

UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS

FORMAÇÃO E DESPRENDIMENTO DE HÉLIO RADIOGÊNICO  
DE PASTILHAS DE BeO

PAULO EDSON CARDOSO

Tese apresentada à Universidade Federal  
de Minas Gerais para obtenção do grau de  
Mestre em Ciências e Técnicas Nucleares

Belo Horizonte  
1971

II.

A minha esposa

AGRADECIMENTOS

Agradeço,

- ao professor Juarez Távora Veado a orientação e incentivos constantes;

- ao professor Brício T. da Silva Pereira pelo apoio dado a este trabalho;

- aos professores Jair Carlos Mello, Clécio Campi Murta e Omar Campos Ferreira pelas discussões e sugestões;

- ao engenheiro Hertz Freire Batista pela ajuda inestimável;

- ao Instituto de Pesquisas Radioativas da UFMG, na pessoa de seu Diretor, Professor Milton Campos, pelo apoio e incentivo;

- à Alcenir Soares dos Reis pelo trabalho de datilografia do texto;

- às Bibliotecárias Lénira Lúcia dos Santos e Maria Lúcia Donard pela revisão bibliográfica;

- ao desenhista Eugênio Demas Filho, aos técnicos da Divisão de Ciência dos Materiais, e a Sra. Ana Salej Gomes.

SINOPSE

Pastilhas de BeO sinterizadas são irradiadas em reator gerando-se hēlio-4, atravēs de reaões de neutrons com nūcleos de berīlio, do tipo  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$ . A liberaão do hēlio formado foi provocada, apōs a irradiaão, por recozimento dinâmico com patamares isotērmicos, elevando-se a temperatura desde  $25^{\circ}\text{C}$  atē  $1400^{\circ}\text{C}$ . As quantidades de gās formado foram avaliadas utilizando-se as seões de choque eficazes das reaões nucleares mencionadas. As curvas de desprendimento de hēlio-4 evidenciam uma dependēncia com a densidade das pastilhas. Discute-se os resultados experimentais em face dos modelos de liberaão de gases de fissão existentes na literatura.

SYNOPSIS

Sintered BeO pellets were irradiated in nuclear reactor. Reactions of types  $(n,2n)$  and  $(n,\alpha)$  between neutrons and Berillyum nuclei led to the formation of Helium-4. A dynamic heat treatment caused Helium release. The dynamic heat treatment was performed through the increase of temperature from  $25^{\circ}\text{C}$  to  $1400^{\circ}\text{C}$ , in isothermal steps. The amounts of gas formed were evaluated based on the effective cross sections of the nuclear reactions in question. The curves for Helium-4 release showed a dependence with pellet density. The experimental results obtained were compared with those predicted by current fission gas release models.

## S U M Á R I O

1.	INTRODUÇÃO . . . . .	1
2.	REAÇÕES NUCLEARES COM FORMAÇÃO DE HÉLIO-CÁLCULO DA QUANTIDADE DE HÉLIO FORMADA . . . .	3
2.1.	Reações Nucleares . . . . .	3
2.1.1.	Reação $(n, 2n)$ . . . . .	3
2.1.2.	Reação $(n, \alpha)$ . . . . .	4
2.2.	Quantidade de Hélio-4 Formada . . . .	4
2.2.1.	Devido Reação $(n, 2n)$ . . . . .	4
2.2.2.	Devido Reação $(n, \alpha)$ . . . . .	5
2.3.	Valores da Seção de Choque Eficaz Média, $\bar{\sigma}(2n, \alpha)$ das Reações $(n, 2n)$ e $(n, \alpha)$ e do Fluxo de Neutrons Rápidos, $\phi_r$ , do Reator Triga . . . . .	6
2.4.	Número de Átomos de Berílio, $N$ , Disponíveis para as Reações $(n, 2n)$ e $(n, \alpha)$ . . . . .	7
2.5.	Tempo de Irradiação das Amostras, $t$ . . . . .	8
3.	PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL . . . . .	10
3.1.	Preparação das Amostras . . . . .	10
3.1.1.	Do Óxido de Berílio . . . . .	10
3.1.2.	Manipulação . . . . .	10
3.1.3.	Prensagem das Pastilhas . . . . .	11
3.1.4.	Sinterização . . . . .	11

3.2.	Aspecto Micrográfico . . . . .	12
3.3.	Medidas de Porosidade e Densidade .	12
3.4.	Irradiação das Amostras . . . . .	14
3.5.	Recozimento das Amostras - Detecção de Hélio . . . . .	14
4.	RESULTADOS EXPERIMENTAIS . . . . .	16
4.1.	Características das Amostras . . . . .	16
4.2.	Aspectos das Curvas de Desprendimen- to de Hélio . . . . .	18
4.3.	Liberação de He até 1000 <sup>o</sup> C . . . . .	18
4.4.	Fração de Hélio Desprendida . . . . .	20
5.	REVISÃO DA LITERATURA . . . . .	22
5.1.	Revisão dos Efeitos Causados por Ir- radiação no BeO . . . . .	22
5.1.1.	Irradiação em Temperaturas Inferio- res a 100 <sup>o</sup> C . . . . .	24
5.1.2.	Irradiação em Temperaturas entre 100 a 900 <sup>o</sup> C . . . . .	25
5.1.3.	Irradiação em Temperaturas Superiores a 900 <sup>o</sup> C . . . . .	26
5.1.4.	Recozimento de Defeitos de Irradiação no BeO . . . . .	27

5.2.	Comportamento de Gases de Fissão em Material Sólido Irrradiado . . . . .	29
5.2.1.	Modelo da Esfera Equivalente . . . . .	29
5.2.2.	Modelo de Aprisionamento em Defeitos . . . . .	30
5.2.3.	Modelo Dinâmico de Desprendimento de Gases de Fissão . . . . .	31
6.	DISCUSSÃO DOS RESULTADOS . . . . .	33
6.1.	Introdução . . . . .	33
6.2.	Liberação de He . . . . .	34
6.2.1.	Temperaturas Inferiores a 1000°C . . . . .	34
6.2.2.	Temperaturas Superiores a 1000°C . . . . .	35
6.2.3.	Influência da Densidade no Desprendimento do Gás . . . . .	36
6.3.	Considerações sobre Defeitos . . . . .	37
6.3.1.	Defeitos de Irradiação . . . . .	37
6.3.2.	Defeitos Intrínsecos . . . . .	39
6.4.	Explicação do "burst" no Desprendimento de Hélio . . . . .	40
6.5.	Energia Associada ao Processo de Liberação de He . . . . .	40
6.6.	Etapas Sugeridas para Liberação de He . . . . .	41
6.7.	Considerações Finais . . . . .	42

6.8.	Modelo Sugerido pelas Experiências em Recozimento Dinâmico com Patama <u>res</u> Isotérmicos . . . . .	43
7.	CONCLUSÕES . . . . .	45
8.	APÊNDICE - CALIBPAÇÃO DO DETETOR DE FUGA	47
9.	BIBLIOGRAFIA	49



## 1. INTRODUÇÃO

Num programa de fabricação e desenvolvimento de elementos combustíveis para reatores nucleares, é de grande importância para o projeto de elementos combustíveis, tanto do ponto de vista técnico, como de segurança radiológica, conhecer-se o comportamento dos gases de fissão, ou de uma maneira geral, os produtos de fissão gerados nas reações nucleares.

Estudos realizados têm mostrado que os materiais cerâmicos se prestam melhor ao uso em combustíveis nucleares (4), e daí o interesse em dirigir esforços para os combustíveis nucleares de natureza cerâmica, especialmente os óxidos. As experiências com combustíveis reais são extremamente custosas, requerendo aparelhagens complexas e de interpretação difícil. É evidente, por isto, o interesse de se realizarem experiências mais simples, análogas aquelas, que permitam a obtenção de algumas informações e treinamento sobre o comportamento dos gases de fissão em material cerâmico. O óxido de berílio ( $\text{BeO}$ ), devido a suas propriedades cerâmicas e nucleares, fornece um modelo relativamente simples de estudo, tendo sido por isto escolhido para o presente trabalho. O gás de fissão, no caso, é o hélio, pois o berílio quando bombardeado por neutrons rápidos, sofre duas reações principais ( $n, 2n$ ) e ( $n, \alpha$ ), liberando  $\text{He}^4$ , análogo ao Xe e Kr no  $\text{UO}_2$ . Pastilhas de  $\text{BeO}$ , fabricadas por prensagem a frio em matriz cilíndrica e sinterizadas em forno de indução, foram irradiadas no tubo central do Reator Triga do IPR, num fluxo de  $1,4 \times 10^{12} \text{ n rap/s-cm}^2$  e numa temperatura de cerca de  $40^\circ\text{C}$ .

A quantidade total de hélio formada nas reações ( $n, 2n$ ) e ( $n, \alpha$ ) é calculada teoricamente a partir das seções de choque eficazes e do espectro de neutrons rápidos do reator (5).

Este valor é utilizado para se determinar a fração de hēlio desprendida das amostras nos estudos de recozimento. O estudo do desprendimento de He das amostras foi feito apōs a irradiaçāo, em temperaturas variando desde 25° atē cerca de 1400°C, atravēs de recozimento dināmico com patamares isotērmicos. Para detectar o hēlio desprendido das amostras utilizou-se o detetor de fuga tipo 24-120B da Consolidated Electrodynamics. Devido a alta sensibilidade do detetor foi possīvel realizar-se este trabalho, irradiando-se as amostras em doses tão baixas como  $5 \times 10^{16}$   $n_{rap}/cm^2$ .

Os resultados experimentais obtidos são discutidos em face de defeitos intrīnsecos das amostras, alēm de defeitos causados por irradiaçāo. Discutem-se os resultados experimentais, comparam-se estes resultados com os previstos pelos modelos de liberaçāo de gases de fissāo apresentados na literatura.

## 2. REAÇÕES NUCLEARES COM FORMAÇÃO DE HÉLIO - CÁLCULO DA QUANTIDADE DE HÉLIO FORMADA.

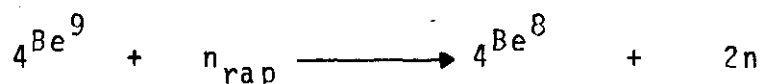
### 2.1. Reações Nucleares

O  $\text{Be}^9$ , quando bombardeado por neutrons com energia superior a 1 MeV ou seja, neutrons rápidos, sofre duas reações nucleares principais, que envolvem formação de hélio. Estas reações nucleares são  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$ .

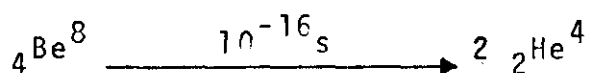
A figura 1 mostra as seções de choque eficazes das reações  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$  em função da energia dos neutrons (1).

#### 2.1.1. Reação $(n,2n)$

Nesta reação o berílio sofre uma fissão nuclear com formação de dois núcleos de hélio e emissão de dois neutrons. Como pode ser visto na figura 1, esta reação só apresenta interesse com neutrons de energia acima de 1 MeV



Em cerca de  $10^{-16}$  segundos, o  $\text{Be}^8$  desintegra-se em dois átomos de hélio -4 (5)



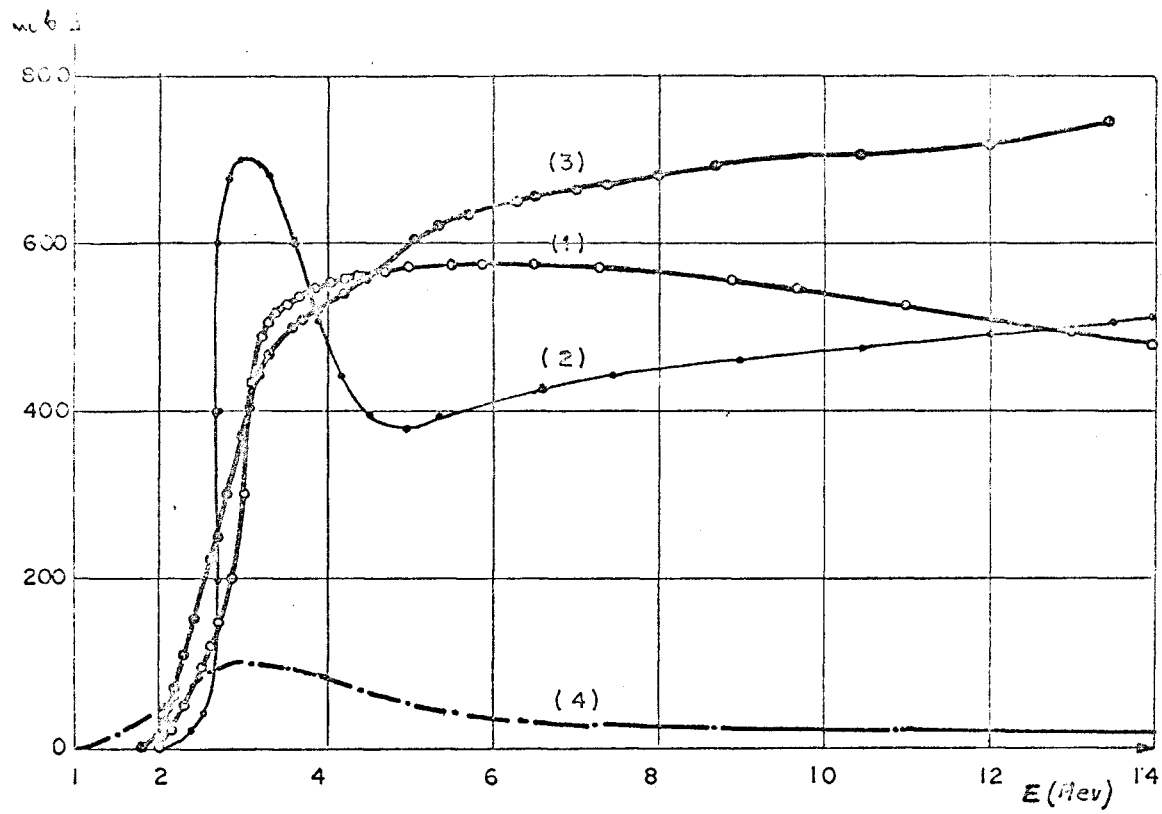
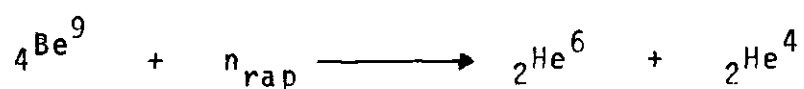


Fig. 1 - Seções de Choque Eficazes das Reações (n,2n) e (n,α) Versus Energia dos Neutrons (DROULERS et al.(5))

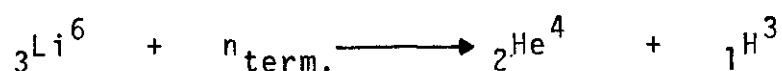
### 2.1.2. Reação (n,α)

Na reação (n,α) o berílio bombardeado por neutrons rápidos sofre a reação de transmutação,



O  ${}^6_2\text{He}$  no período de 0,6 segundos se transforma em  ${}^6_3\text{Li}$  por emissão  $\beta^-$  (5).

A reação secundária



contribui de maneira desprezível para a quantidade total de  ${}^4_2\text{He}$  formado (1) e portanto, não será considerada nos cálculos quantitativos. Na reação acima tem-se ainda que o  ${}^3_1\text{H}$  sofre desintegração, emitindo  $\beta^-$  (meia vida de 12,5 anos) e transformando-se em  ${}^3_2\text{He}$ .

## 2.2. Quantidade de Hélio-4 Formada

### 2.2.1. Reação (n,2n)

Seja  $N$ , o número de átomos de berílio,  $\bar{\sigma}(n,2n)$  a seção de choque eficaz média da reação (n,2n), e  $\phi_r$  o fluxo de neutrons rápidos do reator ( $E_n > 1$  MeV); a quantidade de  ${}^4_2\text{He}$  formado nessa reação será

$$dQ(n,2n) = 2N\bar{\sigma}(n,2n)\phi_r dt'$$

5.  
 onde  $dQ(n,2n)$  é a quantidade de  $\text{He}^4$  formado devido a reação  $(n,2n)$ , no tempo  $dt'$ .

Segundo DROULERS(5),  $N$  pode ser considerado constante, para efeito de cálculo da quantidade de  $\text{He}^4$  formado, em doses integradas de neutrons rápidos abaixo de  $10^{22}$  n/cm<sup>2</sup>. Assim, integrando-se a equação acima, de  $t' = 0$  até  $t' = t$ , e considerando-se que a quantidade inicial de  $\text{He}^4$ ,  $Q_0$ , é zero no tempo  $t' = 0$ , vem

$$Q(n,2n) = 2N\bar{\sigma}(n,2n)\phi_r t$$

### 2.2.2. Reação (n, $\alpha$ )

Do mesmo modo que na reação  $(n,2n)$ , a quantidade de  $\text{He}^4$  formado devido a reação  $(n,\alpha)$  pode ser calculada tendo-se a seção de choque eficaz média dessa reação,  $\bar{\sigma}(n,\alpha)$ , e o fluxo rápido do reator,  $\phi_r$ . Assim,

$$dQ(n,\alpha) = N\bar{\sigma}(n,\alpha)\phi_r dt'$$

Integrando-se esta equação de  $t'=0$  até  $t'=t$ , tomando-se  $N$  constante, e a quantidade de  $\text{He}^4$  no tempo  $t=0$  nula, resulta

$$Q(n,\alpha) = N\bar{\sigma}(n,\alpha)\phi_r t$$

A quantidade total de  $\text{He}^4$  formado será

$$Q = Q(n,2n) + Q(n,\alpha),$$

ou

$$Q = 2N\bar{\sigma}(n,2n)\phi_r t + N\bar{\sigma}(n,\alpha)\phi_r t.$$

Chamando-se  $\bar{\sigma}(2n,\alpha)$  a seção de choque eficaz média das duas reações consideradas,

$$\bar{\sigma}(2n,\alpha) = 2\bar{\sigma}(n,2n) + \bar{\sigma}(n,\alpha)$$

vem,

$$Q = \bar{\sigma}(2n,\alpha) N \phi_r t$$

### 2.3. Valores de $\bar{\sigma}(2n,\alpha)$ e de $\phi_r$ .

DROULERS et al.(5) apresentam curva de  $\bar{\sigma}(2n,\alpha)$  versus índice do espectro de neutrons rápidos  $\rho$ , representada na figura 2. Estes autores determinaram curva experimental, na qual o valor de  $\bar{\sigma}(2n,\alpha)$  varia com o espectro de neutrons rápidos do reator, definido por um índice  $\rho$ .

Para as experiências em pauta, o valor do índice  $\rho$  foi determinado experimentalmente no Laboratório de Neutrônica da Divisão de Reatores do IPR, e refere-se ao valor de  $\rho$  no local do Reator onde foram irradiadas as amostras.

