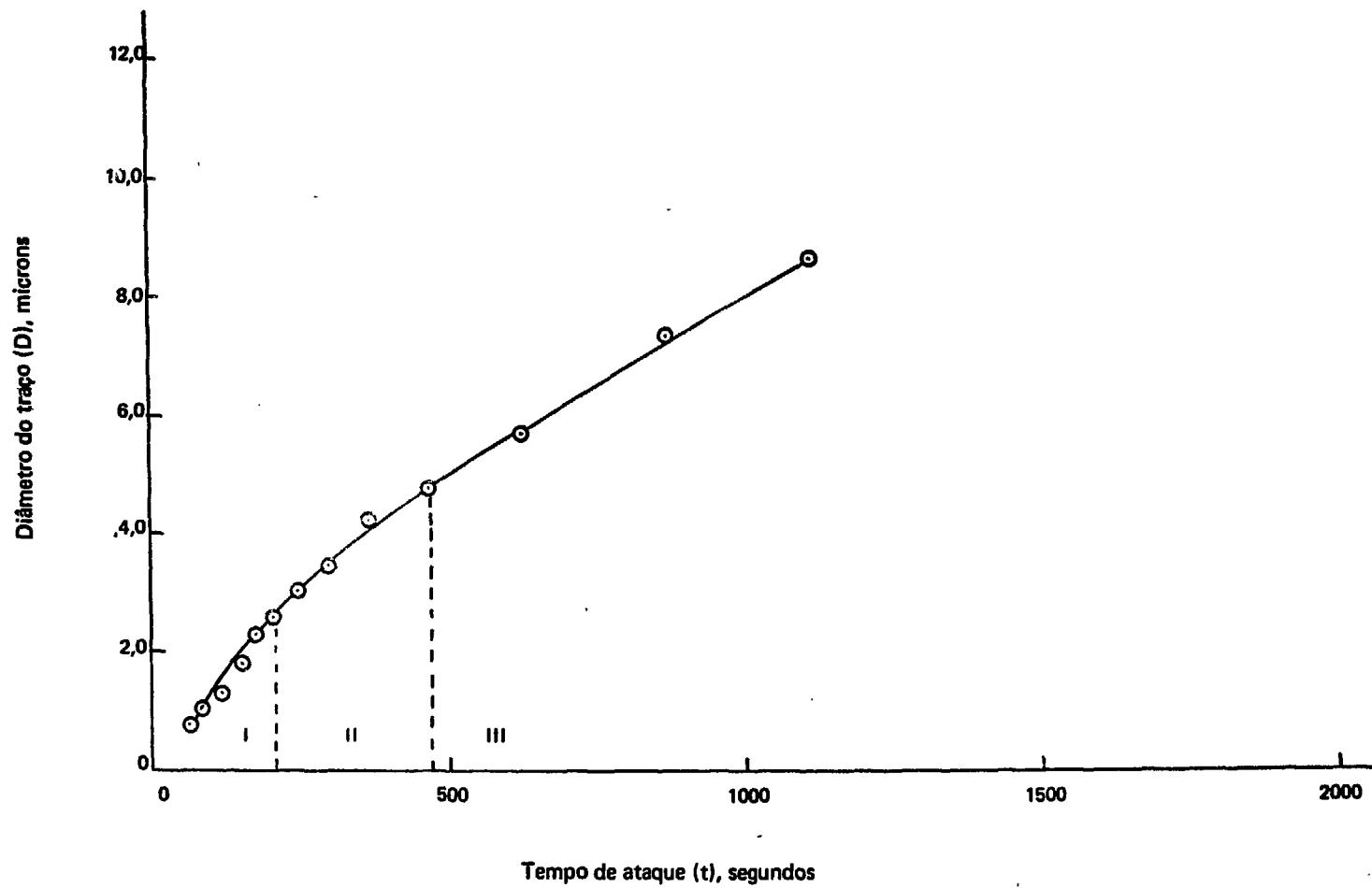
Na Figura 10 estão relacionados o diâmetro do traço e o tempo de ataque. Estes valores do diâmetro foram obtidos a partir dos traços deixados pelos fragmentos de fissão sobre uma lâmina de vidro, irradiada em contacto com uma amostra contendo massa combustível do Reator Argonauta, com uma fluência de neutrons térmicos iguais a  $4,17 \times 10^8$  neutrons/cm<sup>2</sup>. A lâmina de vidro foi sucessivamente atacada com HF 10,94%, sendo fotografada com aumento de 200X, para cada tempo de ataque.

Efetou-se a medida dos diâmetros da maneira já mencionada, sobre a projeção do negativo fotográfico, com um aumento de imagem de 25,41X. Foram realizadas 8 medidas de diâmetro, de traços para cada fotografia, sendo os diâmetros vistos na Figura 10, a média aritmética das mesmas. Na Figura 11 são mostrados, ao aumento de 500X, alguns desses traços, obtidos após tempo de ataque de 1.300 segundos, cujos diâmetros foram medidos. Os traços tem a forma circular, significando que a incidência dos fragmentos de fissão foi normal à superfície do detector. A forma da curva apresentada na Figura 10 pode ser explicada dividindo-a em três regiões, conforme pode ser visto. Na região I o diâmetro do traço aumentou desde 0 até 2,5 microns, sendo a variação aproximadamente linear. Esse comportamento é coerente com a hipótese de forma cônica para o traço, isto é, que  $V_g$  e  $V_t$  sejam constantes. Há, no entanto, uma predominância acentuada do efeito de  $V_t$  sobre o de  $V_g$ . É muito provável que o limite superior dessa região corresponda aproximadamente ao diâmetro da região danificada pelo fragmento de fissão. A segunda região, que estende-se desde 2,5 até 5,0 microns, é uma região de transição, onde o efeito de  $V_g$  sobre a superfície interior do traço se faz sentir sobre o de  $V_t$ , isto é, devido ao fato de regiões da superfície interior do traço passarem a constituir-se de estruturas não danificadas. Na região III, de diâmetro acima de 5,0 microns, a superfície interior do traço é constituída inteiramente de estrutura não danificada, sendo, portanto, atuante apenas  $V_g$  tendo, assim, um comportamento linear.

A Figura 12 mostra a relação entre a velocidade de remoção do material ao longo do traço e o tempo de ataque. Os valores de  $V_t$  foram calculados a partir dos valores obtidos de  $D$  e  $V_g$  com o auxílio da expressão (8).

Da mesma forma a Figura 13 mostra a curva: ângulo crítico versus tempo de ataque. Os valores de  $\theta_c$  foram calculados com auxílio da expressão (6).

Os valores do ângulo crítico obtidos foram elevados, podendo-se dizer que somente os fragmentos de fissão que incidiram na direção normal à superfície do vidro foram detectados. Isso justifica o fato de que a maioria dos traços observados apresentavam a forma circular e poucos a forma elíptica. Esses valores elevados de  $\theta_c$  são indicativos de que o vidro possui uma má qualidade para ser empregado como detector.