O índice  $\rho$  é definido como:

$$\rho = \frac{A_S(f)}{A_{A_1}(f)} \times \frac{A_{A_1}}{A_S} = 0,016 \frac{A_{A_1}}{A_S} \quad (55)$$

sendo,

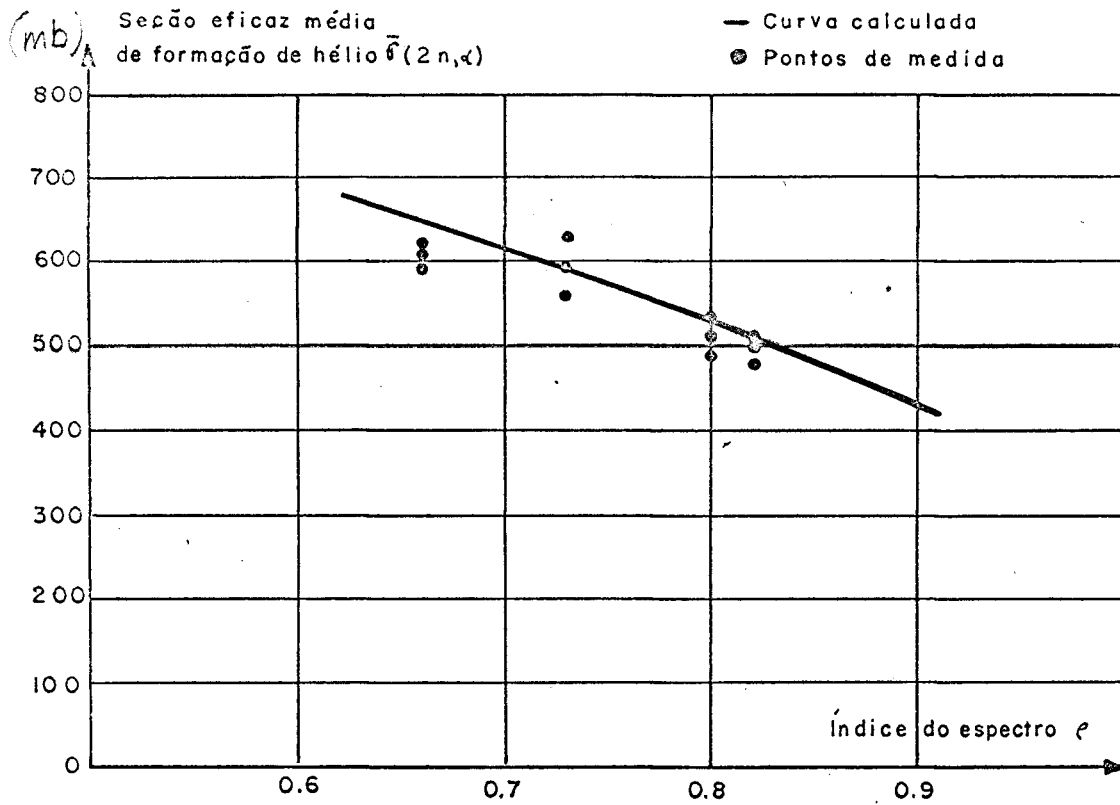


Fig. 2 - Valores da Seção de Choque Eficaz Média  $\bar{\sigma}(2n,\alpha)$  Versus o Índice do Espectro de Neutrons Rápidos do Reator (DROULERS et al(5))



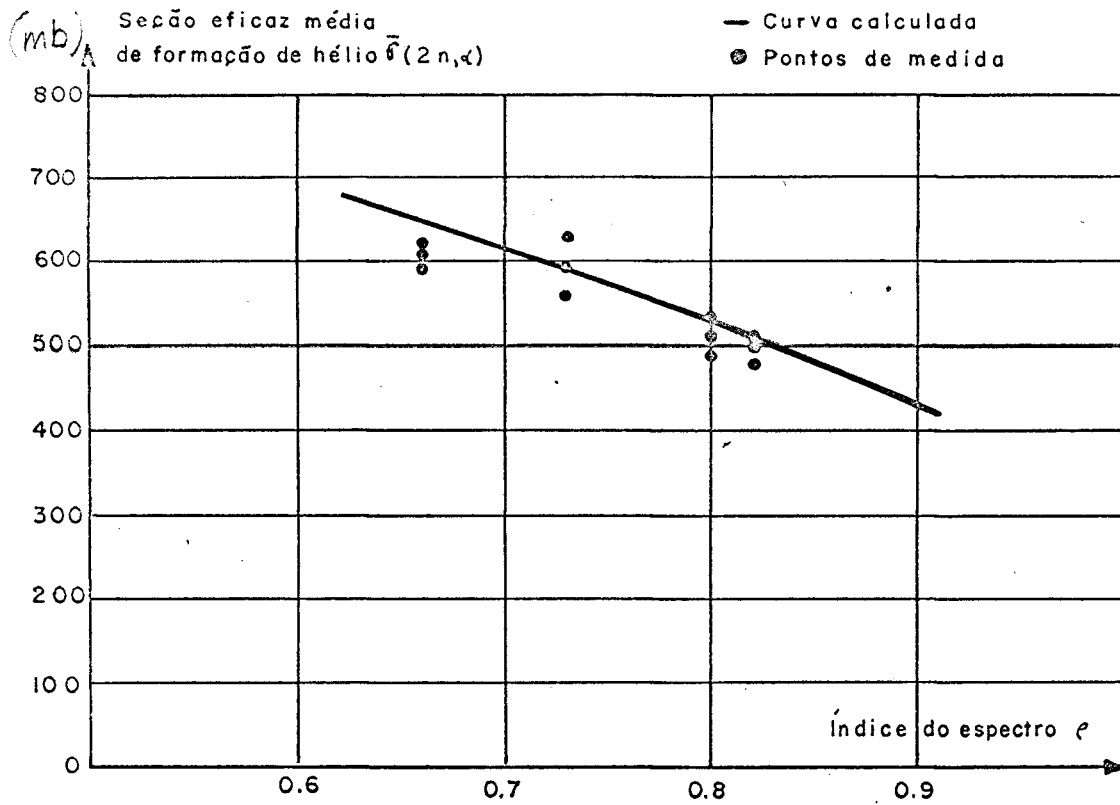


Fig. 2 - Valores da Seção de Choque Eficaz Média  $\bar{\sigma}(2n,\alpha)$  Versus o Índice do Espectro de Neutrons Rápidos do Reator (DROULERS et al(5))

$A_S(f)$  = atividade absoluta do detetor de enxofre no espectro de fissão.

$A_{A_1}(f)$  = atividade absoluta do detetor de alumínio no espectro de fissão.

$A_{A_1}$  = atividade absoluta do detetor de alumínio no local do reator onde foram irradiadas as amostras.

Reação  $Al(n, p^+)Na^{24}$   $E_{min} = 2,7$  MeV.

$A_S$  = atividade absoluta do detetor de enxofre no local do reator onde foram irradiadas as amostras.

Reação  $S(n, \alpha)P$   $E_{min} = 7,5$  MeV

De posse do valor de  $\rho$  e utilizando-se a figura 2 é possível de terminar o valor da seção de choque eficaz média  $\bar{\sigma}(2n, \alpha)$  das reações  $(n, 2n)$  e  $(n, \alpha)$ .

O valor de  $\rho$  medido foi  $\rho = 0,95$ , resultando, pela figura 2,  $\bar{\sigma}(2n, \alpha) = 380$  mb, ou  $0,38 \times 10^{-24}$  cm<sup>2</sup>.

O valor do fluxo total de neutrons rápidos ( $>1$  MeV) na posição onde foram irradiadas as amostras de BeO (tubo central) é de  $1,4 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>-s(7,31)

#### 2.4. Número de Átomos de Berílio, N, Disponíveis para as Reações $(n, 2n)$ e $(n, \alpha)$

O valor de N será considerado por grama de BeO, ou seja,

$$N = \frac{6,03 \times 10^{23}}{25} \text{ at.Be/g BeO}$$

sendo,  $6,03 \times 10^{23}$  = número de Avogadro

25 = peso molecular do BeO

ou

$$N = 0,24 \times 10^{23} \text{ at.Be/g.BeO}$$

#### 2.5. Tempo de Irradiação das Amostras, t

O tempo de irradiação, t, das amostras no tubo central do Reator Triga foi de 10 horas para amostras de números 1 a 8, e de 36,6 horas para amostras 9,10 e 11.

O reator funcionou na potência de 100 KW, ou seja, com fluxo rápido instantâneo de  $1,4 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>.s na posição de irradiação.

Com os valores de  $\bar{\sigma}(2n,\alpha)$ , N,  $\phi_r$  e t, a quantidade total de hélio-4 formada será:

$$Q = 0,38 \times 10^{-24} \cdot 0,24 \times 10^{23} \cdot 1,4 \times 10^{12} \cdot$$

$$\cdot 3,6 \times 10^4 \text{ at.He/g BeO}$$

ou

$$Q = 4,6 \times 10^{14} \text{ at.He/g BeO} \quad \text{para amostras de 1 a 8.}$$

e

$$Q = 1,6 \times 10^{15} \text{ at He/g BeO}$$

para amostras 9,10 e 11, com tempo de irradiação de 36,6 horas.

Segundo BAREAU(1), os valores da quantidade total de He<sup>4</sup> formado, calculados desta maneira, concordam com valores medidos experimentalmente dentro de uma precisão de 5%.

### 3. PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

#### 3.1. Preparação das Amostras

##### 3.1.1. Do Óxido de Berílio

O óxido de berílio foi fornecido pela Divisão de Matérias Primas do IPR, obtido através de precipitação da solução de sulfato de berílio, com amônia, e calcinação a  $800^{\circ}\text{C}$ . Uma das amostras - nº 8 - foi obtida em Saclay, França, pelo proceso de decomposição de oxalato de berílio trihidratado, e é de pureza nuclear.

Análises de impurezas das amostras obtidas no IPR foram realizadas pela Divisão de Quí<sup>í</sup>mica e revelaram os seguintes teores das impurezas mais prováveis (8):

Si	-	1700	ppm
Fe	-	57	ppm
Na	-	58	"
Ca	-	65	"
Cu	-	traços	

O boro não foi analisado, mas é considerado abaixo de 3 ppm(8).

##### 3.1.2. Manipulação

O  $\text{BeO}$  em pó, quando aspirado através das vias respiratórias, pode causar danos aos pulmões, e em contato frequente

com a pele, pode provocar reações de natureza alérgica, sendo portanto considerado substância tóxica (3,8,10). Cuidados especiais foram tomados na manipulação do BeO. A manipulação do BeO em pó foi realizada dentro de uma "caixa seca" e a das pastilhas foi feita usando-se luvas.

### 3.1.3. Prensagem das Pastilhas

O pó de BeO foi prensado a frio, em matriz de aço de forma cilíndrica, por meio de pistão. Não foi usado ligante, e o BeO se mostrou com boas qualidades de prensagem. A pressão utilizada na compactação das pastilhas obtidas no IPR foi de  $1,59\text{t/cm}^2$  - com exceção da amostra 11-. A amostra 8, obtida em Saclay, foi prensada isostaticamente a  $4\text{t/cm}^2$  (8).

### 3.1.4. Sinterização

O BeO é facilmente sinterizável, podendo as temperaturas de sinterização variar numa faixa bastante grande (1350 a  $1800^{\circ}\text{C}$ ) (13,23). A pressão de compactação, assim como temperatura e tempo de sinterização, irão influir na densidade da pastilha sinterizada.

A sinterização das pastilhas foi realizada em forno de indução Heraeus - da Escola de Engenharia da UFMG - em vácuo de cerca de  $10^{-2}$  mmHg. O tempo gasto para se elevar a temperatura do forno até a temperatura de sinterização foi de cerca de 1 hora e 30 minutos, permitindo-se o desprendimento de material volátil e gases aprisionados, evitando-se assim o esboroamento da pastilha (9).

A tabela 1 mostra a densidade e porosidade das pastilhas com os vários tempos e temperaturas de sinterização utilizados. A pressão de compactação, com exceção das amostras 8 e 11, foi de  $1,59 \text{ t/cm}^2$ . A amostra 5, apresenta a densidade (ou porosidade) incoerente em relação às outras amostras, o que pode ser devido à formação de maior quantidade de trincas na prensagem. O mesmo é verificado para a amostra 4 em relação à amostra 3. Os dados da tabela 1 foram obtidos anteriormente à irradiação.

### 3.2. Aspecto Micrográfico

As amostras foram polidas, na sequência de lixas de SiC números 80, 100, 120, 150, 220, 300, 400, 500, 600, após o que, se fez um polimento em alumina azul durante cerca de 44 horas. Fez-se ataque químico com HF a 40% durante 15 minutos (21,22). As figuras 3, 4, 5 e 6 mostram aspectos micrográficos das pastilhas, evidenciando a influência da temperatura de sinterização no tamanho dos grãos (figs. 3, 4, 5).

A figura 7 mostra fotografias tiradas com microscópio eletrônico de varredura JEOL, da Divisão de Ciência dos Materiais do IPR. Nessas fotos observa-se o emaranhado de poros e superfícies irregulares entre partículas pouco sinterizadas. Nota-se também a presença de trincas nestas partículas.

### 3.3. Medidas de Porosidade e Densidade

Foram feitas medidas de densidade e porosidade das pastilhas, do modo como descrito (11), usando-se água destilada

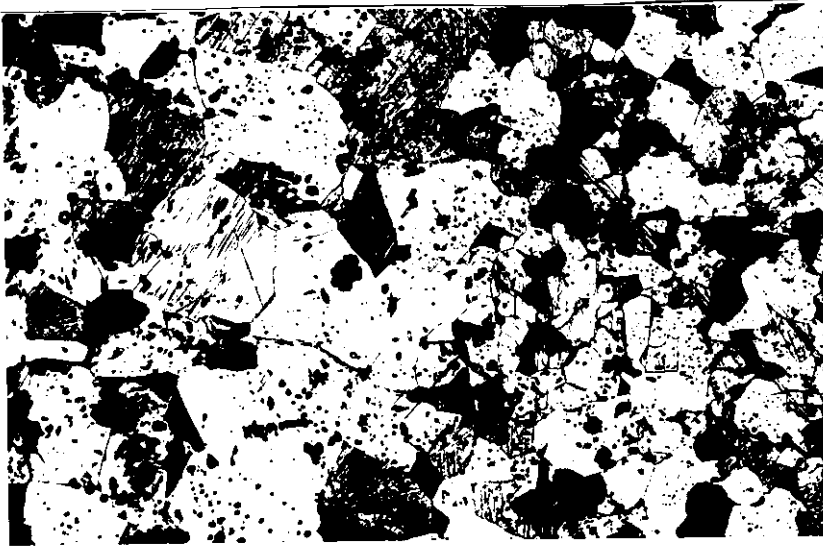


Fig. 3 - Amostra 1 - 100x  
Temperatura Sinterização : 1750°C  
Tempo de Sinterização : 2 horas  
Ataque : HF 40% 15 min.

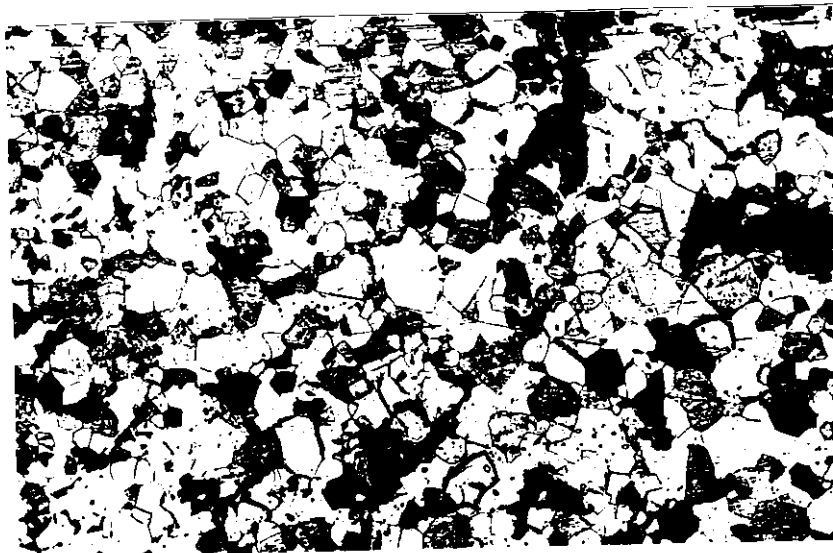


Fig. 4 - Amostra 8 - 100x  
Temperatura Sinterização : 1600°C  
Tempo de Sinterização : 2 horas  
Ataque : HF 40% 15 min.



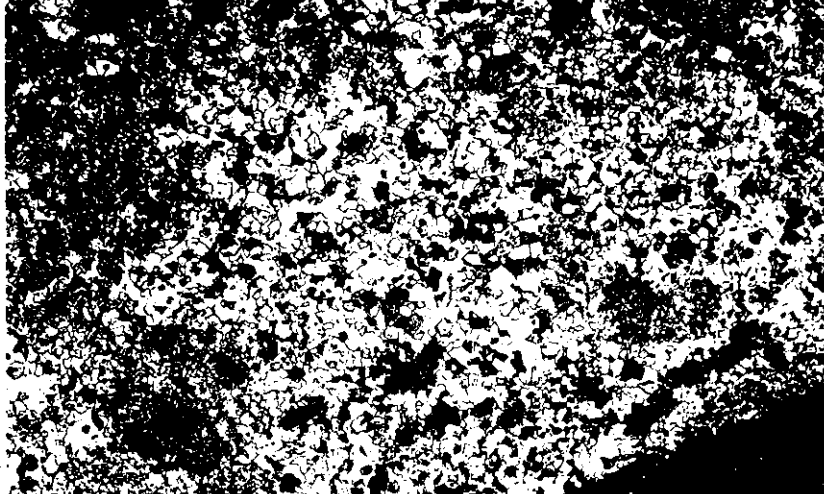
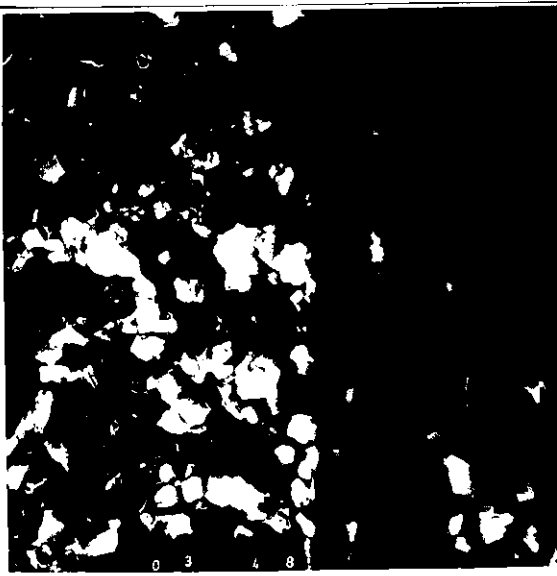


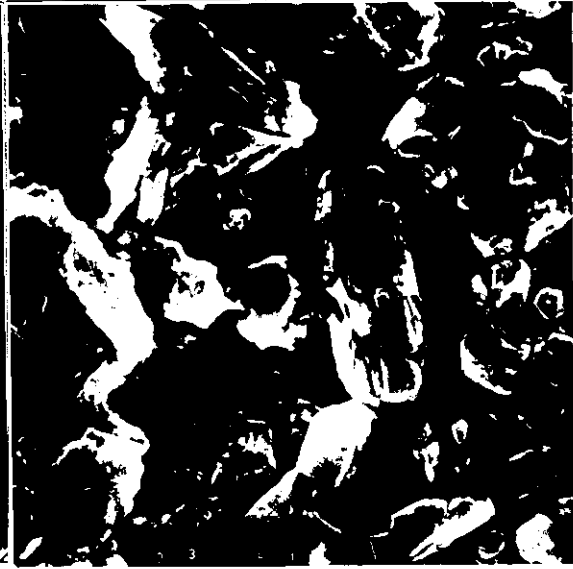
Fig. 5 - Amostra 7 - 100x  
Temperatura de Sinterização: 1450°C  
Tempo de Sinterização : 2 horas  
Ataque : HF 40% 15 min.



Fig. 6 - Amostra 8 - 500x  
Nota-se Poros de Sinterização no  
Interior dos Grãos.



Amostra 6 - 3000x



Amostra 7 - 3000x



Amostra 6 - 10000x



Amostra 7 - 10000x

Fig. 7 - Fotografias Tomadas pelo Microscópio Eletrônico de Varredura JEOL - DCM/IPR.

deionizada como líquido impregnante(8).

As pastilhas foram aquecidas a cerca de  $100^{\circ}\text{C}$  no ar, e em seguida colocadas no sistema de vácuo e impregnação, mostrado na figura 8. Após submetidas a vácuo de cerca de  $10^{-2}\text{mmHg}$  durante uma hora, as amostras foram retiradas e pesadas. Novamente foram introduzidas no sistema para impregnação. Antes da impregnação fêz-se vácuo por cerca de 1 hora, e em seguida o líquido impregnante foi admitido vagarosamente até cobrir as amostras. O sistema foi mantido sob vácuo por cerca de 4 horas, após o que ar foi admitido no vaso, e as pastilhas retiradas e pesadas sob o líquido de impregnação. O excesso de líquido foi removido das amostras com papel absorvente e estas repesadas no ar. A densidade das amostras é dada pela seguinte expressão, citada em (11):

$$\text{densidade} = \frac{\left[ \begin{array}{l} \text{Peso do material seco} \\ \text{no ar.} \end{array} \right] \times \left[ \begin{array}{l} \text{densidade do líquido} \\ \text{impregnante no tempo} \\ \text{de utilização.} \end{array} \right]}{\left[ \begin{array}{l} \text{Peso do material im-} \\ \text{pregnado no ar.} \end{array} \right] \times \left[ \begin{array}{l} \text{Peso do material i-} \\ \text{merso no líquido de} \\ \text{impregnação.} \end{array} \right]}$$

A porosidade aberta das amostras é dada pela expressão:

$$\text{por.aberta} = \frac{\left[ \begin{array}{l} \text{Peso do material im-} \\ \text{pregnado no ar.} \end{array} \right] - \left[ \begin{array}{l} \text{Peso do material se} \\ \text{co no ar.} \end{array} \right]}{\left[ \begin{array}{l} \text{Peso do material im-} \\ \text{pregnado no ar} \end{array} \right] - \left[ \begin{array}{l} \text{Peso do material i-} \\ \text{merso no líquido de} \\ \text{impregnação.} \end{array} \right]}$$

Os resultados das medidas de densidade e porosidade constam na tabela 1(item 4.1), estando de acordo com valores encontrados na literatura(3,13).

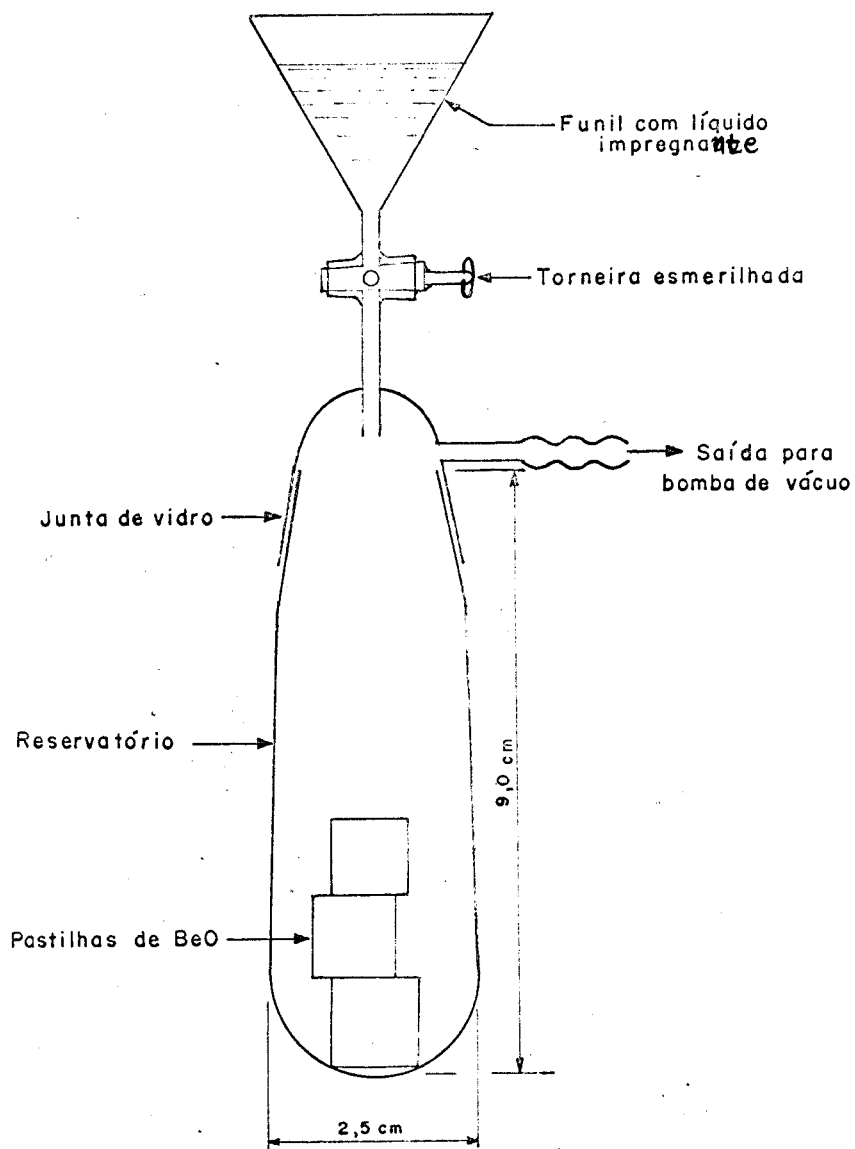


Fig. 8 - Sistema de vidro para impregnação das pastilhas de BeO

A figura 9 mostra a relação entre porosidade e densidade(3).

#### 3.4. Irradiação das Amostras

As amostras de BeO foram irradiadas no tubo central do Reator Triga do IPR, a 100 KW de potência, correspondendo a um fluxo de neutrons rápidos ( $>1$  MeV) na região de irradiação, de  $1,4 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>-s(7).

Para efeito das reações (n,2n) e (n, $\alpha$ ), o fluxo  $\bar{\phi}$  é considerado constante no interior das amostras(5).

A temperatura de irradiação foi de cerca de 40<sup>0</sup>C.

#### 3.5. Recozimento das Amostras - Detecção de Hélio

Em seguida à irradiação, as amostras de BeO foram mantidas em "célula quente" durante cerca de 48 horas para se proceder o "esfriamento" radioativo, após o que foram utilizadas nos estudos de recozimento.

O sistema recozimento-deteção está mostrado na figura 10. Consistiu de um forno aquecedor envolvendo um tubo de quartzo, no interior do qual foi colocada a amostra de BeO. Este tubo é ligado diretamente ao detetor de hélio. O tubo de quartzo foi utilizado até temperatura de cerca de 1300<sup>0</sup>C, e a partir daí se utilizou tubo de alumina.

Utilizou-se para aquecimento das amostras, forno de resistência níquel-cromo, até 900<sup>0</sup>C. Para temperaturas superior-

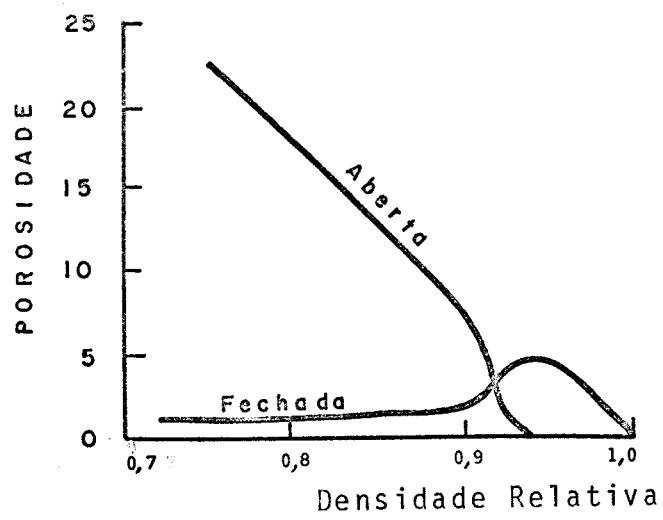


Fig. 9 - Relação de Porosidade Com Densidade BeO (cf.D.T.LIVEY (3)).



Fig. 10 - Fotografia da Montagem do Sistema Aquecimento,  
Detecção de Hélio.

res, até  $1400^{\circ}\text{C}$  foi utilizado forno de resistência de barras de sílica(carboneto de silício).

Na detecção do He desprendido utilizou-se o detetor de fuga tipo 24-120 B da Consolidated Electrodynamics, que é um espectrômetro de massa calibrado para o hêlio. Vácuo de cerca de  $10^{-6}$  mmHg foi necessário para se manter a sensibilidade do detetor, cuja calibração foi feita antes de cada operação, utilizando-se uma garrafa com fuga padrão de He(Apêndice).

O desprendimento de He da amostra de BeO foi registrada em um registrador tipo 680M da Hewlett-Packard - adaptado ao detetor - em papel milimetrado que corria à velocidade de 20 cm/hora.

O recozimento das amostras e a detecção simultânea do hêlio liberado foram efetuados da seguinte maneira:

A temperatura do forno é elevada continuamente até o ponto em que o detetor começa a acusar desprendimento de hêlio da pastilha de BeO irradiada. A temperatura é então estabilizada - temperatura de regime - e o recozimento da amostra é isotérmico. A liberação de hêlio, nessas condições, toma a forma de um pico. Quando a liberação do hêlio anula-se (ou tende assintoticamente para zero) a temperatura é novamente elevada, repetindo-se o mesmo procedimento.

A faixa de temperatura coberta foi de  $25^{\circ}\text{C}$  a  $1400^{\circ}\text{C}$ .



#### 4. RESULTADOS EXPERIMENTAIS

##### 4.1. Características das Amostras

A tabela 1 fornece as características das onze amostras utilizadas, em termos de pressão de prensagem, tempo e temperatura de sinterização, com as conseqüentes densidade e porosidade aberta obtidas.

Indicam-se também as respectivas doses integradas de neutrons rápidos na irradiação.

TABELA I - CARACTERÍSTICAS DAS AMOSTRAS

AMOSTRA	PRENSAGEM ton/cm <sup>2</sup>	TEMPO DE SINTERIZAÇÃO	TEMPERATURA SINTERIZAÇÃO	DOSE RECEBIDA nvt(En>1MeV)	POROSIDADE ABERTA (%)	DENSIDADE (g/cm <sup>3</sup> )
1	1,59	2 horas	1.750	5 x 10 <sup>16</sup>	4,9	2,74
2	1,59	1/2 "	1.750	"	12,1	2,55
3	1,59	1 "	1.750	"	3,6	2,75
4	1,59	1 1/2 "	1.750	"	4,6	2,74
5	1,59	2 1/2 "	1.750	"	6,4	2,70
6	1,59	1 "	1.450	"	18,0	2,43
7	1,59	2 "	1.450	"	14,3	2,50
8	4,00	2 "	1.600	"	0,6	2,91
9	1,59	15 min.	1.300	1,8 x 10 <sup>17</sup>	37,1	1,87
10	1,59	15 min.	1.300	1,8 x 10 <sup>17</sup>	39	1,83
11	0,79	15 min.	1.300	1,8 x 10 <sup>17</sup>	44,7	1,66

#### 4.2. Aspectos das Curvas de Desprendimento do Hélio

A liberação do hélio radiogênico se faz, com o tratamento térmico já descrito, na forma de picos.

As figuras 11,12,13,14 e 15 mostram curvas de desprendimento de hélio das amostras 6 e 2. A temperatura de regime foi a temperatura mantida no recozimento - recozimento iso-térmico, como já se descreveu.

A figura 16 mostra as curvas de desprendimento de hélio, em  $697^{\circ}\text{C}$  e  $744^{\circ}\text{C}$ , da amostra 2.

Na figura 17 vêm-se picos isolados na faixa de temperatura de  $640^{\circ}\text{C}$  a  $740^{\circ}\text{C}$  da amostra 10.

As figuras 18 e 19 mostram, para efeito comparativo, os picos das amostras 9 e 10 na faixa de temperatura  $950^{\circ}\text{C}$  a  $1000^{\circ}\text{C}$ . As amostras 9 e 10 são bastante semelhantes ( Tabela 1), e picos ocorreram em temperaturas próximas, com formas semelhantes.

As figuras 20,21 e 22 mostram os picos de hélio em temperaturas acima de  $1100^{\circ}\text{C}$  para as amostras 9, 10 e 11. Nota-se o alisamento dos picos acima de  $1100^{\circ}\text{C}$ .

#### 4.3. Liberação de He até $1000^{\circ}\text{C}$

A tabela 2 indica a presença de picos de liberação de He nas amostras irradiadas e tratadas até  $1000^{\circ}\text{C}$ . Na tabela 2 foram tomadas faixas de temperaturas arbitrárias, to-

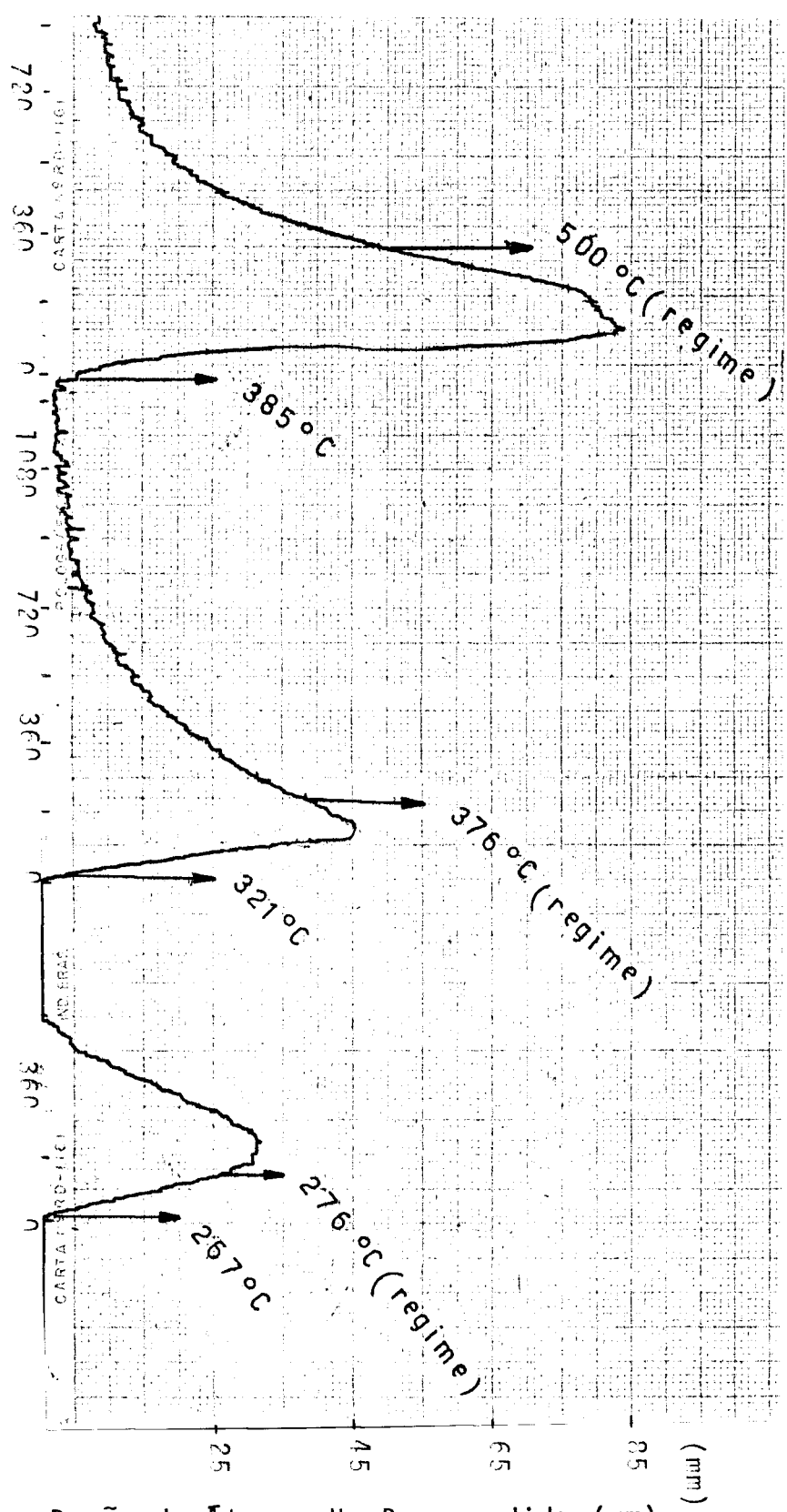


Fig. 11 - Sequência de picos indicando desprendimento de He com início em 267°C, 321°C e 385°C respectivamente.  
 Amostra 6

Pazão de Átomos He Desprendida (mm)  
 $\times 3,8 \times 10^6$  at He/mm-s

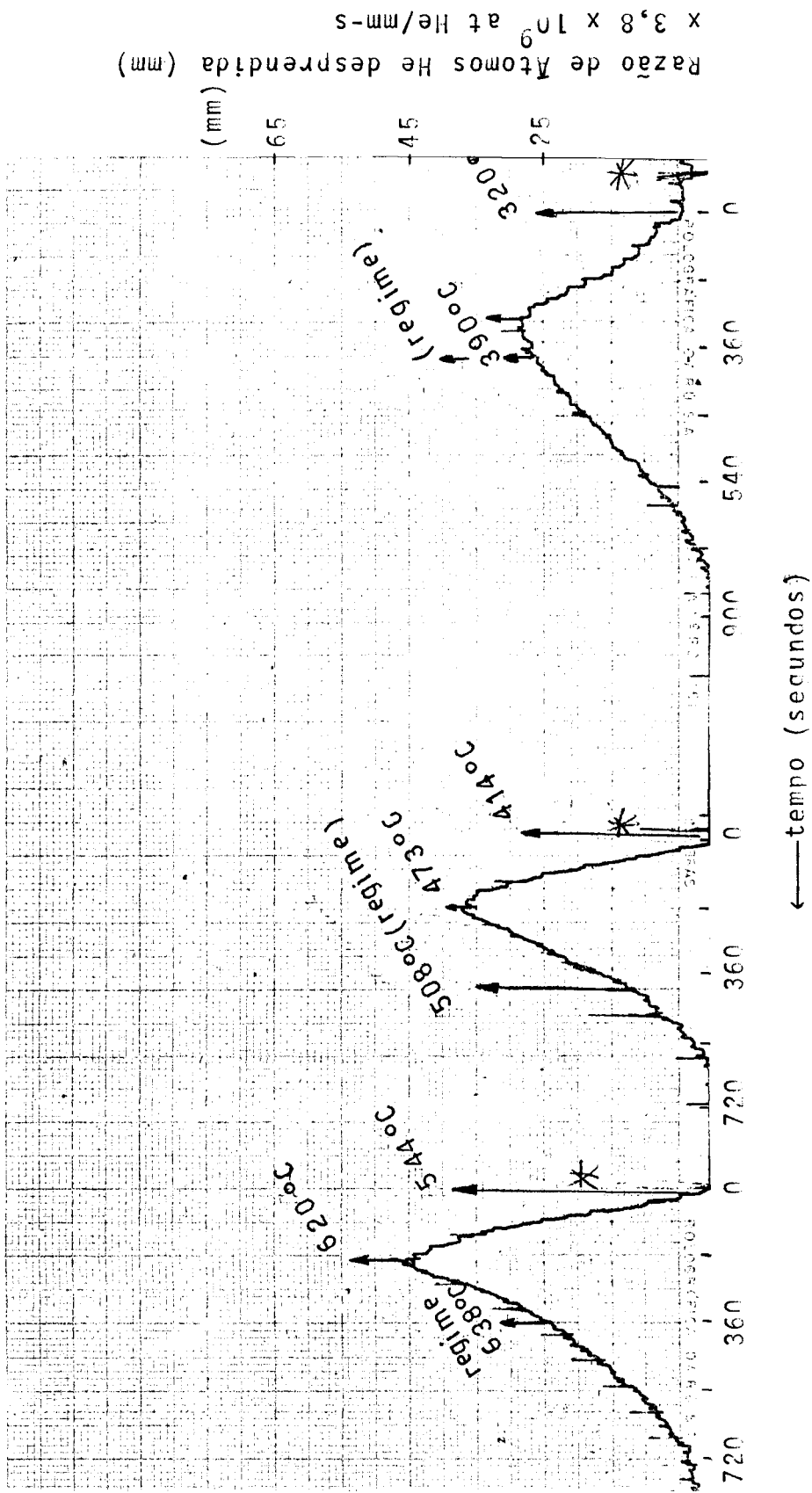


Fig. 12 - Sequência de Picos Indicando Desprendimento de He com Início em 320°C, 414°C e 544°C - Amostra 2