Tempo de ataque (t), segundos

Figura 10 - Variação do diâmetro do traço com o tempo de ataque.

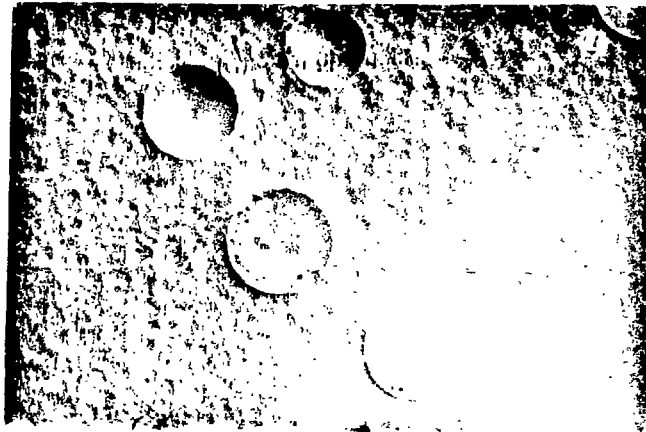


Figura 11 - Traços de fragmentos de fissão utilizados para estudo de diâmetro. Tempo de ataque 1.300 s, aumento de 500X.

### 3.1.2 - MÉTODO DIRETO

O fator de correção  $\cos^2 \theta_c$ , que aparece na expressão (5), pode ser determinado diretamente sem a necessidade do emprego da expressão (8).

A partir da expressão (5) obteremos:

$$\cos^2 \theta_c = N_p / N_0 \phi_t \sigma_f R \quad (10)$$

O método consistiu em irradiar com fluência  $\phi_t$  uma amostra de um material cuja densidade  $N_0$  de  $U^{235}$  e alcance dos fragmentos de fissão fossem conhecidos, para se determinar o número de traços  $N_p$  deixados sob o detector pelos fragmentos de fissão. Então, por substituição direta, determinou-se  $\cos^2 \theta_c$ .

Dois tipos de fatores de correção foram determinados. Um primeiro tipo, aplicável no caso em que a espessura de urânio excede o alcance  $R$  dos fragmentos de fissão na amostra, e um segundo, aplicável quando a espessura  $\delta$  é menor que o alcance  $R$ .

#### 3.1.2.1 - Caso $\delta > R$ :

Um monocristal de  $UO_2$ , preparado conforme o descrito na seção 2.2.2, foi irradi-

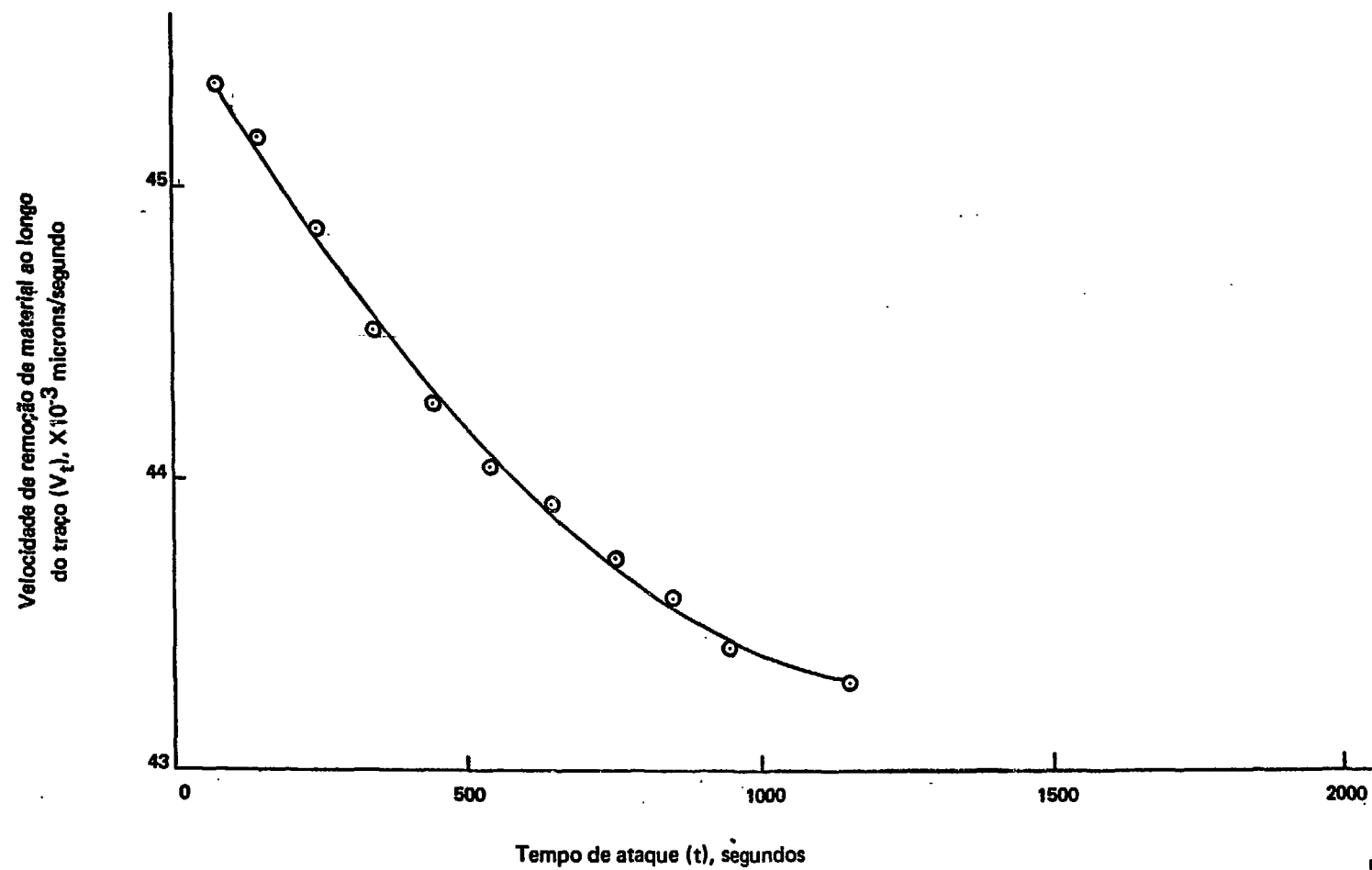


Figura 12 - Velocidade de remoção de material ao longo do traço.

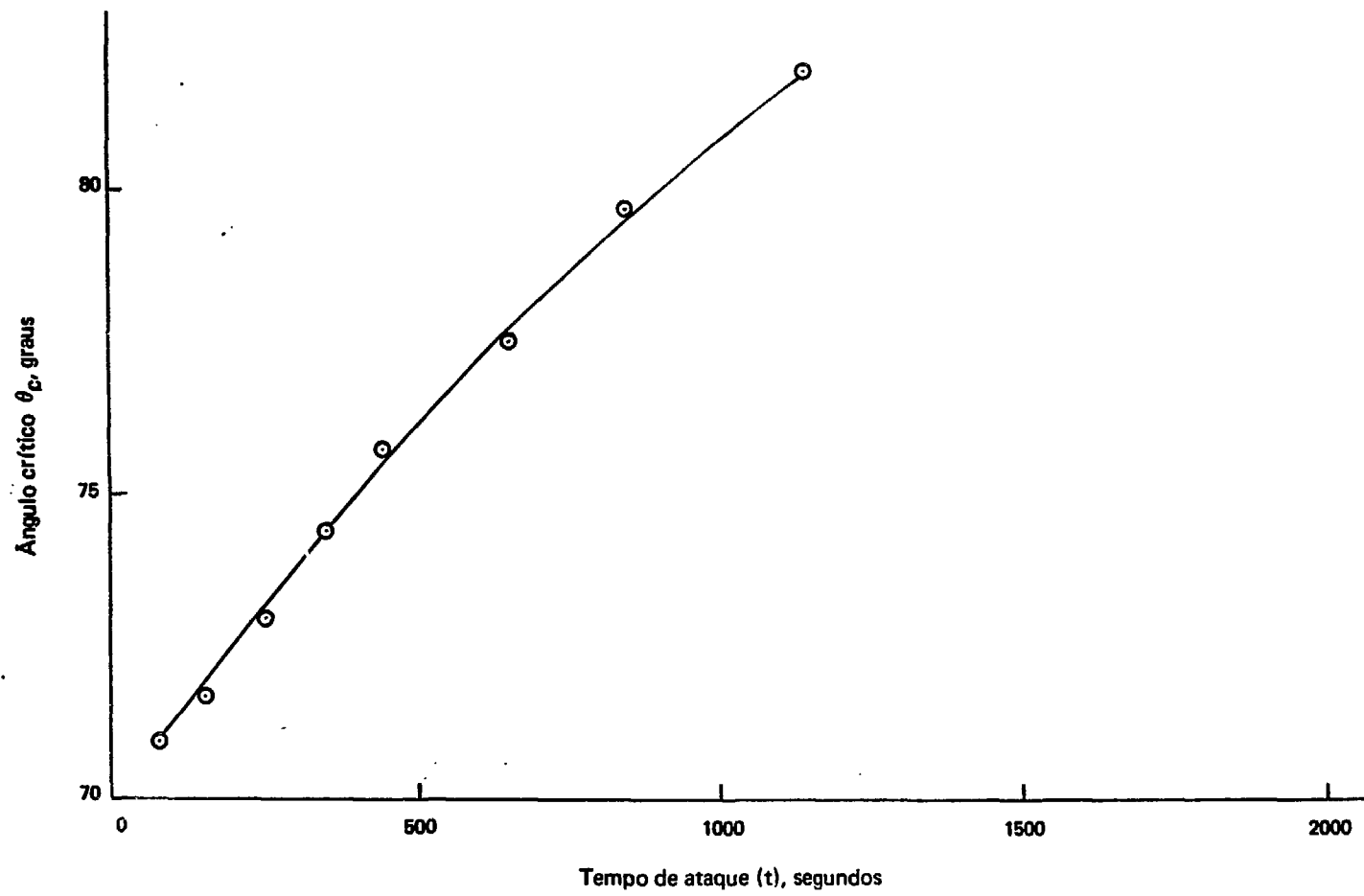


Figura 13 - Variação do ângulo crítico com o tempo de ataque.



ado com uma fluência de neutrons térmicos de  $2,82 \times 10^{10}$  neutrons/cm<sup>2</sup>.

A densidade atômica do U<sup>235</sup> no cristal foi determinada pela expressão:

$$N_0 = p S C I N_A / M \quad (11)$$

onde:

- $N_0$  = átomo de U<sup>235</sup>/cm<sup>3</sup>
- $p$  = densidade do monocristal de UO<sub>2</sub>, 10,96 g/cm<sup>3</sup> (26)
- $S$  = número de átomos/molécula de UO<sub>2</sub>, 3 átomos/molécula
- $C$  = fração de átomos de urânio na amostra, 1/3
- $I$  = abundância isotópica do U<sup>235</sup>, 0,71 % (27)
- $N_A$  = número de Avogadro,  $6,02 \times 10^{23}$  moléculas/mol
- $M$  = massa molecular do UO<sub>2</sub>, 270,07 g/mol (28)

Por substituição direta na expressão (11) obteve-se para  $N_0$  um valor de  $1,73 \times 10^{20}$  átomos U<sup>235</sup>/cm<sup>3</sup>.

Três posições distintas da superfície danificada do detector foram fotografadas. Para cada uma das fotografias, determinou-se a densidade superficial de traços. A média das três deu para  $N_D$  um valor de  $1,08 \times 10^6$  traços/cm<sup>2</sup>. A Figura 14 mostra uma dessas posições, a área contada foi de  $10^{-4}$  cm<sup>2</sup> e forneceu uma densidade média para três contagens sucessivas de 108 traços.

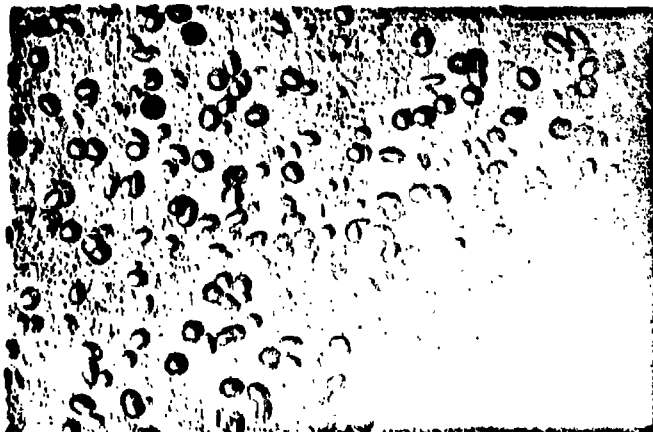


Figura 14 - Distribuição superficial de traços obtida pela irradiação de um monocristal de UO<sub>2</sub>, aumento de 500X, tempo de ataque de 200 segundos.

No caso de monocristal de urânio natural, usou-se para o alcance R dos fragmentos de fissão o valor de  $8 \times 10^{-4}$  cm (28).

Substituindo os valores apresentados na expressão (10), obtém-se para  $\cos^2 \theta_c$  um valor de  $3,68 \times 10^{-22}$  cm<sup>2</sup>/σ<sub>f</sub>. Considerando-se σ<sub>f</sub> igual à 438,73 barns (Anexo 6.1), resulta para  $\cos^2 \theta_c$  o valor de 0,838, o que implica em θ<sub>c</sub> igual a 66°.