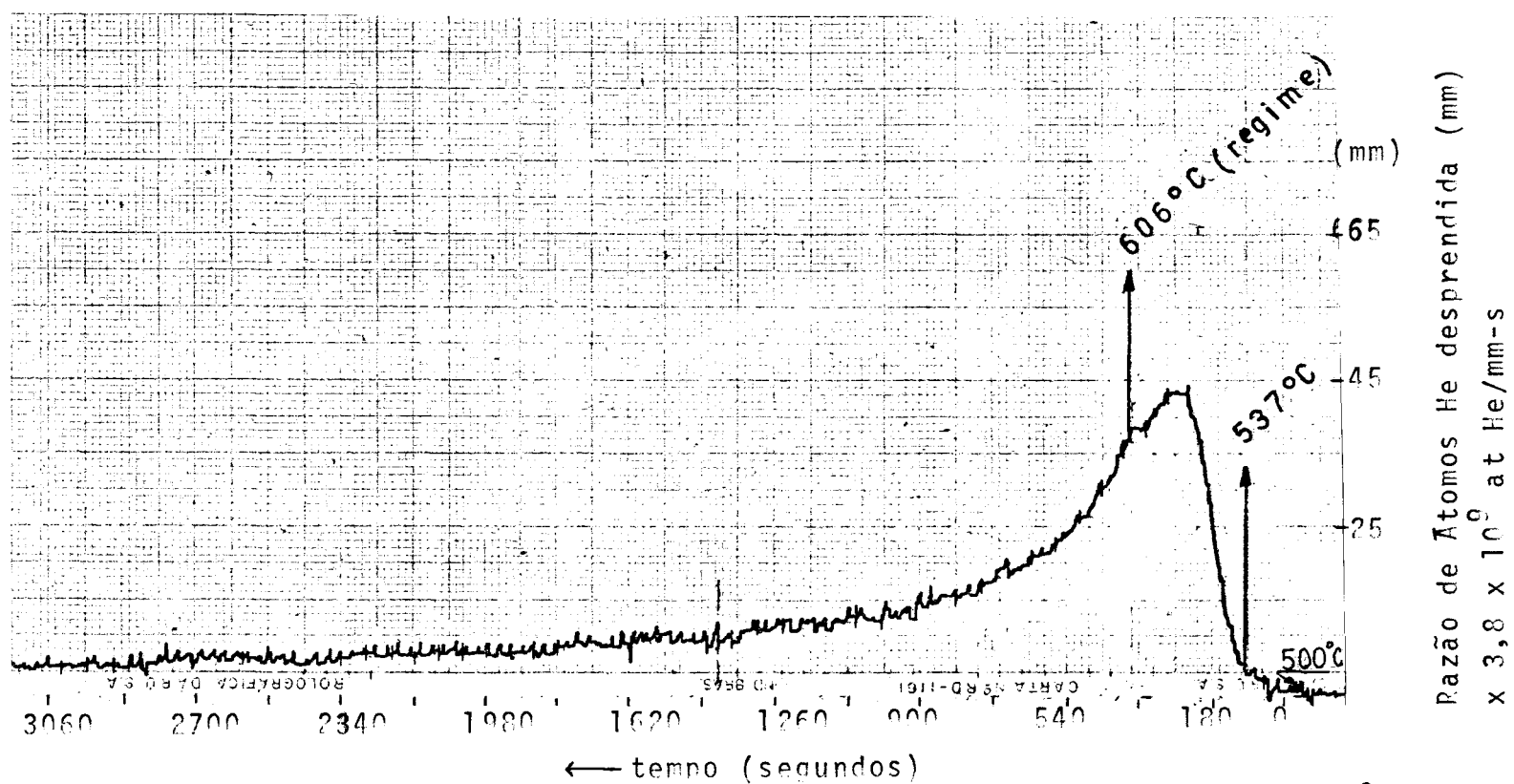


Fig. 13 - Pico Indicando Desprendimento de He com Início em 537<sup>o</sup>C  
Amostra 6

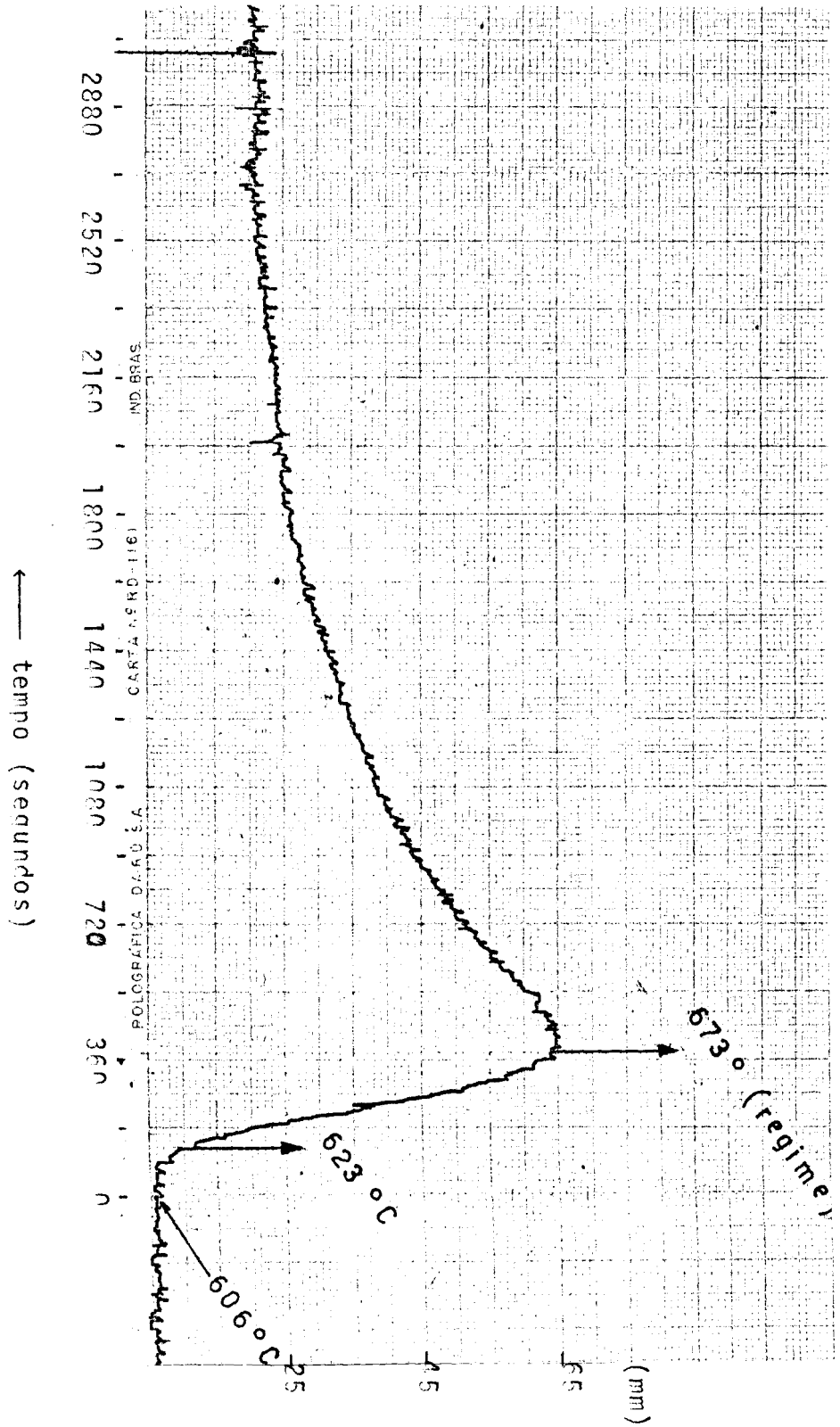


Fig. 14 - Pico Indicando Desprendimento de He com Início em ~~606~~ 230°C  
 Amostra 6

Razão de Átomos He desprendida (mm)  
 $\times 3,8 \times 10^9$  at He/mm-s

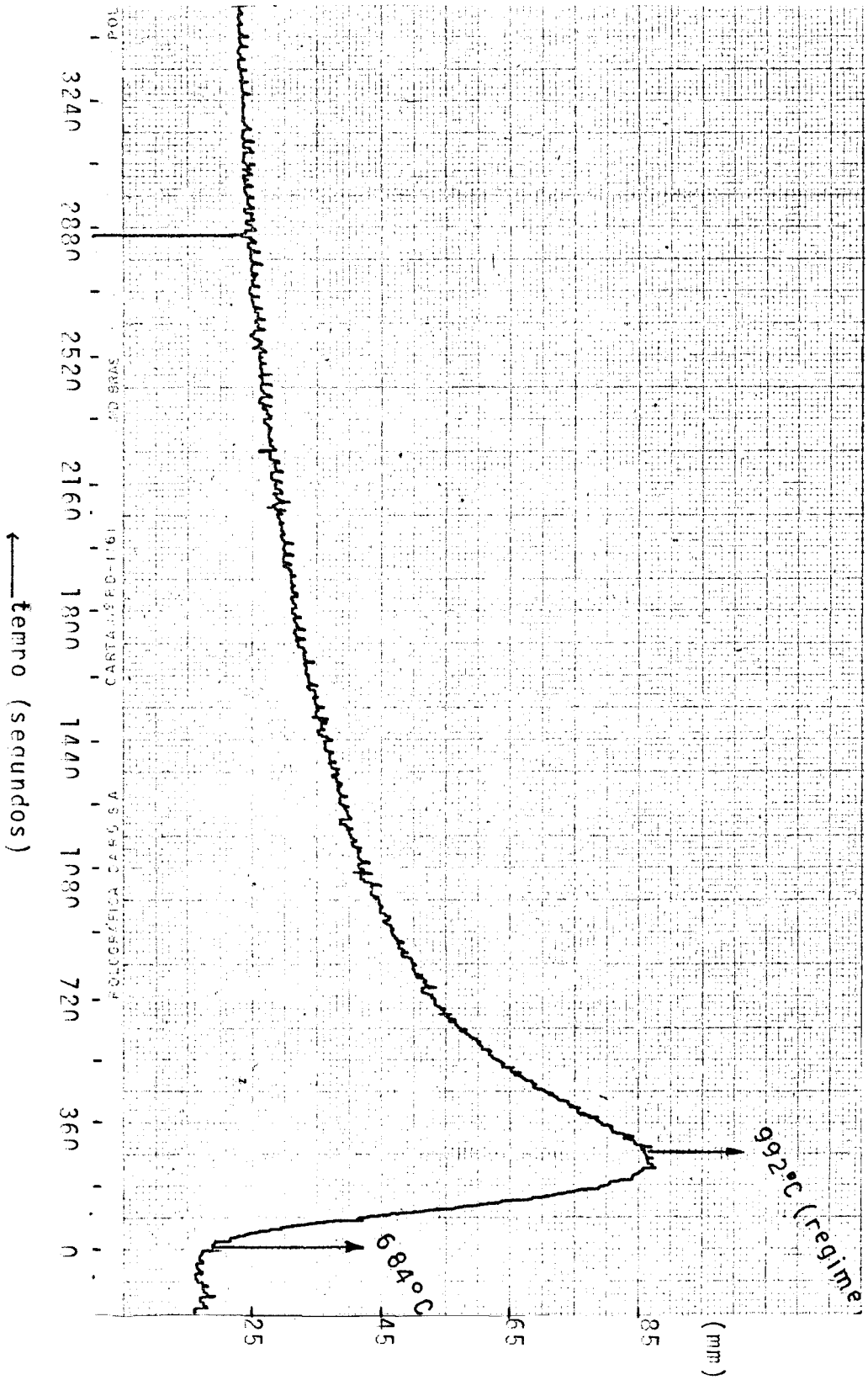


Fig. 15 - Pico Indicando Desprendimento de He com Início em 684°C  
 Amostra 6

Razão de Átomos He desprendida (mm)  
 $\times 3,8 \times 10^0$  at He/mm-s



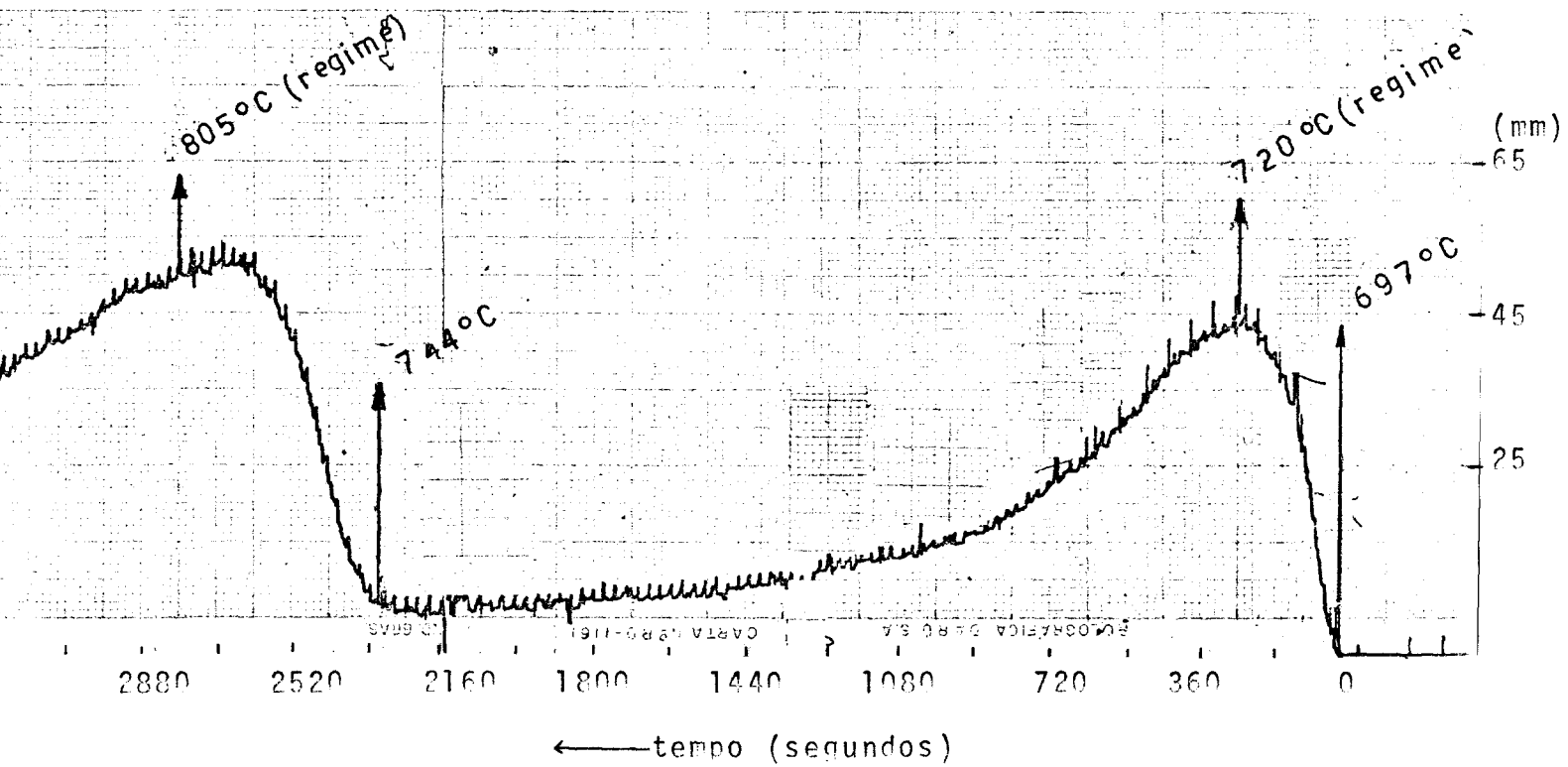


Fig. 16 - Picos Indicando Desprendimento de He com Início em 697<sup>o</sup>C e 744<sup>o</sup>C respectivamente.  
 Amostra 2

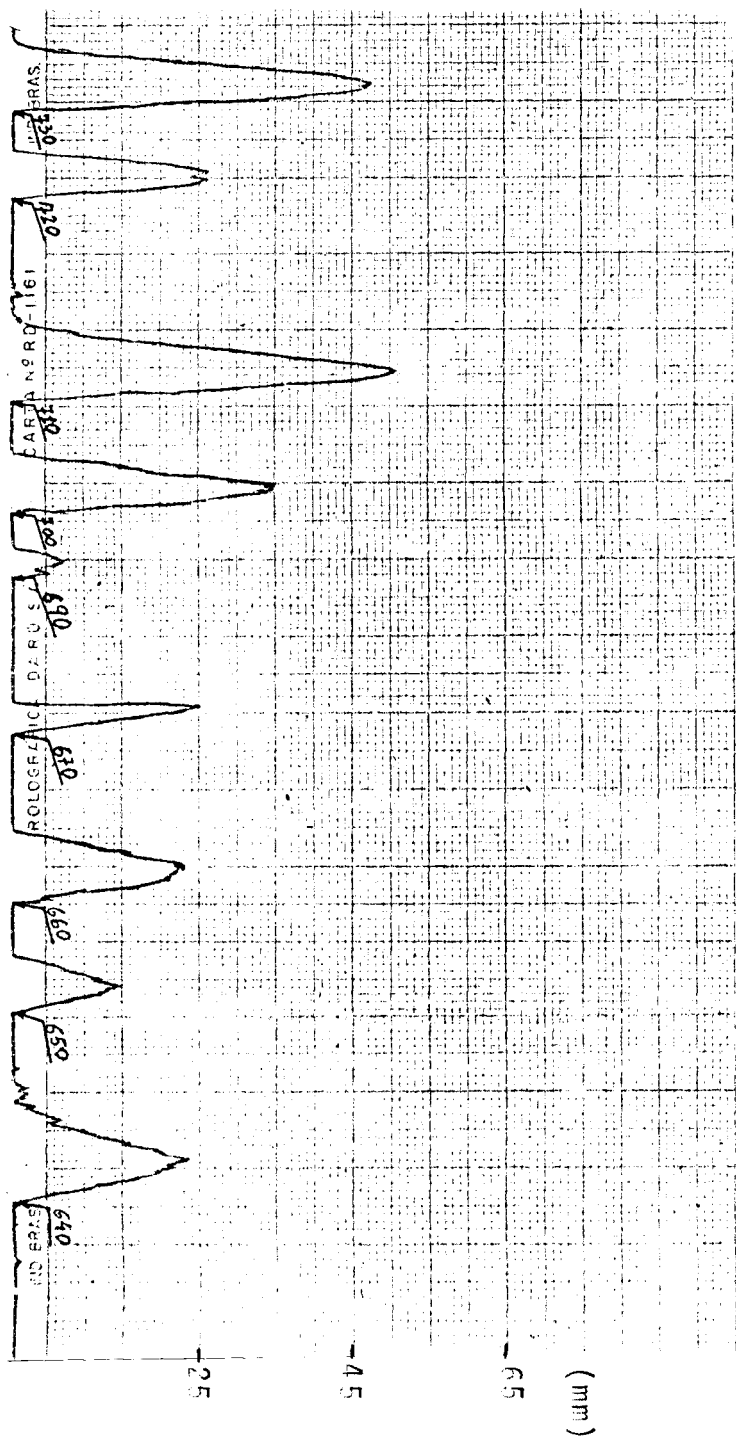


Fig. 17 - Sequência de Picos Indicando Desprendimento de He em Faixa de  
 Temperatura de 640°C a 730°C  
 Amostra 10  
 Abcissa : 1 mm  $\equiv$  18 segundos.