Comparando-se esse valor  $\theta_c$  com os apresentados na Figura 13, ve-se que este apresenta um desvio médio de aproximadamente  $7^\circ$ . Como já foi mencionado, os valores de  $\theta_c$  apresentados na Figura 13 foram calculados partindo-se da hipótese de geometria cônica para o traço e como na realidade tal não ocorre<sup>(4)</sup>, isso pode ser apontado como uma das principais causas do desvio. Além disso, o valor de  $\theta_c$  foi determinado pelo emprego da expressão (10), sem a necessidade da determinação de parâmetros específicos do detector, como  $V_g$ ,  $V_t$  e  $D$ , que podem dar margem a erros. Observe-se que este valor de  $\theta_c$  calculado é válido quando o tempo de ataque é de 200 s, uma vez que o valor de  $N_p$ , usado no seu cálculo, foi determinado para este tempo, podendo, no entanto, ser usado para tempos maiores, desde que a densidade superficial de traços permaneça constante (ver seção 2.2.1).

Pelos motivos expostos, o valor de  $\theta_c$  igual a  $66^\circ$  será utilizado, sempre que necessário.

### 3.1.2.2 - Caso $\delta < R$ :

Valores de  $\cos^2 \theta_c$  foram determinados para filmes de nitrato de urânio de diferentes espessuras. Os filmes de nitrato de urânio foram obtidos por eletrodeposição sobre placas de alumínio, de maneira já descrita na seção 2.2.3.

A espessura de cada filme foi calculada pela expressão:

$$\delta = \frac{4P}{\pi D^2 p} \quad (12)$$

$\delta$  = espessura do filme (cm)

$P$  = peso do filme (g)

$D$  = diâmetro do filme (cm)

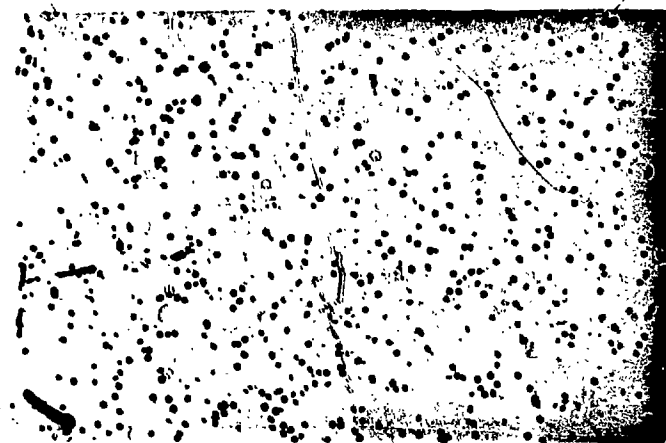
$p$  = densidade ( $\text{g/cm}^3$ )

Dois filmes foram preparados. O primeiro foi obtido para as seguintes condições: tensão aplicada entre eletrodos 650 volts, corrente 4 mA, tempo de eletrodeposição 28 minutos, peso da placa de alumínio 31,464 mg e solução de  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  em 15 ml

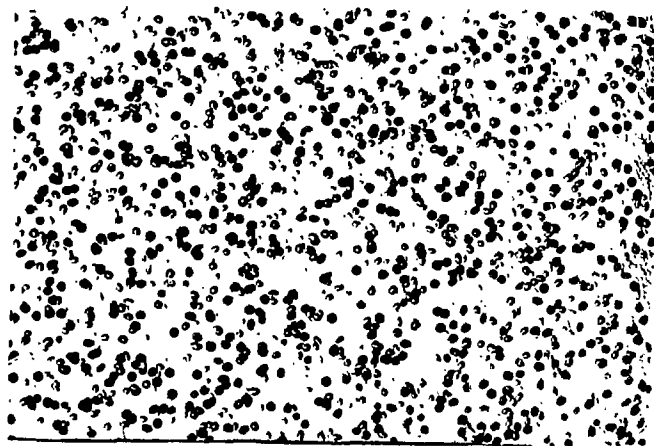
de álcool isopropílico. O peso do filme depositado foi de 0,464 mg. O segundo foi obtido para as condições de: tensão entre eletrodos 650 volts, corrente 5 mA, tempo de eletrodeposição 15 minutos, peso da placa de alumínio 33,870 mg e solução de  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  em 15 ml de álcool isopropílico. Neste caso, o peso do filme depositado foi de 0,172 mg. As fluências de neutrons térmicos usadas na irradiação dos filmes foram as mesmas e iguais a  $2,6 \times 10^{10}$  neutrons/cm<sup>2</sup>. No caso do primeiro filme a densidade superficial de traços obtida foi de  $3,24 \times 10^4$  traços/cm<sup>2</sup> e no segundo, de  $1,76 \times 10^4$  traços/cm<sup>2</sup>. A Figura 15 mostra, para um tempo de ataque de 400 segundos e aumento de 50X, uma das 4 fotografias utilizadas na obtenção de  $N_p$ , no caso do segundo filme. Esta fotografia permite observar-se que a distribuição superficial de traços se aproxima bastante da homogeneidade, indicando que a espessura do filme depositado foi praticamente uniforme. Esta homogeneidade de distribuição pode ser comparada com a obtida pela irradiação de um monocristal de  $UO_2$  com uma fluência de neutrons térmicos da ordem de  $10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>, vista na Figura 16, que corresponde a um tempo de ataque de 200 s e aumento de 200X.

Para o cálculo do fator de correção pela expressão (10), torna-se necessário conhecer R e  $N_0$  para cada filme. Para o caso destes filmes, a espessura dos mesmos foi tomada como sendo igual ao alcance R dos fragmentos de fissão e o seu cálculo pelo uso da expressão (12) forneceu, para o primeiro filme, uma espessura de 0,935 microns e, para o segundo, 0,346 microns. Nos cálculos de espessura usou-se o valor de: 2,807 g/cm<sup>3</sup> para a densidade do  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ (26), 502,13 para o peso molecular(26) e 2,25 cm<sup>2</sup> para a área do filme. Para o cálculo da densidade atômica de  $U^{235}(N_0)$  do nitrato de uranila, pelo emprego da expressão (11), usaram-se os mesmos valores anteriores da densidade e massa molecular e obteve-se para  $N_0$  um valor de  $2,35 \times 10^{19}$  átomos de  $U^{235}$ /cm<sup>3</sup>. Os valores de  $COS \Theta_c$  calculados através da expressão (10) foram para o primeiro filme 1,13 e para o segundo 1,38, sendo  $\sigma_f$  utilizado, neste caso, igual a 438,73 barns (Anexo 6.1). Como se observa, obteve-se em ambos os casos valores de  $COS \Theta_c$  não consistentes entre si. Comparando-se os valores de  $N_p$  obtidos,  $3,24 \times 10^4$  e  $1,76 \times 10^4$ /cm<sup>2</sup>, vê-se que um é aproximadamente o dobro do outro, o mesmo ocorrendo para os tempos de eletrodeposição, 28 e 15 minutos, a fluência de neutrons térmicos,  $N_0$  e  $\sigma_f$  sendo os mesmos para ambos os filmes, substituindo-se para cada filme estes valores na expressão (10) e analisando-se os resultados, vê-se que a espessura de um filme deve ser aproximadamente o dobro da espessura do outro. Observando-se os valores de espessura obtidos em função do peso dos filmes na expressão (12), verifica-se que tal não ocorreu. Assim sendo, a não consistência é explicada pela falta de precisão na determinação dos pesos dos filmes e, conseqüentemente, da espessura, concluindo-se que o método de determinação da espessura do filme em função do peso não é razoável.