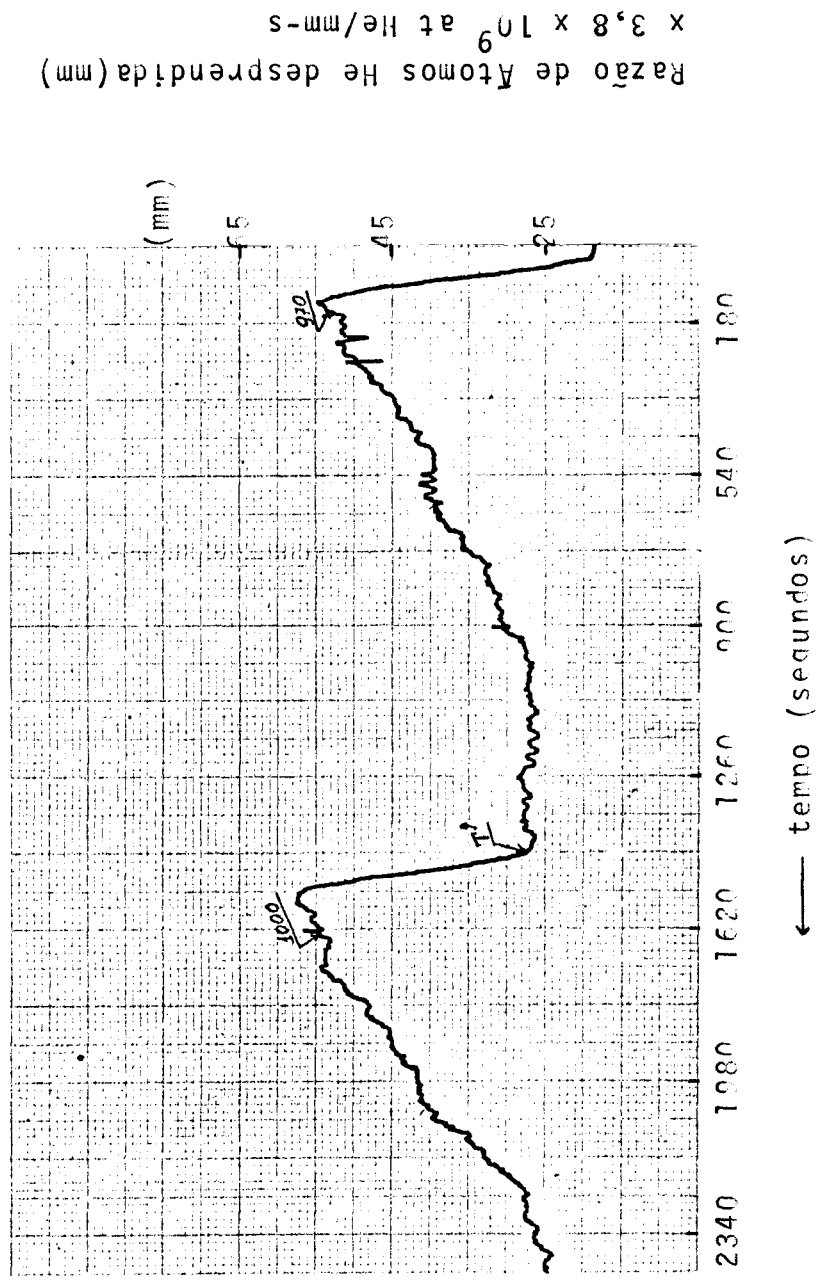


Fig. 18 - Picos em 970°C e 1000°C da amostra 9

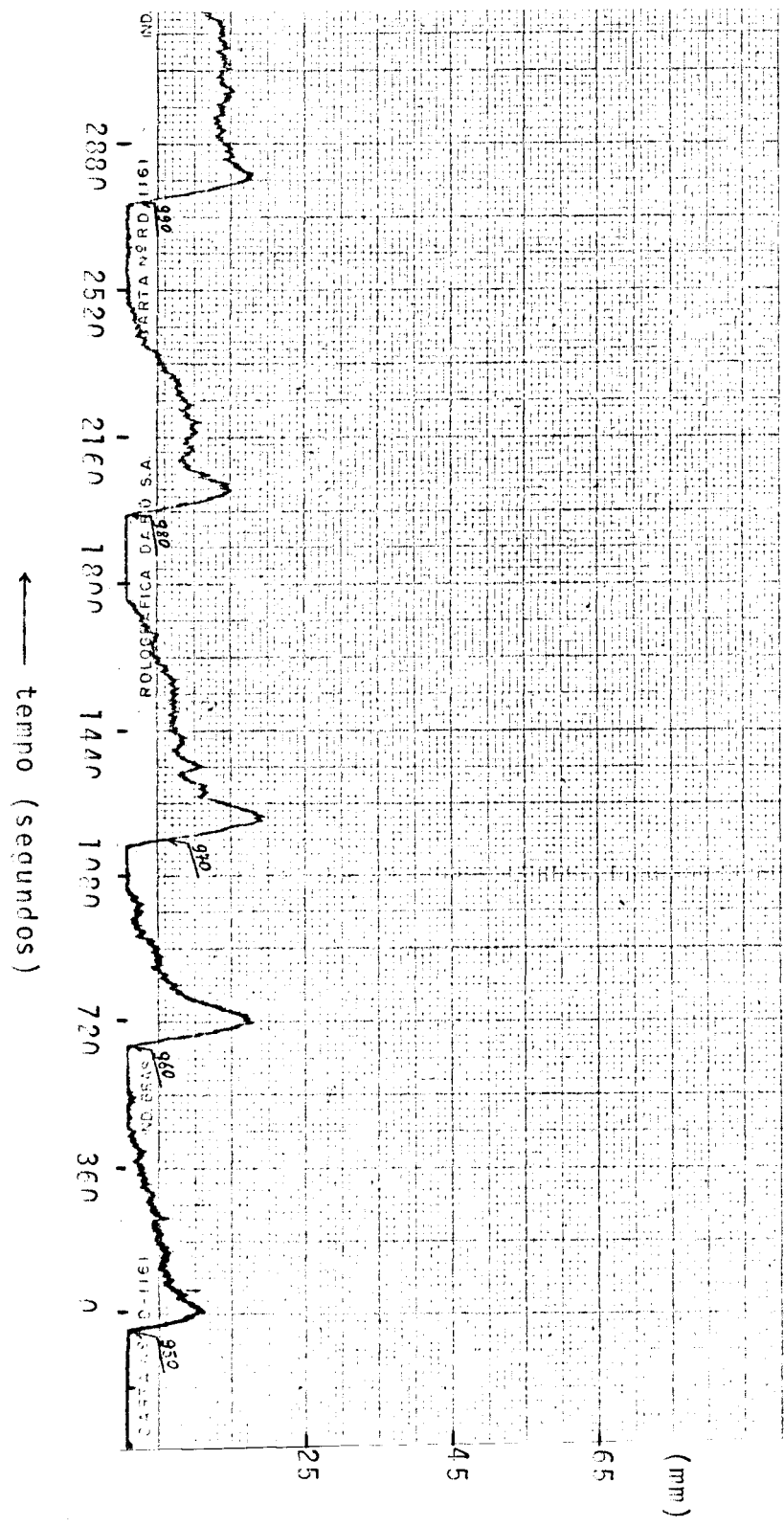


Fig. 19 - Picos na Faixa de 950°C a 1000°C da Amostra 10

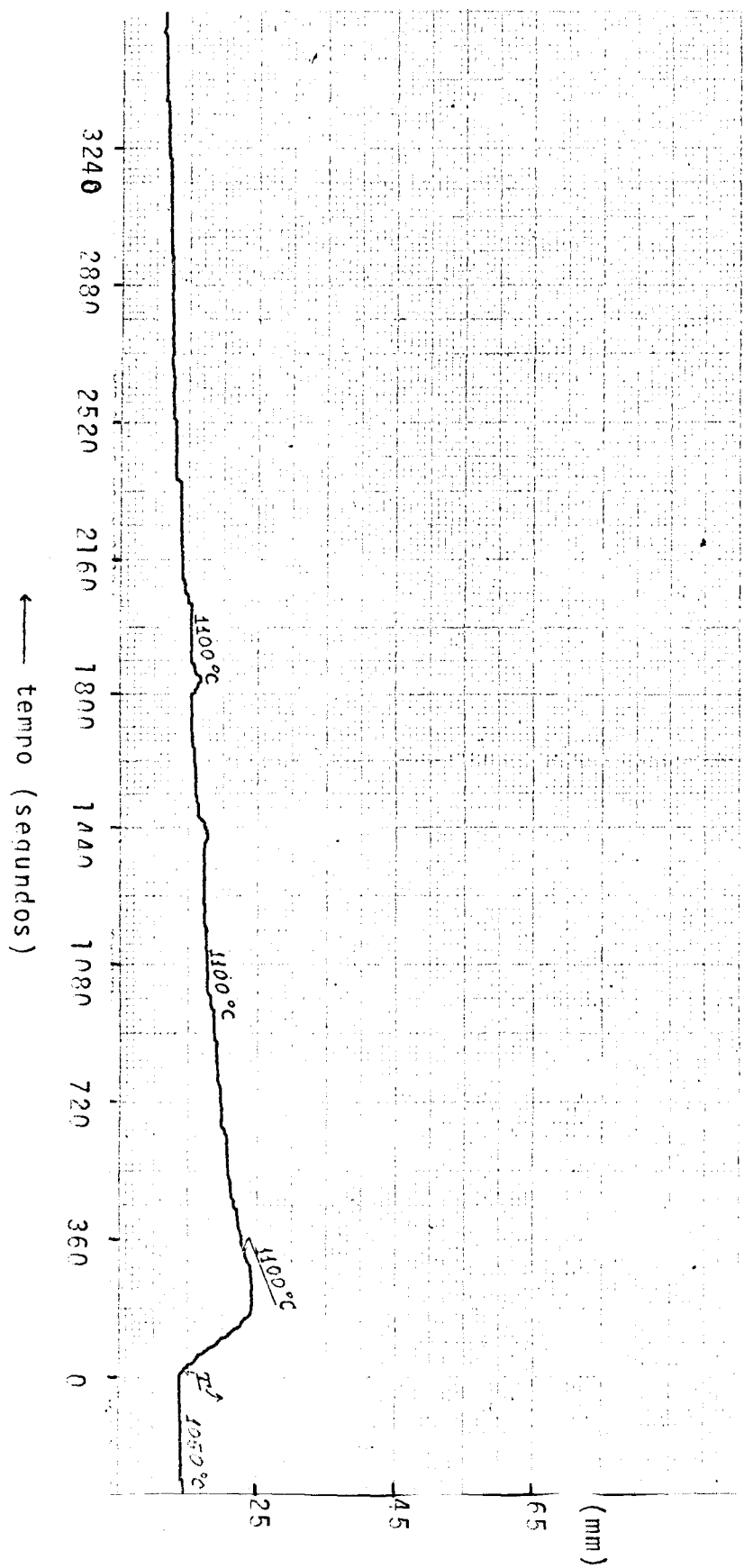


Fig. 20 - Desprendimento de Hélio em 1100°C - Amostra 9

Razão de Átomos He desprendida (mm)  
 $5 \times 3,8 \times 10^9$  at He/mm-s

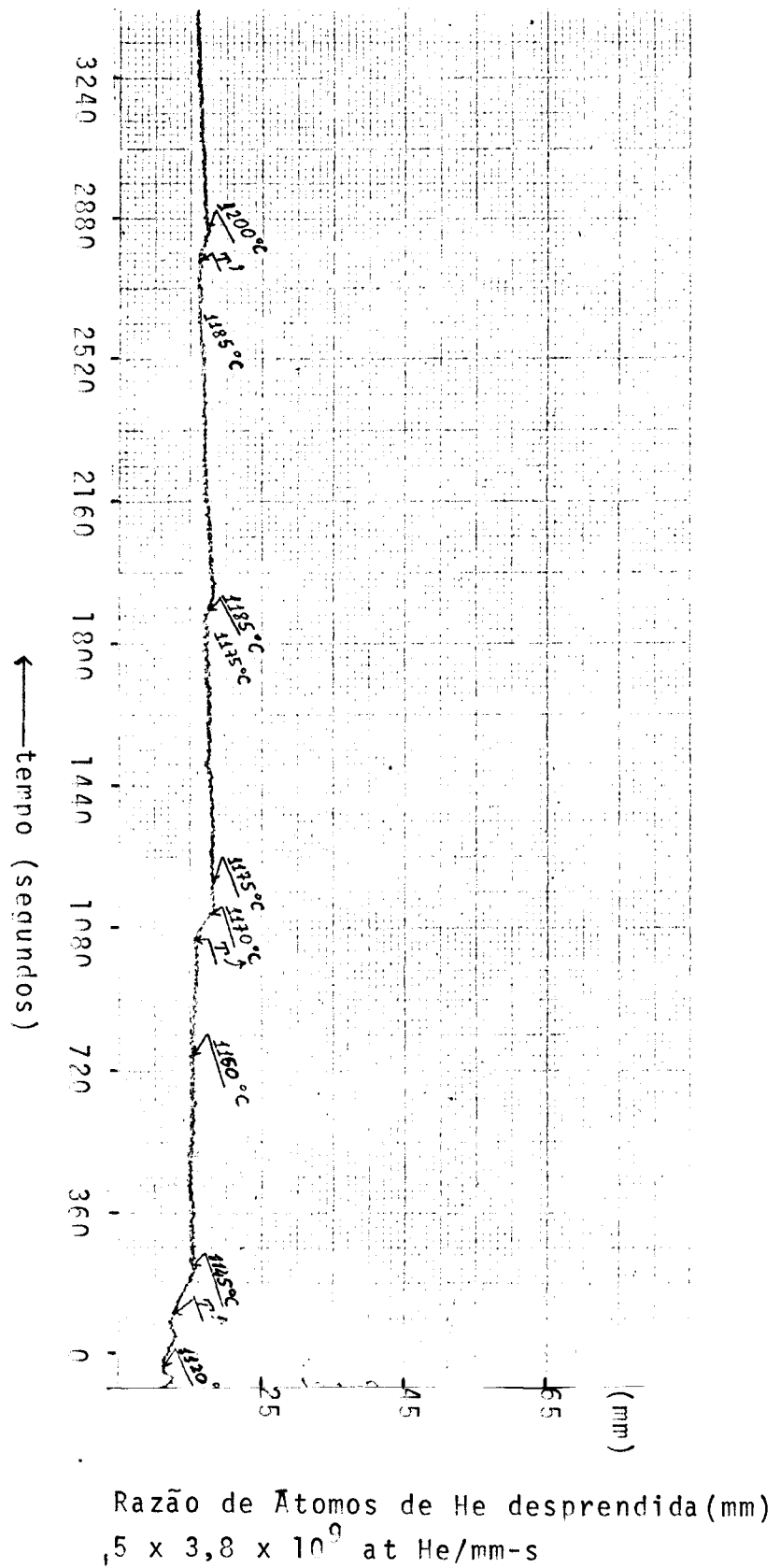
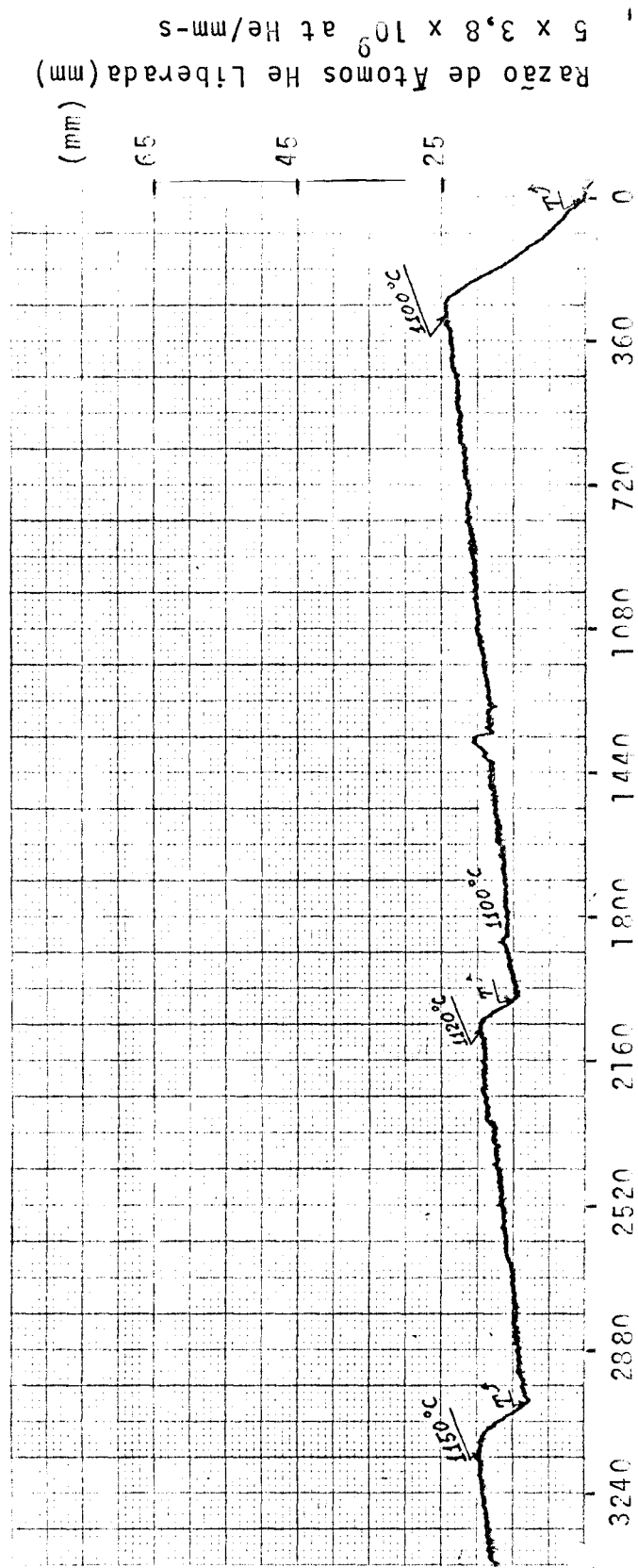


Fig. 21 - Picos de Desprendimento de Hélio Acima de 1100°C  
 Amostra 10



← tempo (segundos)  
 Fig. 22 - Picos de Liberação de Hélio Acima de 1100°C  
 Amostra 11

tomando-se a amostra 6 como referência. A amostra 6 apresentou picos em todas as faixas de temperatura consideradas, e é de porosidade aberta intermediária. Nas figuras 11 a 19 pode-se observar a presença e forma de picos nas faixas de temperaturas assinaladas. Acima de  $1000^{\circ}\text{C}$  todas as amostras apresentaram liberação de hélio. As amostras com porosidade aberta acima de 18% (amostras 6, 9, 10 e 11) apresentaram o 1º pico de liberação em cerca de  $270^{\circ}\text{C}$ . A amostra 8, com 0,6% de porosidade aberta, não apresentou pico de liberação de hélio até  $1000^{\circ}\text{C}$ . Para as amostras com porosidade aberta intermediária houve presença de picos em faixas de temperaturas intermediárias. Nas amostras 2 e 7 (12,1 e 14,3% porosidade aberta) os picos apareceram em temperaturas superiores a  $320^{\circ}\text{C}$ . Nas amostras 4 e 5 (4,6 e 6,4% porosidade aberta) os picos de hélio somente foram aparecer em temperaturas superiores a  $700^{\circ}\text{C}$ .