Para ambos os filmes, o valor de  $COS \Theta_c$  resultou maior que 1 e bastante desviado em relação ao obtido anteriormente para filmes grossos ( $\delta < R$ ). Valores elevados como esses indicam boas qualidades de detecção para o vidro empregado, o que contradiz o que foi observado anteriormente. Esse valor elevado para o  $COS \Theta_c$  pode ser explicado pelo fato de que até o momento não estão bem esclarecidos o tipo e estrutura dos compostos eletrodepositados a partir de uma solução de nitrato de uranila em meio orgânico(31).



**Figura 15** - Distribuição superficial de traços obtidos pela irradiação de um filme de nitrato de urânio.



**Figura 16** - Distribuição superficial de traços obtidos pela irradiação de um monocristal natural de  $UO_2$ .

Experiências realizadas<sup>(32)</sup> indicam ser  $UO_2(NO_3)_2$  contendo traços de  $UO_3$ . Assim sendo, os valores da densidade e peso molecular a serem empregados, no cálculo de  $COS \Theta_c$ , deveriam ser bem menores que a do nitrato de uranila hexahidratado ( $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ ).

Os valores do  $COS \Theta_c$  determinados no caso de filmes finos ( $\delta < R$ ) não serão empregados posteriormente.

### 3.2 - ESTUDOS DE PERFIS

A finalidade deste estudo foi caracterizar o perfil da interface massa combustível-revestimento, no caso dos elementos combustíveis do Reator Argonauta. A importância de sua caracterização prende-se à necessidade de distinguir-se, na região danificada sobre o detector, quais os traços que tiveram sua origem causada por fragmentos de fissão provenientes da massa combustível daqueles provenientes do revestimento. Assim sendo, seria possível determinar-se a distribuição do urânio presente na estrutura do revestimento, presença devido à ocorrência do fenômeno de difusão térmica, durante o aquecimento da amostra, ou mesmo devido ao recuo dos átomos de urânio da massa combustível para o revestimento, pelas colisões com os fragmentos na fissão do  $U^{235}$ .

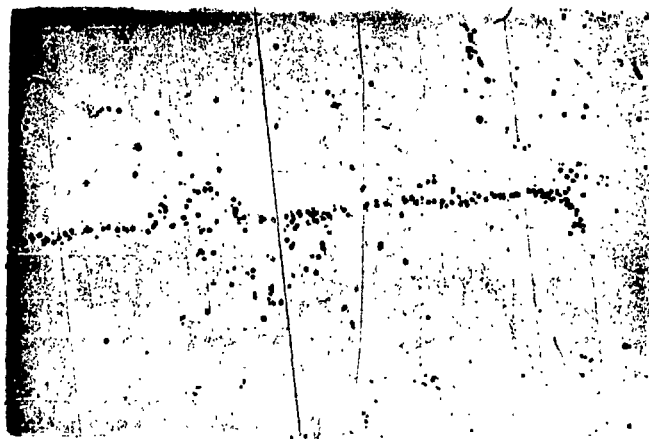
Para este fim, várias amostras, preparadas conforme seção 2.2.1, foram irradiadas. A Figura 17 ilustra o perfil do revestimento de uma pastilha preliminarmente irradiada no Reator do Instituto de Energia Atômica - SP, com uma fluência de neutrons térmicos de  $2,8 \times 10^{17}$  neutrons/cm<sup>2</sup>. Como se vê, não é possível perceber-se a espessura da camada de massa combustível que ainda permanece aderida à parede do revestimento (contorno inferior do revestimento, Figura 17). Pela irradiação posterior, em contacto com um detector, com uma fluência de neutrons térmicos de  $4,46 \times 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>, obteve-se para a camada o perfil de traços visto na Figura 18. Vê-se no caso delineado o perfil da camada pela maior densidade de traços. Verifica-se, tanto na região do detector em contacto com o revestimento, como naquela em contacto com o plástico, a presença de traços, significando que ambos estavam contaminados. Essa contaminação deve-se ao fato de que a amostra, após o polimento usual e lavagem com ácido nítrico fervente, não foi lavada com água quente, não sendo removido, portanto, o nitrato de uranila residual.

No caso da Figura 17 nota-se perfeitamente a diferença de contornos entre a face externa (acima) e a face interna (abaixo). O contorno da face em contacto com a massa combustível apresenta uma irregularidade muito maior.

A Figura 19 mostra uma região de uma das partes do revestimento de uma pastilha sem nenhuma preparação; também neste caso uma camada de massa combustível



**Figura 17 - Perfil parcial do revestimento de uma pastilha de elemento combustível do Reator Argonauta. Aumento de 50X.**



**Figura 18 - Perfil parcial de traços do filme de  $U_3O_8$  que permaneceu aderido ao revestimento visto na Figura anterior. Aumento de 50X.**

não perceptível permaneceu aderida ao revestimento, ficando claro a irregularidade da superfície de contacto entre o revestimento e a massa combustível.

A Figura 20 mostra o perfil obtido irradiando-se a amostra anterior com uma fluência de neutrons térmicos de  $5,55 \times 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>. Vê-se perfeitamente delineado o contorno da interface. No presente caso a amostra foi preparada passando-se sucessivamente nas lixas de grão 240, 320, 400 e 600 e, posteriormente, sem polir com alumina, lavada com ácido nítrico e água fervente. Pode-se observar as estrias deixadas pela lixa 600 sobre a superfície do revestimento. A descontaminação da amostra, neste caso, foi perfeita, pois não se observam traços nas regiões do detector em contacto com o revestimento e o plástico.

Preparou-se uma amostra a partir de uma pastilha, que foi previamente aquecida num forno por um tempo de 1.570 horas, a uma temperatura de  $540 \pm 15^\circ\text{C}$ . Neste caso não foi processada, por raspagem mecânica, a separação da massa combustível do revestimento, permanecendo uma espessa camada aderida a este último. Do processo de preparação da massa combustível e fabricação das placas planas, sabe-se que a massa combustível é constituída de uma dispersão de  $\text{U}_3\text{O}_8$ , e que os grãos que a constituem tem uma textura orientada<sup>(29)</sup>. A fotografia correspondente à amostra aquecida, Figura 21, confirma o fato. As partes mais claras são constituídas de partículas deformadas do metal do revestimento, enquanto que as mais escuras são constituídas do combustível.