Observa-se que a forma e o número de picos nas faixas de temperatura dependerão dos parâmetros de fabricação da amostra, como pressão de compactação, forma de compactação, temperatura e tempo de sinterização.

TABELA 2 - PRESENÇA DE PICOS DE DESPRENDIMENTO DE HÉLIO EM RECOZIMENTO DINÂMICO COM PATAMARES ISOTÉRMICOS ATÉ  $1000^{\circ}\text{C}$

<u>A m o s t r a s</u>											
TEMPERATURA.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
270-320	não	não	não	não	não	sim	não	não	sim	sim	sim
320-390	não	sim	não	não	não	sim	não	não	sim	sim	sim
390-500	não	sim	não	não	não	sim	sim	não	sim	sim	sim
500-620	não	sim	não	não	não	sim	sim	não	sim	sim	sim
620-700	não	sim	não	não	não	sim	sim	não	sim	sim	sim
700-900	sim	sim	?*	sim	sim	sim	sim	não	sim	sim	sim
900-1000	sim	sim	?*	sim	sim	sim	sim	não	sim	sim	sim

\*Controlador de temperatura apresentou defeito.



#### 4.4. Fração de Hélio Desprendida

A fração de hélio desprendida em uma temperatura pode ser determinada conhecendo-se a quantidade total de hélio formada nas reações  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$ , e a quantidade de hélio desprendida em temperaturas mais baixas. As quantidades de hélio desprendidas têm valores definidos pelas áreas sob as curvas de desprendimento e pode-se calcular o valor dessa quantidade desprendida integrando-se as áreas sob as curvas. Foi usado para isto a calculadora eletrônica Olivetti Programa 101. Multiplicando-se o valor dessa área pela sensibilidade  $S'$  do detetor (Apêndice) tem-se a quantidade de hélio desprendida numa temperatura. Assim, tem-se a fração desprendida, pois conhece-se a quantidade total de hélio formada pelas reações  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$  através dos cálculos descritos no item 2.2.

Uma parte do gás formado sai da amostra por mecanismo de recuo durante a irradiação. A fração de hélio liberada por recuo, depende da densidade e geometria da amostra de BeO.

A quantidade de hélio desprendida por mecanismo de recuo, durante irradiação da amostra, foi determinada irradiando-se a amostra em tubo de vidro selado com vácuo de cerca de  $10^{-6}$  mmHg. Este tubo de vidro possuía uma ponta frágil no local de selagem.

Após a irradiação o tubo de vidro foi ligado ao detetor de hélio e a ponta frágil quebrada por um cilindro de aço que se movia pela ação de um íman (figura 23). No instante que se quebrou a ponta frágil o sinal correspondente à presença de hélio foi registrado no detetor, sinal este correspondente ao desprendimento de hélio por recuo da amostra durante a irradiação - operação realizada a cerca de  $25^{\circ}\text{C}$  -. Para as amostras de

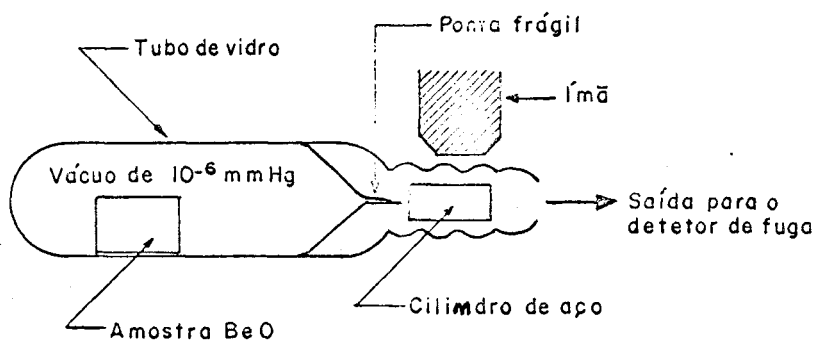


Fig. 23 - Sistema para Detecção de Hélio Desprendido por Mecanismo de Recuo durante Irradiação.

baixa densidade, a fração de h lio liberado foi de cerca de 5%. Para amostras de densidade maior, a fra o foi inferior a 5%.

A tabela 3, fornece as fra es de h lio desprendidas(em %) das diversas amostras.

TABELA 3 - FRA O DE H LIO DESPRENDIDO(%)

<u>A m o s t r a s</u>											
TEMPE- RATURA (OC)	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
606	-*		-	-	-	40		-			
700	-	8	-	-	-		9	-	51	53	55
805	-		-	0,5	-			-			
854	-		-		0,4			-			
866	-		-				25	-			
870	1,5		-					-			

\* 0 sinal - corresponde a n o dete o de h lio liberado.

## 5. REVISÃO DA LITERATURA

### 5.1. Revisão dos Efeitos Causados por Irradiação no BeO

Antes de discutir os resultados experimentais, apresentam-se alguns resultados tirados da literatura, referentes aos efeitos de irradiação no BeO.

O problema em si é bastante complexo pela intervenção de muitos fatores significativos e em fase de desenvolvimento, não raro encontrando-se resultados e conclusões que se contradizem. Isto não é de se estranhar, pois atuam no BeO, além do choque direto com neutrons, interações  $\gamma$  e  $R^-$ , e reações complexas como  $(n, 2n)$ ,  $(n, \alpha)$ ,  $(\gamma, n)$  e  $Li(n, He)H^3$ , durante a irradiação no reator.

Para a estrutura tipo Wustita do BeO (figura 24) ainda faltam dados essenciais, como energia de ligação da rede.

É de se prever, portanto, que o problema de se calcular o número de defeitos, e de determinar-se o tipo de defeito formado na rede de BeO, quando submetido à irradiação, requer aproximações.

SABINE, PRYOR e HICKMAN (28) estudaram o espalhamento de neutrons por BeO policristalino, irradiado a doses até  $6,8 \times 10^{20}$  (neutrons de fissão) em temperatura de 75 a 100°C. Estes autores, baseados no fato de os defeitos introduzidos na rede por irradiação causarem variações mensuráveis na difração de neutrons, calcularam o número de átomos deslocados de sua posição normal na rede de BeO, por  $cm^3$  (em amostra de densidade próxima da teórica), em função da dose. Formularam também que nú-

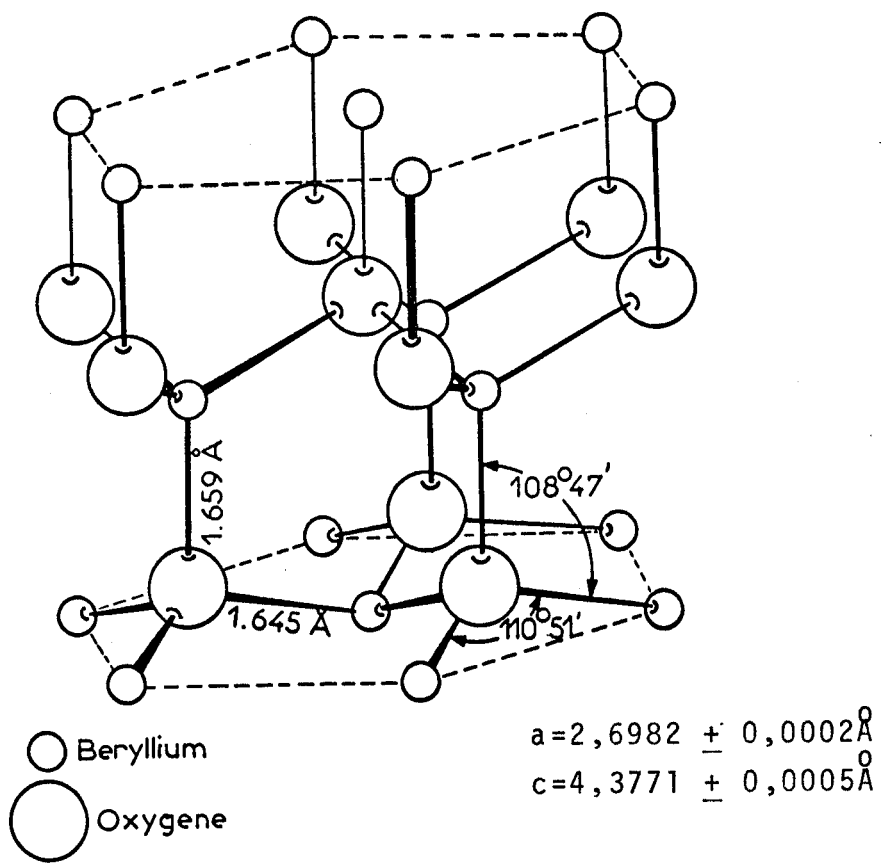


Fig. 24 - Estrutura Cristalina do Óxido de Beryllio (Cf. A.J. ROTHMANN(1))

meros iguais de defeitos de berílio e oxigênio são formados, durante a irradiação, na rede cristalina de BeO, e que o número de átomos deslocados é aproximadamente proporcional à dose (até dose máxima estudada de  $6,8 \times 10^{20}$  nvt). A tabela 4 mostra o número total de átomos deslocados, aproximadamente proporcional à dose.

TABELA 4 - Nº DE ATOMOS DESLOCADOS NO BeO EM RELAÇÃO A DOSE.  
TEMPERATURA DE 75-100°C (conforme SABINE ET AL.).

Dose de neutrons de fissão (nvt)	Colisões Primárias $\text{cm}^3$ por	Átomos deslocados $\text{cm}^3$ por	Átomos deslocados por colisão primária.
$6,8 \times 10^{20}$	$2,4 \times 10^{20}$	$41 \times 10^{20} \pm 5\%$	16-18
$1,8 \times 10^{20}$	$6,4 \times 10^{19}$	$8,0 \times 10^{20} \pm 10\%$	11-14
$5,8 \times 10^{19}$	$2,1 \times 10^{19}$	$4,8 \times 10^{20} \pm 20\%$	18-26
$2,5 \times 10^{19}$	$0,9 \times 10^{19}$	$1 \times 10^{20} \pm 100\%$	5-20

Esta tabela foi calculada, baseando-se em suposições confirmadas por dados experimentais; o número de colisões primárias foi calculado usando-se a média aritmética das seções de choque para berílio e oxigênio na faixa de energia 0,5-5 MeV.

Além dos danos causados diretamente pelos neutrons, é de se supor, como já foi assinalado, que partículas de recuo como a partícula  $\alpha$ , formada nas reações  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$ , causem danos na rede. A respeito disso, NICOUD et al. (29) estudando efeitos de irradiações no berílio, consideram de pouca importância os defeitos causados pelas partículas  $\alpha$  diante dos defeitos resultantes dos neutrons. De qualquer maneira, as partículas  $\alpha$ , formadas nas reações  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$ , percorrerão distâncias consideráveis na rede cristalina do BeO. BAREAU (1) estimou a energia das partículas  $\alpha$  formadas nas reações  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$  numa faixa de 30 KeV a 11 MeV. Nessa situação estas partículas agi-

rão como projêteis arrancando átomos de suas posições normais na rēde, numa distância de percurso na matriz de BeO estimada em cerca de  $1\mu$  a  $50\mu$ , correspondente às energias de 30 KeV a 11 MeV.

A temperatura de irradiação tem grande importância na concentração de defeitos causados durante a irradiação, pois recozimento de defeitos se verifica a partir de  $100^{\circ}\text{C}$  (34) e toma importância acima de  $700^{\circ}\text{C}$  (28).

Os estudos de irradiação em BeO tem sido feitos nas seguintes condições (14,15,16,17,21,22,23,24,25,28):

Faixas de temperaturas:  $T < 100^{\circ}\text{C}$   
 $100^{\circ}\text{C} < T < 900^{\circ}\text{C}$   
 $T > 900^{\circ}\text{C}$

Doses: superiores a  $10^{19}$  nvt ( $E_n > 1$  MeV)

Além de ensaios físicos e mecânicos, utilizam-se raios-X e microscopia eletrônica.

#### 5.1.1. Irradiação em Temperaturas Inferiores a $100^{\circ}\text{C}$

Amostras de BeO irradiadas em temperaturas inferiores a  $100^{\circ}\text{C}$  e em doses superiores a  $10^{19}$  nvt ( $E_n > 1$  MeV) apresentam expansões volumétricas mensuráveis devido a variação dos parâmetros cristalinos (26). A variação dos parâmetros cristalinos se dá de maneira anisotrópica resultando da  $\mu$  microtrincas (23). Uma relação aproximada para a variação dos parâmetros cristalinos  $c$  e  $a$  é dada por

$$\frac{\Delta c}{c_0} : \frac{\Delta a}{a_0} \approx 9 \quad (15,16)$$

Devido a esta anisotropia, o tamanho de grão limitará a dose a que a amostra resiste sem aparecimento de microtrincas(16,26) , havendo uma relação linear entre dose e inverso da raiz quadrada do tamanho de grão(26).

BISSON(17) estudando amostras de BeO irradiadas em temperaturas inferiores a 100<sup>0</sup>C, por microscopia eletrônica, observou que doses inferiores a  $9 \times 10^{19}$  nvt( $E_n > 1$  MeV) não produziam defeitos visíveis ao microscópio eletrônico. Recozimento após irradiação das amostras (dose  $\geq 6 \times 10^{19}$  nvt( $E_n > 1$  MeV) em temperaturas superiores a 900<sup>0</sup>C resultavam em aparecimento de "clusters" de defeitos. Continuando o recozimento de 900<sup>0</sup>C a 1500<sup>0</sup>C verificou que os "clusters" se transformavam em deslocamentos e que estas deslocamentos cresciam com o tempo, sendo tanto mais rápida a razão de crescimento quanto maior a temperatura. COLLINS(22) também observou o fenômeno de crescimento de "clusters".

### 5.1.2. Irradiação em Temperaturas entre 100 e 900<sup>0</sup>C

Nessa faixa de temperatura o fenômeno de recozimento será importante, e a amostra resiste a doses mais elevadas (15,16,26). Em cerca de 900<sup>0</sup>C, variações dos parâmetros cristalinos são praticamente nulas (1,24), assim como a separação de grãos (23). Acima de 600<sup>0</sup>C, a segregação de defeitos é observável por microscopia eletrônica, sem posterior recozimento (dose  $> 10^{19}$  nvt) (17). A segregação de defeitos se faz preferencialmente nos planos de base, em pequenos discos de átomos intersticiais (10-20 átomos) em arranjos semi-regulares (15,17,28, 30). Este modelo explica o alargamento das raias de difração de Raios-X (14,15). Com o aumento da temperatura ou da dose os "clusters" se juntam resultando em deslocamentos. Estas deslocamentos estão preferencialmente nos planos de base e são formadas



essencialmente de átomos intersticiais (17). A energia de ativação para o crescimento dessas deslocações entre  $1300^{\circ}\text{C}$  e  $1500^{\circ}\text{C}$  corresponde à ordem de grandeza da energia de ativação para difusão de átomos intersticiais, isto é, 0,37 eV(17). Sugere BISSON(17) que as lacunas formadas devido ao arrancamento dos átomos de suas posições normais na rede, durante a irradiação, têm seu movimento de difusão dificultado pelos átomos de He que são aprisionados nessas lacunas.

### 5.1.3. Irradiação em Temperaturas Superiores a $900^{\circ}\text{C}$

Irradiações e recozimento das amostras em temperaturas acima de  $900^{\circ}\text{C}$  apresentam a característica de, nessas temperaturas, o recozimento de defeitos fazer-se com maior rapidez, resultando em maiores "clusters" e deslocações de dimensões maiores. Um aspecto novo se apresenta: átomos de He acumular-se-ão nos contornos de grãos (16,17,22,23,24,25), nos poros fechados (22,23), e aparecerão nas superfícies de fratura(22,23,24) em forma de bolhas. Nessas temperaturas, a acumulação de He nos contornos de grãos será o aspecto preponderante(23) e a variação de volume da amostra se dará principalmente devido a este fato (17,22,23). Quando a dose é elevada (superior a  $10^{21}$  nvt( $E_n > 1$  MeV)), é necessário que se retire o gás He acumulado nos contornos para se evitar fraturas, e conseqüente deteriorização da amostra (1,22,25).

WOOLLASTON e WILKS (24) notaram a presença de pequenas bolhas de He ao longo de deslocações em escamas de amostras recozidas em temperaturas superiores a  $1400^{\circ}\text{C}$ . Segundo WILKS a presença dessas bolhas tendem a "amarrar" as deslocações, dificultando seu crescimento. Isto pode explicar a limitação de tamanho das deslocações até  $1400^{\circ}\text{C}$  (recozimento após irradiação), observada por BISSON(17), pois em  $1400^{\circ}\text{C}$  as desloca-

ções tendem para um valor máximo de  $1000 \text{ \AA}$ , sendo que acima de  $1400^\circ\text{C}$  as deslocções crescem sem limitação de tamanho, mas possivelmente com velocidades diminuídas pelas presenças de bolhas de He. BISSON no entanto, não faz referência à presença de bolhas de He em torno de deslocções.

WILKS(26) apresenta, em resumo, a evolução dos defeitos de irradiação no BeO, em certas condições de irradiação e posterior recozimento (Tabela 5)

#### 5.1.4. Recozimento de Defeitos de Irradiação no BeO

COLLINS(22) estudando efeitos de recozimento de danos de irradiação no BeO (recozimento após irradiação) em faixas de temperaturas de  $550^\circ\text{C}$  a  $1150^\circ\text{C}$  concluiu que o mecanismo de recozimento térmico dos defeitos segue uma cinética de primeira ordem. HICKMAN e PRYOR (26) também propuseram a cinética de recozimento de primeira ordem, assim como BAREAU(1) na análise matemática para difusão de He em BeO durante irradiação. COLLINS(22) propôs uma única energia de ativação para o processo de recozimento, enquanto que HICKMAN e PRYOR(26) propuseram um espectro de energia de ativação.

A figura 25, obtida por SABINE et. al (28), mostra a variação no número de defeitos, isolados ou como "clusters", com a temperatura de recozimento (irradiação em  $70-100^\circ\text{C}$  e dose de neutrons de fissão de cerca de  $2 \times 10^{20}$  nvt). Os resultados da figura 25 estão de acordo com os resultados obtidos por PRYOR et al (33).

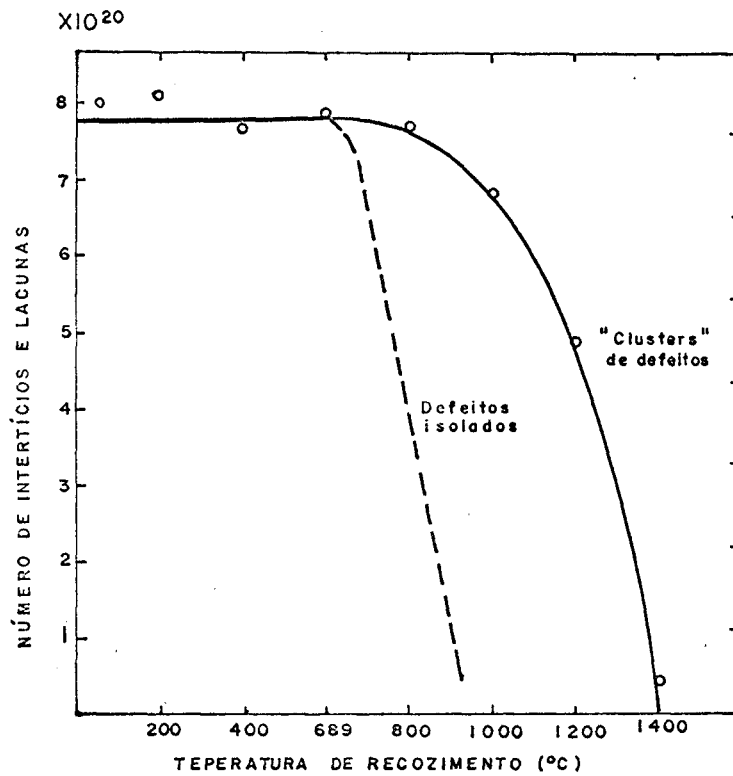


Fig. 25 - Variação do Número de Defeitos de Irradiação no BeO, Isolados ou Como "Clusters", Com a Temperatura de Recozimento. Temperatura de Irradiação 70-100°C.  
 Dose:  $1,8 \times 10^{20}$  nvt (neutrons de fissão)  
 (Cf. SABINE et al. (28))

## 5.2. Comportamento de Gases de Fissão em Material Sólido Irradiado.

### 5.2.1. Modelo da Esfera Equivalente (MORRISON (42) )

No desprendimento de gases de fissão de material irradiado a aplicação de equações clássicas de difusão (leis de Fick) não apresenta dificuldades para amostras de forma geométrica simples (monocristais). O tratamento clássico de difusão no entanto se complica para materiais porosos, e desprendimento difusional pode ocorrer da superfície de poros, cuja geometria é complexa. Para tais materiais, uma forma geométrica simples deve ser considerada, e as soluções das equações de difusão são somente aproximações para a situação real. Soluções das equações de difusão para tais materiais são usualmente deduzidos em termos do Modelo de Esfera equivalente. Este modelo considera que a pastilha (ou p̄) onde se processa a difusão de gás de fissão pode ser representada por esferas uniformes de densidade teórica com a mesma razão área/volume daquela da pastilha(ou p̄) As superfícies dessas esferas são consideradas interconectadas por porosidade aberta.

Os resultados deste modelo são convenientemente expressos como coeficiente de difusão aparente,  $D' = D/a^2$ , onde  $D$  é o coeficiente de difusão e  $a$  o raio da esfera equivalente.

A fração de gás desprendida,  $F$ , na temperatura  $T$  é dada por (2)

$$F = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp(-n^2 \pi^2 D/a^2 t),$$

ou aproximadamente,

$$F \approx 3Dt/a^2 + 6/\sqrt{\pi} \sqrt{Dt/a^2} \quad \text{quando } F < 0,9$$

$$F \approx 6/\sqrt{\pi} \sqrt{Dt/a^2} \quad \text{quando } F < 0,3$$

onde  $F$  , fração do gás liberada na temperatura  $T$   
 $D$  , coeficiente de difusão volumétrica na temperatura  $T$   
 $t$  , tempo  
 $a$  ,  $3/\rho_0 S$  ;  $\rho_0$  = densidade teórica;  $S$  = área específica

#### 5.2.2. Modelo de Aprisionamento em Defeitos (CARROLL(47)).

No modelo de CARROLL, para desprendimento de gases de fissão de material irradiado, a quantidade de He desprendido é controlada pela probabilidade de o gás ser aprisionado ou escapar de defeitos, que funcionam como armadilhas("traps"). Qualquer defeito na estrutura do material ( $UO_2$  na referência citada) é considerado armadilha. Os defeitos são englobados em duas categorias gerais: aqueles presentes antes da irradiação (tais como poros fechados ou contornos de grãos) e os criados por irradiação. Os defeitos criados por irradiação originam-se como defeitos pontuais produzidos pelos fragmentos de fissão e interação de neutrons rápidos com a matriz. Os defeitos pontuais, que são móveis, são criados e destruídos por fissão, e recozidos por aquecimento; eles alcançam um número de equilíbrio em uma dada temperatura e razão de fissão (no caso de experiências "in pile"). Os defeitos pontuais podem também formar "clusters", assim gerando uma forma de aprisionamento que aumenta com o tempo de irradiação.

O Modelo de Aprisionamento em Defeitos prediz que contornos de grãos agirão como armadilhas. Para testar isto,

CARROLL irradiou amostras de  $UO_2$  de granulação fina ( $\approx 3\mu m$ ), semelhantes a amostras monocristalinas em todos os aspectos, exceto que elas tinham muitos contornos de grãos. O desprendimento de gás de fissão das amostras de fina granulometria comportou-se como o modelo prediz: a razão de gás desprendida diminuiu quando a razão de fissão aumentava, e a razão de desprendimento para as amostras de granulação fina foi um fator de 17 vezes mais baixo que para as amostras monocristalinas em  $1000^\circ C$ .

### 5.2.3. Modelo Dinâmico de Desprendimento de Gases de Fissão (BRUIN (2))

Dos resultados de desprendimento de hélio radiogênico de amostras de  $BeO$  (de baixa densidade e efeitos de defeitos intrínsecos minimizados), em experiências após irradiação, BRUIN propôs o Modelo Dinâmico de Desprendimento de Gases de Fissão:

Em oposição às sugestões de CARROL um elemento difusor (gás ou sólido) migrará em velocidades normais através de uma matriz perfeita e pode migrar em velocidades maiores (maior difusividade) através de uma matriz danificada. Os defeitos criados por irradiação podem ser "caminhos" para os átomos difusores. Desde que a quantidade de defeitos (desordem) varia com o tempo em temperaturas elevadas, a difusividade será também dependente do tempo. As equações clássicas de difusão (que são soluções das equações de Fick) se aplicam levando-se em conta a dependência da constante de difusão com o tempo (o coeficiente de difusão diminui com o tempo, em uma dada temperatura, pois defeitos de irradiação são recozidos).

BRUIN considera que uma aproximação realística à

evolução de um modelo de desprendimento de gases de fissão aplicável sob todas condições incluiria os princípios de difusão convencional como sugerido acima, mas deve certamente levar em consideração também o aprisionamento em defeitos. Tem-se pois um modelo combinado, consistindo de duas contribuições com pesos; uma de difusão clássica apropriadamente aplicada à massa da matriz, e outra para aprisionamento, em centros de heterogeneidade. O peso de cada contribuição variará com as condições.

## 6. DISCUSSÃO DOS RESULTADOS

### 6.1. Introdução

A tabela 2 indica a presença de picos de liberação de hélio em temperatura até  $1000^{\circ}\text{C}$ , para as amostras da tabela 1. Para a tabela 2 as temperaturas foram agrupadas em faixas, tomando-se como base a amostra 6 (que é de porosidade aberta intermediária), na qual estão presentes os picos em todas as faixas assinaladas.

A presença e a posição de um pico dentro de uma faixa de temperatura dependem da amostra, em consequência da presença de defeitos intrínsecos, como poros abertos, trincas, microtrincas, contornos de grãos, subcontornos de grãos, etc. Assim, para que picos estejam presentes nas mesmas temperaturas, em duas amostras, parece ser necessário que estas sejam exatamente iguais, ou seja, fabricadas e irradiadas nas mesmas condições (mesmo pó de origem). A presença e interações de determinados defeitos intrínsecos modificarão a posição do pico, em relação à temperatura (vide figuras 11 a 19 e note figuras 18 e 19 - amostras 9 e 10 com porosidade aberta próximas - como picos estão presentes em temperaturas próximas). Quando as amostras se apresentaram com porosidade aberta acima de 12% os picos apareceram em todas as faixas de temperatura acima de  $400^{\circ}\text{C}$ . Para as amostras com porosidade aberta menor que 6,5%, a presença de picos somente foi detetada em temperaturas superiores a  $700^{\circ}\text{C}$ . Para a amostra 8 - 0,6% de porosidade aberta - a liberação de hélio somente foi detetada em temperaturas superiores a  $1000^{\circ}\text{C}$ .

Dos resultados da tabela 2 pode-se dizer que quan-



do a amostra de BeO é de alta densidade - baixa porosidade aberta - as "barreiras" opostas à liberação de hélio modificam a posição ou mesmo impedem a presença dos picos que aparecem nas amostras de alta porosidade aberta. É razoável, pois, esta belecer-se, que a fração de hélio desprendida depende das condições intrínsecas da amostra. A tabela 3 mostra a fração de hélio desprendida para as amostras consideradas.

Experimentou-se interromper o tratamento isotérmico, durante o desprendimento de hélio, o que foi feito abaixando-se rapidamente a temperatura do forno. Nessas condições, cessa imediatamente o desprendimento de hélio.

Se se elevar novamente a temperatura até a temperatura anterior, novos picos reaparecem, em posições diferentes das anteriores.

Isto parece significar que os átomos de hélio, liberados de defeitos específicos, são capturados por outros defeitos - que já atuaram anteriormente como armadilhas e que não foram até aquela temperatura recozidos.

## 6.2. Liberação de He

### 6.2.1. Temperaturas Inferiores a 1000°C

O desprendimento de He em temperaturas inferiores a 1000°C pode dever-se a:

i. Átomos de He formados nas reações  $(n, 2n)$  e  $(n, \alpha)$ , devido à energia de recuo, encontram defeitos grosseiros presentes na amostra (poros abertos, poros pouco ligados ,

trincas, contornos de grãos abertos). Se a temperatura for suficiente para a liberação dos átomos aí aprisionados, estes defeitos se constituirão em "caminhos" através dos quais os átomos de He saem. Defeitos como deslocações podem também se constituir em "caminhos" para a liberação dos átomos de He (59,60). Como não há mais produção de átomos de He (o tratamento se fez após irradiação), a quantidade dos átomos de He aprisionados em um tipo de defeito irá diminuindo com o tempo, e o detector volta rapidamente à posição inicial da escala.

ii) Átomos de He se associam a defeitos de rede - criados por irradiação, ou já existentes na matriz -, cuja mobilidade aumenta a difusividade do He na matriz de BeO(2). Neste caso, o recozimento destes defeitos diminuirá a taxa de liberação de He, e conseqüentemente o seu desprendimento da amostra.

### 6.2.2. Temperaturas Superiores a 1000°C

Em cerca de 1000°C, parece que o mecanismo de difusão volumétrica começa a se fazer sentir; a razão de desprendimento de He tende para um valor que diminui lentamente com o tempo (fig. 21 e 22).

Tem-se então a superposição de dois mecanismos:

- um, cuja intensidade de liberação de átomos de He diminui mais rapidamente com o tempo (discutido no item anterior)

- outro cuja liberação de átomos de He diminui de intensidade lentamente com o tempo (difusão volumétrica em presença de defeitos).

### 6.2.3. Influência da Densidade no Desprendimento do Gás

Já foi mencionado que amostras com densidade próxima da teórica somente apresentaram despreendimento de gás detectável com o equipamento utilizado nestas experiências, em temperaturas superiores a  $1000^{\circ}\text{C}$  (tabela 2). Para amostras com densidade baixa (por exemplo amostra 9 com  $1,87 \text{ g/cm}^3$ ) foram registrados picos desde cerca de  $260^{\circ}\text{C}$ . Para estas amostras, em temperaturas acima de  $1100^{\circ}\text{C}$  os picos de despreendimento são mais lisos e decaem lentamente com o tempo (figuras 21 e 22). Isto faz supor que em temperaturas superiores a  $1100^{\circ}\text{C}$  os átomos de He possuem energia térmica para se difundir na rede de BeO através de quaisquer defeitos da rede. BRUIN(2) mostra que acima de  $1100^{\circ}\text{C}$  o coeficiente de difusão volumétrica de hélio em BeO segue uma lei do tipo

$$D = D_0 \exp^{-Q/RT}$$

Assim, nestas temperaturas, o despreendimento do gás deve ser controlado pelo mecanismo de difusão volumétrica, com os átomos do gás se difundindo na rede, através dos defeitos ainda presentes.

Locando-se a fração de hélio despreendida com a raiz quadrada do tempo em  $1100^{\circ}\text{C}$ , para amostra 9 - figura 20 - resulta a figura 26. Observa-se na figura 26 que a fração de hélio despreendida com a raiz quadrada do tempo se aproxima de uma reta para tempos curtos de difusão. Isto sugere que em  $1100^{\circ}\text{C}$  o despreendimento de hélio radiogênico de pastilhas de BeO de alta porosidade aberta - 37,1% neste caso - segue o clássico Modelo da Esfera Equivalente.

Em amostras onde a presença de contornos de grãos

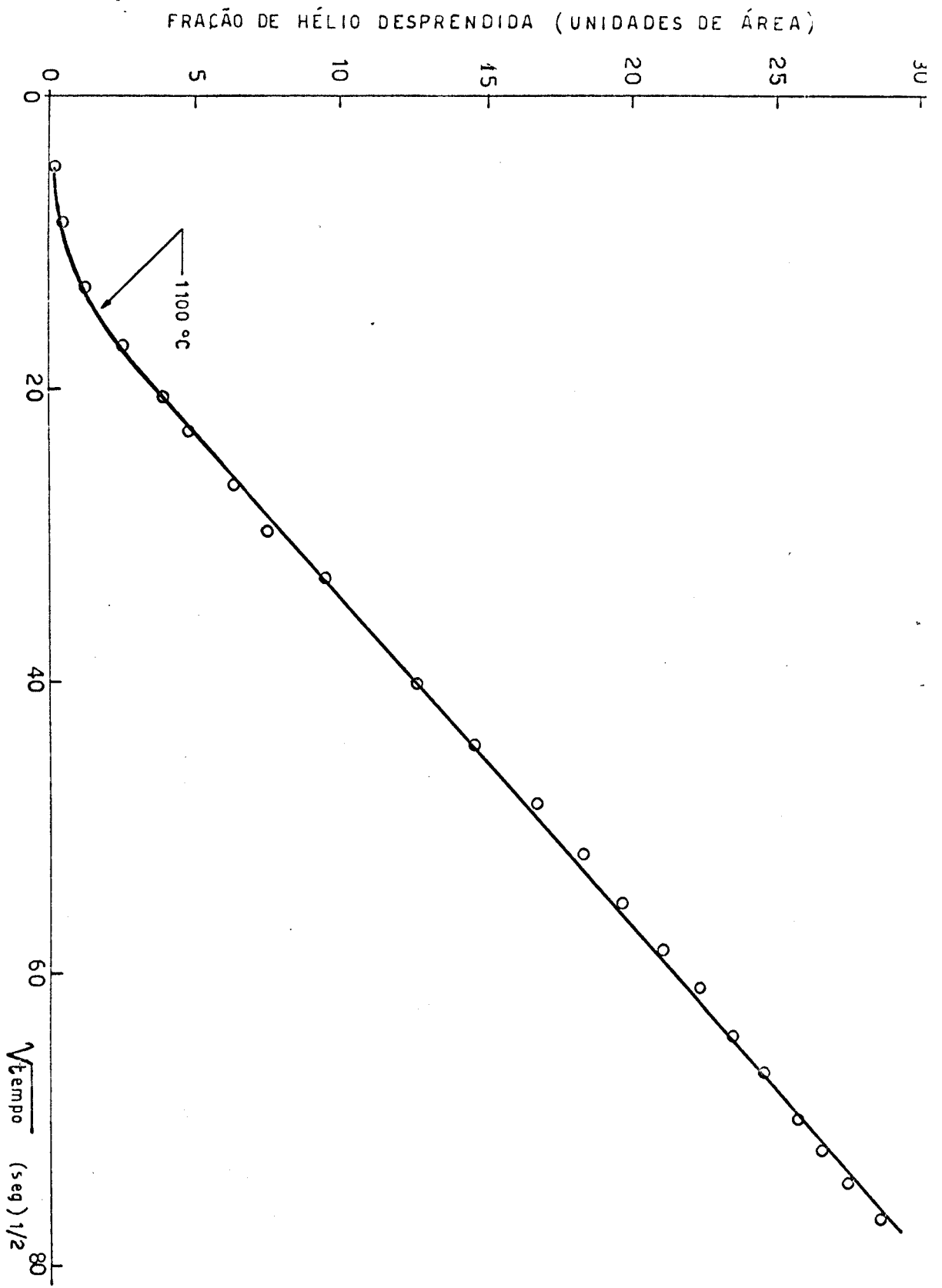


Fig. 26 - Fração de Hélio Desprendida com a Raiz Quadrado do Tempo. Temperatura de 1100°C. Amostra 9.

é relativamente importante (amostras de alta densidade) a razão de desprendimento de hélio da amostra fica bastante diminuída. Medidas de quantidade de hélio desprendida da amostra 8 - densidade de 97% da densidade teórica - mostraram que em cerca de 1200°C, durante uma hora, a fração de hélio desprendida, em relação à quantidade de hélio na amostra, foi da ordem de 1%. Neste caso, a liberação do gás na amostra não seguiu o Modelo da Esfera Equivalente, pois a fração desprendida não foi proporcional a raiz quadrada do tempo.

BRUIN(2) salienta a importância da densidade das pastilhas no desprendimento de He (fig.27).

### 6.3. Considerações sobre Defeitos

#### 6.3.1. Defeitos de Irradiação

É interessante ter-se uma estimativa do número e distribuição dos defeitos de irradiação na matriz de BeO com a dose de irradiação.

Extrapolando-se os valores da tabela 5 para o número de átomos arrancados versus dose integrada recebida (espectro de fissão), obtem-se um valor de  $3 \times 10^{17}$  átomos arrancados por grama de BeO, para a dose de  $5 \times 10^{16}$  n<sub>r</sub>vt; e de  $2 \times 10^{18}$  átomos arrancados por grama de BeO para dose de  $1,8 \times 10^{17}$  n<sub>r</sub>vt. Para utilização dos dados da tabela 5, tomou-se o espectro de fissão dado em (31) para o tubo central do Reator Triga do IPR.