A Figura 22 mostra uma fotografia dos traços obtidos a partir da amostra anterior após irradiação com fluência de neutrons térmicos de  $4,46 \times 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>. Verifica-se que as regiões do detector que estavam em contacto com as partículas de alumínio da camada também apresentam traços significando que as mesmas contêm urânio em sua estrutura. A espessura da camada de dispersão (Figura 21) é equivalente à espessura da região que contem os traços (Figura 22) num dado ponto. Diante deste fato, torna-se difícil fixar, com precisão, na região tracejada, a linha de separação entre a dispersão e o revestimento. Segundo Smith<sup>(30)</sup>, em temperaturas superiores a  $200^\circ\text{C}$ , compostos intermediários como  $\text{UAl}_2$ ,  $\text{UAl}_3$  e  $\text{UAl}_4$ , etc., são formados na interface, devido ao fenômeno de interdifusão sendo a interface então constituída de várias regiões, cada uma formada por um dado composto intermetálico. Tal fenômeno, responsável pela formação de compostos intermetálicos, justificaria a presença de urânio nas partículas de alumínio da massa combustível. Ainda Smith diz que testes controlados mostram que o urânio difunde cerca de 700 microns em aproximadamente 4 dias, a  $450^\circ\text{C}$ . Desta última afirmação, conclue-se que no caso da amostra, cujo perfil é mostrado em parte na Figura 21, ocorreu a difusão térmica de urânio da interface no revestimento. Como não foram observados traços que permitam comprovar a afirmação, pois a região do revestimento em contacto com o detector não apresenta traços, conclue-se que a concentração de urânio difundida é tão baixa que não pode ser detectada por essa técnica, ao menos para fluência de até  $10^{12}$  neutrons/cm<sup>2</sup>. Talvez para irradiações com fluências mais elevadas, tal concentração possa ser medida.



Figura 10 - Perfil parcial do revestimento de alumínio de uma pastilha de elemento combustível. Aumento de 200X.

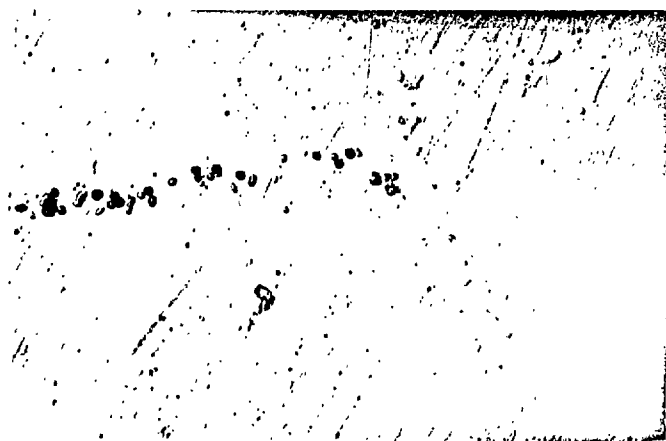


Figura 20 - Perfil de traços correspondente ao filme de  $U_3O_8$  que permaneceu aderido ao revestimento visto na Figura 19.





**Figura 21 - Revestimento de alumínio contendo, aderida, uma espessa camada de massa combustível.**

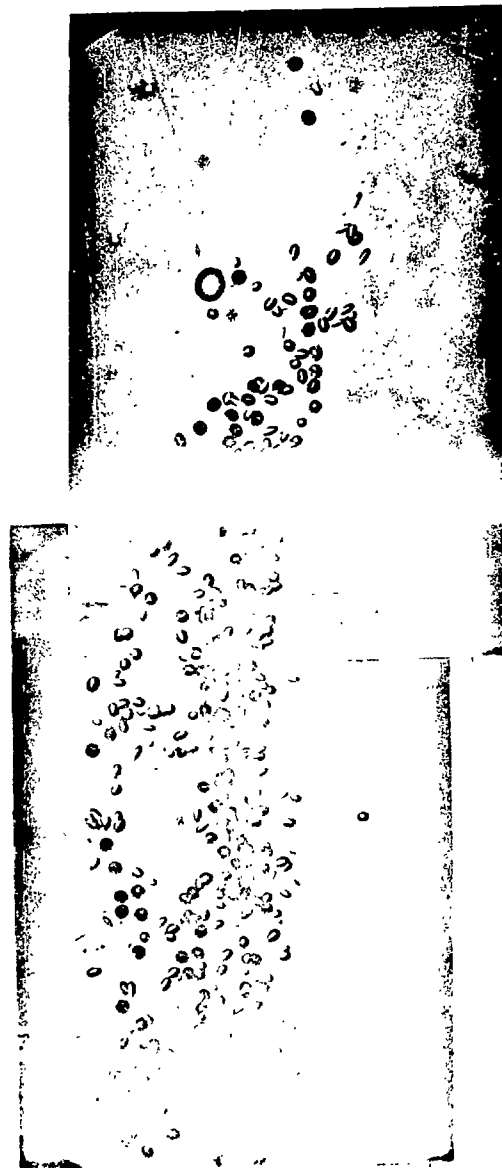


Figura 22 - Perfil de traços da camada de massa combustível vista na Figura anterior.

### 3.3 - ESTUDO DE CONTAMINAÇÃO

Com a finalidade de verificar o grau de contaminação de diversos materiais de uso corrente durante os trabalhos de laboratório, foram irradiados com a fluência de neutrons térmicos de  $6 \times 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup> os seguintes materiais: pós residuais, lixas e revestimentos de alumínio.

#### 3.3.1 - PÓS RESIDUAIS

Vários tipos de pós residuais foram irradiados. Um primeiro tipo foi retirado do fundo do tanque de captação da água de refrigeração da polidora manual. A presença de traços, com uma densidade baixa, da ordem de  $2,41 \times 10^4$  traços/cm<sup>2</sup>, foi verificada, significando que o mesmo estava contaminado. Outro tipo foi coletado, mergulhando-se um pedaço de papel de filtro no óleo utilizado na refrigeração de um monocristal natural de dióxido de urânio, que foi cortado numa máquina de cortar. Neste caso, a superfície do detector apresentou uma densidade de aproximadamente  $2,23 \times 10^5$  traços/cm<sup>2</sup>. A Figura 23 mostra, para um aumento de 200X, os traços obtidos no caso irradiação do papel que foi mergulhado em óleo contaminado. Essa fotografia foi utilizada para contagens de traços. Pode-se notar a variação da densidade superficial de traços de um extremo para outro. A Figura número 24, que corresponde à Figura 23, só que o aumento no caso é de 50X, serve para comprovar a má qualidade do vidro para ser utilizado como detector. Nota-se que o tamanho de traço diminui no sentido da direita para a esquerda, significando que a velocidade de ataque à superfície do vidro não foi constante, ou seja, as propriedades do vidro variavam de ponto para ponto. Um terceiro tipo de pó foi coletado, sobre a área utilizada para quebra de ampolas de quartzo contendo amostra de urânio enriquecido a 20%, que haviam sido irradiadas no Reator do IEA-SP. Não foram verificados traços sobre a superfície do detector.

#### 3.3.2 - LIXAS

Lixas de grãos 240, 320, 400 e 600 que foram usadas na polidora manual para polir amostras contendo urânio enriquecido a 20%, foram irradiadas. Como não foram observados traços sobre os detectores usados neste caso, conclui-se que a água de refrigeração das lixas durante o polimento promovia o arraste das partículas de U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> a um nível não detectável por essa técnica.

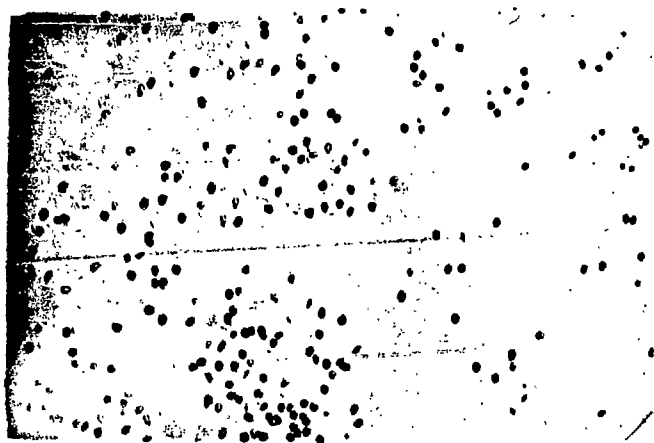


Figura 23 - Traços obtidos pela irradiação de uma amostra contendo óleo contaminado com U<sup>235</sup>. Aumento de 200X.



Figura 24 - Variação do tamanho do traço devido à não homogeneidade das propriedades do vidro. Aumento de 50X.

### 3.3.3 - REVESTIMENTO DE ALUMÍNIO

Com a finalidade de verificar o grau de descontaminação após o emprego de um determinado processo, algumas amostras de revestimento foram estudadas.

Uma amostra de revestimento contendo uma camada de massa combustível cuja remoção por meios mecânicos não foi possível, foi fervida por 20 minutos numa solução de  $\text{HNO}_3$  1N e posteriormente lavada com água quente. A face do revestimento que continha urânio foi então irradiada, com uma fluência de neutrons térmicos de  $6,9 \times 10^{10}$  neutrons/cm<sup>2</sup> em contacto com um detector. A Figura 25 mostra que o alumínio ainda estava contaminado. A observação ao microscópio da área danificada sobre o detector permitiu verificar que em determinadas regiões, como é o caso da Figura, o alumínio estava bastante contaminado e que em outras a contaminação, se existisse, não era detectável, pois não apresentava traços. A Figura 26 mostra uma fotografia da amostra de alumínio que deu origem aos traços da Figura anterior. Vê-se que a região correspondente ao canto inferior esquerdo tem um aspecto diferente das demais, sendo esta região a que deu origem à maior densidade de traços da Figura anterior.

Mais três tipos de amostras de revestimento foram preparados para se processar a descontaminação: uma primeira sem nenhuma preparação prévia, uma segunda aquecida por um tempo de 371 horas, a 537°C e uma terceira irradiada com uma fluência de neutrons térmicos de  $4 \times 10^{17}$  neutrons/cm<sup>2</sup>. Cada uma destas amostras foram fervidas durante cinco minutos numa solução de  $\text{HNO}_3$  5N, e a seguir refervidas 4 vezes em períodos de dois minutos em  $\text{HNO}_3$  1N e finalmente 4 vezes em períodos de 2,5 minutos em água. Após isso, foram irradiadas em contacto com detectores com uma fluência de  $3 \times 10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup>.

Nestes casos os detectores não apresentavam traços, significando que as mesmas foram descontaminadas a um nível não detectável por essa técnica.

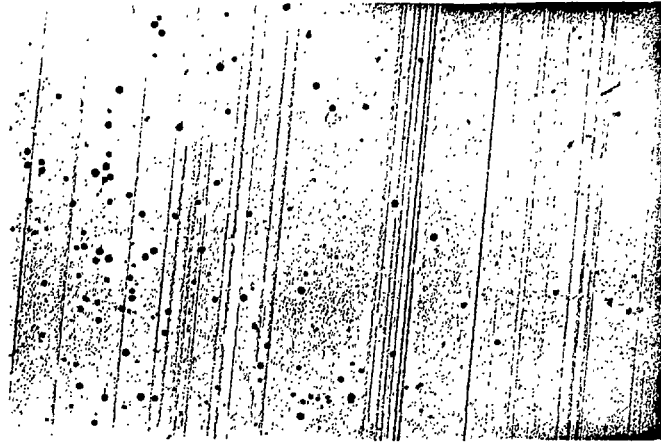


Figura 25 - Traços provenientes do urânio residual à descontaminação do revestimento de alumínio. Aumento de 200X.



Figura 26 - Superfície do revestimento do alumínio contaminado. Aumento de 200X.

#### 4. CONCLUSÕES

São as seguintes as conclusões:

1. O vidro nacional possui uma sensibilidade baixa para ser usado como detector de traços originados por fragmentos da fissão do urânio.
2. Os valores do fator de geometria da técnica etch-pit são válidos particularmente para: tipo de vidro utilizado, as condições de irradiação e revelação empregadas, espessura e compostos de urânio da amostra.
3. O emprego da técnica etch-pit no estudo das amostras obtidas a partir de elementos combustíveis do Reator Argonauta do IEN mostrou a existência de interações entre as estruturas da massa combustível e o alumínio do revestimento.
4. A técnica etch-pit pode ser empregada em medidas de contaminação de sólidos, desde que a mesma esteja dentro dos limites detectáveis por essa técnica.
5. A técnica etch-pit pode ser aplicada a vários tipos de medidas envolvendo urânio, desde que o tipo e qualidade do detector sejam melhorados.

## 5. LISTA DE REFERÊNCIAS

1. E. C. H. Silk e R. S. Barnes, Examination of fission fragments tracks with an Electron microscope, *Phil. Mag.* **4**, 970 (1959).
2. R. L. Fleischer, P. B. Price e R. M. Walker, Solid state track detector: applications to nuclear science and geophysics, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **15**, 1 (1965).
3. R. L. Fleischer, P. B. Price e R. M. Walker, Nuclear track in solids, *Sci. Am.*, June 30 (1969).
4. P. B. Price e R. M. Walker, Identification of energetic heavy nuclei with solid dielectric track detectors: applications to astrophysical and planetary studies, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **21**, 295 (1971).
5. P. B. Price e R. M. Walker, Observation on fossil particle track in natural micas, *Nature*, **196**, 732 (1962).
6. P. B. Price e R. M. Walker, Fossil tracks of charged particles in mica and the age of minerals, *J. Geophys. Res.* **68**, 4847 (1963).
7. R. L. Fleischer, P. B. Price, R. M. Walker e L. S. B. Leakey, Fission - track dating of bed I, Olduvai George, *Science*, **148**, 72 (1965).
8. R. L. Fleischer, J. R. M. Viertel, P. B. Price e F. Aumento, Mid Atlantic Ridge: age and spreading rates, *Science*. **161**, 1339 (1968).
9. D. P. Luyendyk e D. E. Fisher, Fission track age of magnetic anomaly 10: A new point the sea-floor spreading curve, *Science*. **164**, 1516 (1969).
10. R. L. Fleischer e P. B. Price, Glass dating by fission fragment tracks, *J. Geophys. Res.* **69**, 331 (1964).
11. R. M. Walker, P. B. Price e R. L. Fleischer, A versatile disposable dosimeter for slow and fast neutrons, *Appl. Phys. Rev. Letters*, **3**, 28 (1963).
12. M. Maurette, J. Mory e R. Walker, Registration of fission fragment track in several substances and their use in neutron detection, *Int. J. Appl. Rad. Isot.* **15**, 289 (1963).
13. P. R. Prevo, R. E. Dahl e H. H. Yoshikawa, Thermal and fast neutron detection by fission - track production in mica, *J. Appl. Phys.*, **35**, 2636 (1964).
14. M. Maurette, P. Pellas e R. M. Walker, Cosmic - ray - induced particles track in a meteorite, *Nature*, **204**, 821 (1964).



15. R. L. Fleischer, P. B. Price e R. M. Walker, Spontaneous fission tracks from extinct  $\text{Pu}^{244}$  in meteorites, *J. Geophys. Res.*, **70**,2703 (1965).
16. R. L. Fleischer, P. B. Price, R. M. Walker, M. Maurette e G. Morgan, Tracks of primary cosmic rays in meteorites, *J. Geophys. Res.*, **72**,355 (1967).
17. P. B. Price, R. S. Rajan e A. S. Tamhane, On the pre-atmospheric size and maximum space erosion rate of stony-iron meteorite, *J. Geophys. Res.*, **72**,1377 (1967).
18. G. H. Wasserburg, J. C. Huneke e D. S. Burnett, Correlation between fission tracks and fission type xenon in meteorite Whitlockite, *J. Geophys. Res.*, **74**,4221 (1969).
19. D. Lele e R. S. Rajan, Observation on space irradiation of individual crystals of gas-rich meteorite, *Nature*, **223**,269 (1969).
20. P. Pellas, G. Pompeau, J. C. Lorin, H. Reeves e J. Audouze, Primitive low-energy particle irradiation of meteoritic crystals, *Nature*, **223**, 272 (1969).
21. D. J. Barber, I. D. Hutcheon e P. B. Price, Extralunar dust in Apollo cores? , *Science*, **171**, 372 (1971).
22. P. B. Price e R. M. Walker, A simple method of measuring low uranium concentrations in natural crystals, *Appl. Phys. Lett.*, **2**, 23 (1963).
23. H. S. Rosenbaum e J. S. Armijo, Fission track as a metallographic tool, *J. Nucl. Mat.*, **22**, 115 (1967).
24. T. S. Elleman e D. Kesler, Applications of fission fragments etch-pit techniques in uranium detection, *Nucl. Appl. Tech.*, **7**, 170 (1969).
25. J. Anchieta e W. Nóbrega, Manual do Reator Argonauta, Publicação Interna do IEN - Rio de Janeiro (1966).
26. Vários Autores, Handbook of Chemical and Physics, CRC-PRESS-Chemical Rubber Co. (1972 - 1973).
27. J. R. Lamarsh, Introduction to Nuclear Reactor Theory, Addison-Wesley Publishing Co., Inc. (1966).
28. L. D. Mears e T. S. Elleman, The diffusion of recoil fission fragments from solid surfaces calculated release curves, USAEC Rept., ORO-3508-2, Division of Technical Information, U. S. Atomic Energy Commission, Washington, D. C. (1967).
29. J. D. T. Capochi, S. H. L. Cintra, E. F. Gentile, Estudo de fabricação de combustíveis planos com núcleo de cermetos de 65%  $\text{U}_3\text{O}_8$  - 35% Al revestidos com liga de alumínio, Publicação do Instituto de Energia Atômica, São Paulo, **178** (1968).

30. C. O. Smith, *Nuclear Reactor Materials*, Addison-Wesley Publishing Co., (1967).
31. A. Corsini, M. C. I. C. and R. D. MacFarlane, *Analytical Chemistry, Chemistry in Canada*, 37, 30 (1965).
32. E. S. Amorim, *Eletrodeposição molecular - Preparação de fontes de material radioativo - Tese de Mestrado*, Instituto Militar de Engenharia, Rio de Janeiro (1972).
33. R. Stasiulevicius, *Espectrometria de Neutrons no Reator Argonauta, Trabalho apresentado na Reunião Anual da S.B.P.C., Curitiba-PR (1971)*.

## 6. ANEXOS

### 6.1 - Seção de Choque de fissão para neutrons térmicos do U235.

Utilizando-se a expressão (27)

$$\sigma_f = \frac{\sqrt{\pi}}{2} g_f(T) \left(\frac{T_0}{T}\right)^{1/2} \sigma_f(E_0)$$

$\sigma_f$  = seção de choque microscópica média de fissão para neutrons térmicos.

$g_f(T)$  = fator que leva em conta o desvio da fissão  $1/v$

$T_0$  = temperatura de neutrons a 2.200 m/s

$T$  = temperatura de neutrons real

$\sigma_f(E_0)$  = seção de choque microscópica de fissão para neutrons térmicos a 2.200 m/s

No presente caso, tem-se:

Elemento fissil U235

$$T = 341 \pm 25^\circ\text{K} \quad (33)$$

$$T_0 = 293,61^\circ\text{K} \quad (27)$$

$$\sigma_f(E_0) = 577,1 \text{ barns} \quad (27)$$

$$g_f(T) = 0,934 \quad (27)$$

Substituindo-se estes valores na expressão, obtém-se  $\sigma_f$  igual a 438,73 barns.

**TESE APRESENTADA POR:**

*Ivanor Sachett*

**IVANOR ANTONIO SACHETT**

**E APROVADA PELOS SR\$:**

*Andres Sy Ong*

**Prof. ANDRESSY ONG, Ph. D.**

*Harvey B. Meieran*

**Prof. HARVEY MEIERAN, Ph. D.**

*Krishan Kumar Chawla*

**Prof. KRISHAN KUMAR CHAWLA, Ph. D.**