O número de átomos de berílio desaparecidos nas reações (n,2n) e (n,α) é pequeno em relação ao número de áto -

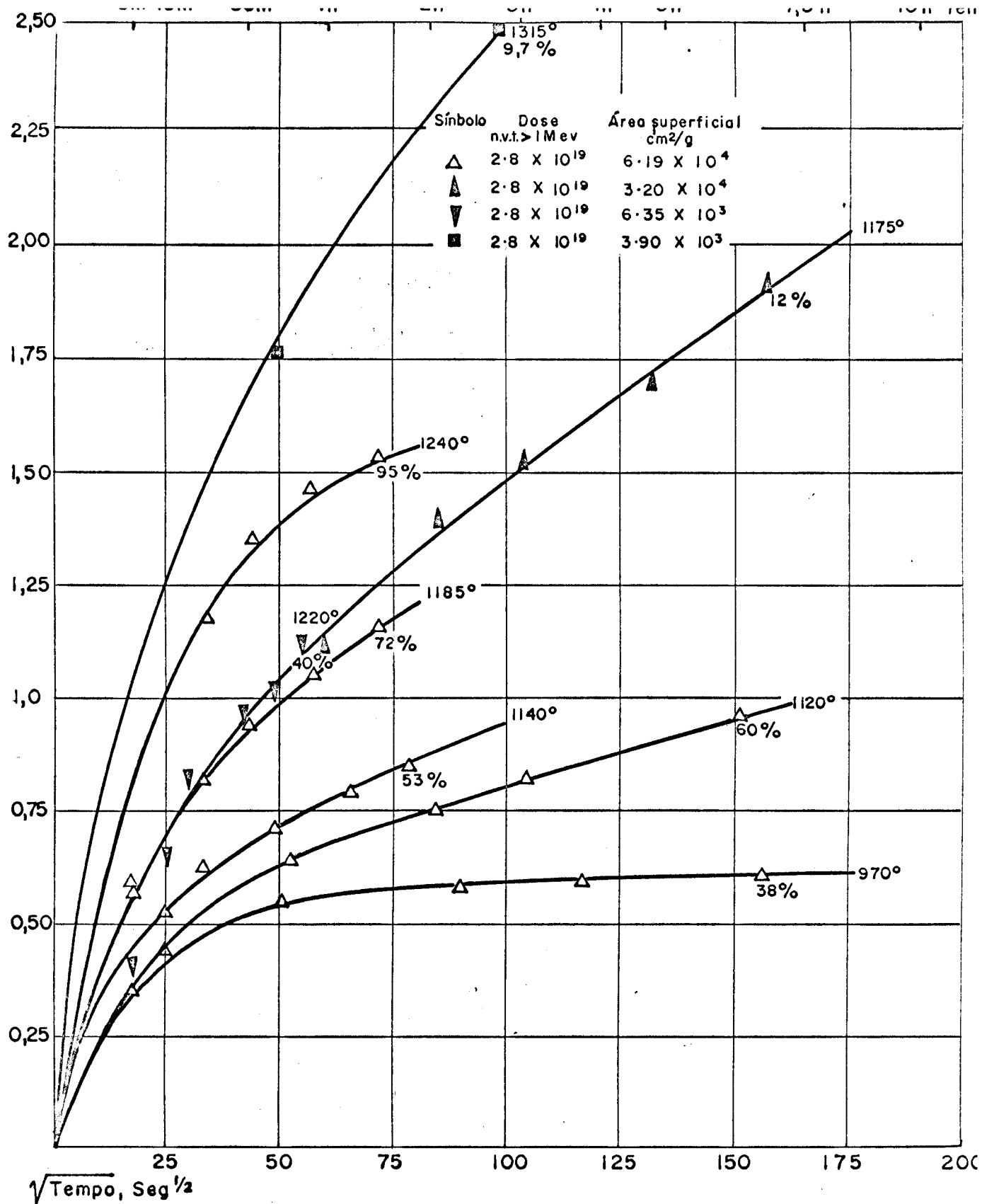


Fig. 27 - DESPRENDIMENTO DE HÉLIO, DE PÓ E PASTILHAS DE BAIXA DENSIDADE DE BeO IRRADIADO (Cf Bruin e Kairaitis)

mos arrancados pelos neutrons - a relação é de cerca de  $10^{-3}$  - e considera-se que o número de defeitos causados pelas partículas  $\alpha$  também é pequeno em relação aos defeitos causados pelos neutrons (29).

Tem-se assim uma relação de cerca de  $10^{-5}$  átomos arrancados/átomo Be na rede cristalina do BeO irradiado para a dose de irradiação de  $5 \times 10^{16} n_r vt$ ; e de cerca de  $10^{-4}$  átomos arrancados/átomo Be para dose de  $1,8 \times 10^{17} n_r vt$ .

Tomando-se a distância média entre os átomos de Be na rede cristalina de BeO como  $2,5 \text{ \AA}$  (fig.24), a distância entre defeitos, é da ordem de  $100 \text{ \AA}$ , para a dose de  $5 \times 10^{16} n_r vt$ . Para a dose de  $1,8 \times 10^{17} n_r vt$  a distância entre defeitos é aproximadamente  $60 \text{ \AA}$ . É considerado, na estimativa da distância média entre defeitos, apenas um tipo de defeito (interstício ou lacuna) e defeitos isolados uniformemente distribuídos.

As amostras indicadas na tabela 1, antes e após a irradiação, foram examinadas por difração de Raios-X. Através de difração de Raios-X é possível se detetar a presença de defeitos de irradiação nas amostras de BeO pelo alargamento de raias. Este alargamento se verifica quando defeitos estão presentes na rede cristalina do BeO em forma de "clusters" de defeitos nos planos de base (17). As amostras irradiadas com uma dose de  $5 \times 10^{16} n_r vt$  não apresentaram nenhum alargamento visível nas raias de difração, enquanto as amostras irradiadas com dose de  $1,8 \times 10^{17} n_r vt$  apresentaram sensível alargamento nas raias (00.2) e (10.1), indicando para este caso, presença de "clusters" de defeitos nos planos de base da rede. As figuras 28, 29 e 30 mostram as raias (00.2) e (10.1) antes da irradiar, após irradiação, e após tratamento a  $1200^\circ\text{C}$ , da amostra 10. Nota-se nestas figuras o alargamento das raias de difração após a irradiação na dose de  $1,8 \times 10^{17} n_r vt$ , e redução no alargamento das raias após tratamento da amostra em  $1200^\circ\text{C}$ ,

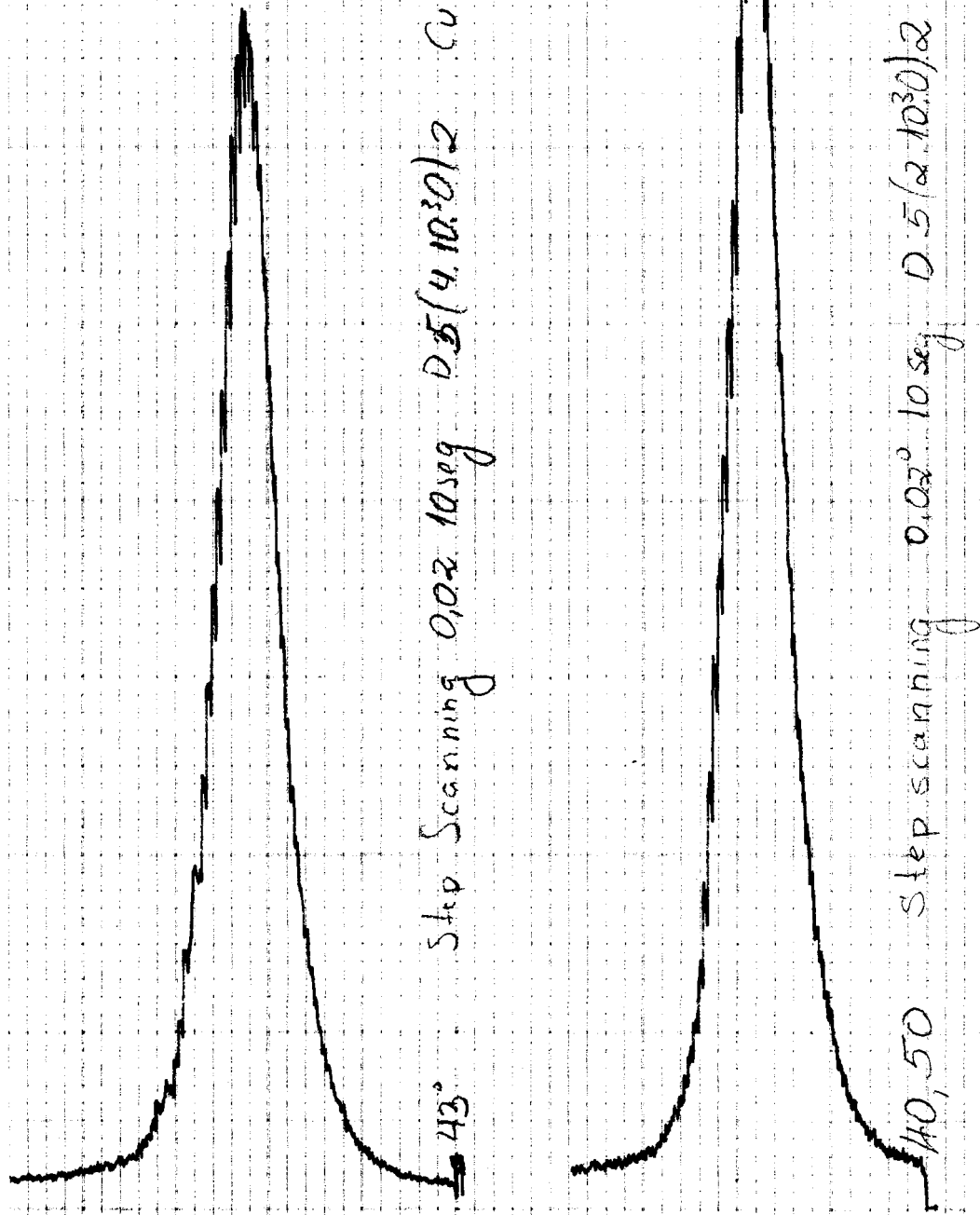


Fig. 28 - Difração de Raios-X da Amostra nº 10 antes de Irradiar Step Scanning - Raias (00.2) e (10.1)



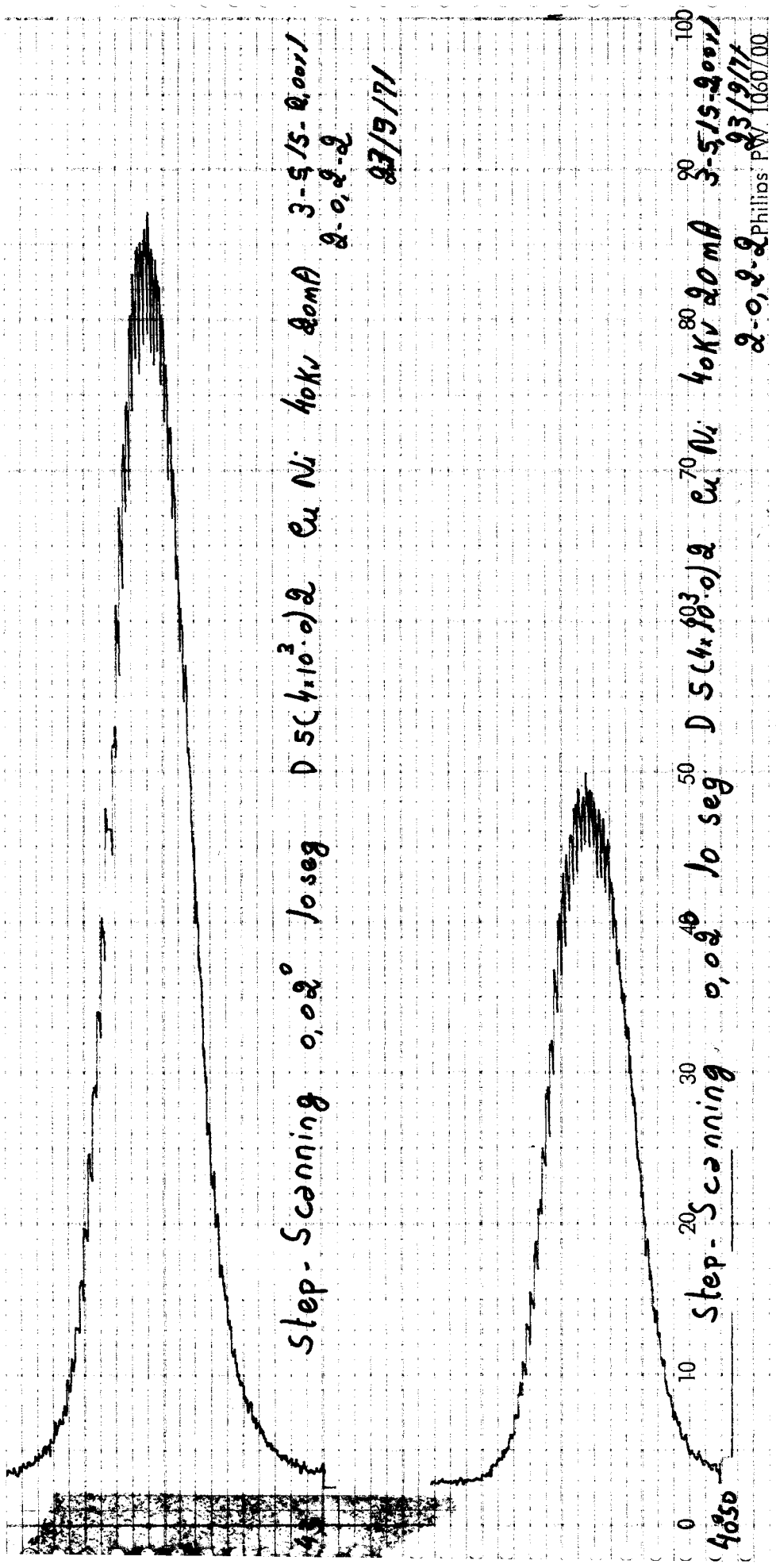


Fig. 29 - Difração de Raios-X da Amostra nº 10 Após Irradiação à Dose de  $1,8 \times 10^{17}$  n<sub>rap</sub> vt.  
 Step Scanning - Nota-se o alargamento das raias (00.2) e (10.1)

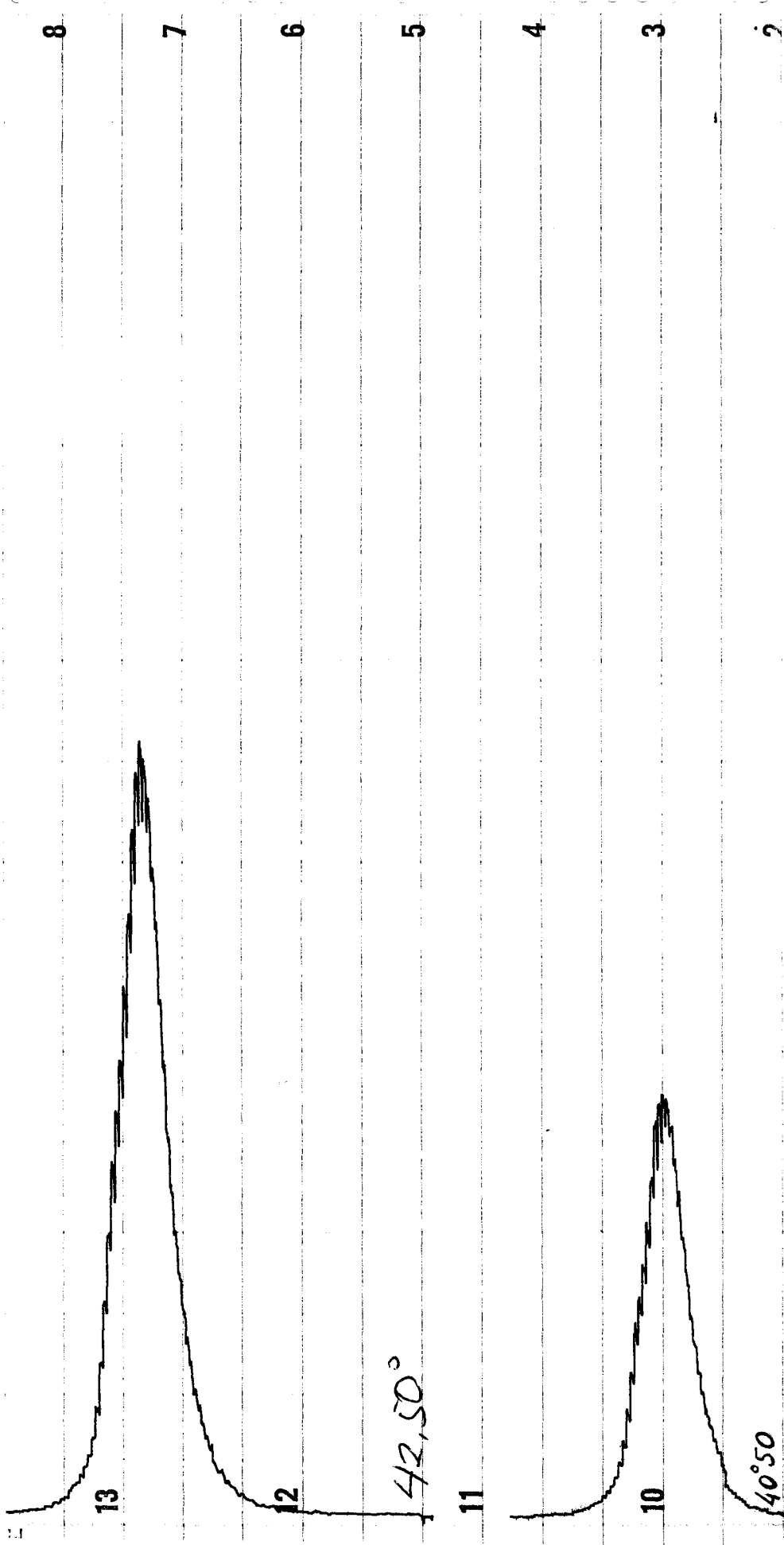


Fig. 30 - Difração de Raios-X da Amostra nº 10 Após Pecoizimento em 1200°C - Step Scanning  
 Nota-se redução no alargamento das raías(00.2) e (10.1) em relação a figura 29,  
 indicando recozimento de defeitos de irradiação.

indicando recozimento de defeitos.

Assim, é possível dizer que defeitos de irradiação estão presentes nas amostras de BeO, isolados, ou em pequenos "clusters", para as amostras irradiadas na dose de  $5 \times 10^{16} n_r vt$ , e em "clusters" para as amostras irradiadas na dose de  $1,8 \times 10^{17} n_r vt$ .

### 6.3.2. Defeitos Intrínsecos

Defeitos intrínsecos às amostras, isto é, defeitos produzidos durante a fabricação, são de importância no que concerne a liberação de He em experiências de recozimento. BISSON(17) observou a presença de deslocações em amostras de BeO não irradiadas, devido ao processo de fabricação. Isto é de se esperar devido ao fato de as amostras terem sido prensadas a frio e depois sinterizadas. Além de deslocações, há defeitos mais grosseiros, como trincas, contornos de grãos abertos e poros, como podem ser vistos nas fotografias da figura 7. Para estes tipos de defeitos é bastante razoável supor que se constituam em "caminhos" para os átomos de He escaparem da amostra de BeO durante o tratamento térmico (43,44,60). Como já foi dito, os átomos de He têm energia de recuo capaz de levá-los a percorrer de  $1\mu$  a  $50\mu$  (1), havendo pois uma probabilidade de esses átomos encontrarem deslocações, trincas, poros abertos e contornos de grãos.

Assim, é de se esperar que haja átomos de He fora dos grãos, por exemplo, nos poros abertos. A liberação de He em baixas temperaturas deverá depender pois da presença desses defeitos, e isto está coerente com os resultados aqui apresentados, ou seja, desprendimento de He de amostra de BeO irradiada, em temperaturas tão baixas quanto  $300^{\circ}C$ .

#### 6.4. Explicação do "Burst" no Desprendimento de Hélio

O "burst" verificado no desprendimento de hélio pode ser explicado considerando-se o seguinte:

- átomos de He são liberados de defeitos armadilhas e caem em defeitos "caminhos" ou na rede, e se difundem.
- No início a taxa de liberação é maior que a taxa de difusão. Há um aumento rápido no fluxo instantâneo de átomos se difundindo resultando em pico.
- Quando a taxa de difusão é próxima ou maior que a de liberação acontece o alisamento do pico.

#### 6.5. Energia Associada ao Processo de Liberação de He

Mesmo para um único tipo de defeito presente na amostra de BeO, a energia de ativação do processo de liberação de He,  $\Delta E$ , é a soma de três energias(1), ou seja,

1.  $\Delta E_1$  = energia de ativação para o processo de arrancamento dos átomos de He dos defeitos.
2.  $\Delta E_2$  = energia de ativação para difusão dos átomos de He.
3.  $\Delta E_3$  = energia de ativação para recozimento de defeitos,

sendo,

$$\Delta E = \Delta E_1 + \Delta E_2 + \Delta E_3$$

No presente trabalho estudaram-se apenas pastilhas prensadas e sinterizadas, não havendo portanto condições de se separar os diversos tipos de defeitos e determinar-se a energia global associada a este ou aquele defeito. No entanto, pode-se estimar a energia do gás desprendido da amostra, nos picos de desprendimento, bem caracterizados por uma temperatura. Para isto utiliza-se a teoria cinética dos gases que estabelece a energia média do átomo como  $3/2 kT$ ; onde  $k$  é a constante de Boltzman e  $T$  a temperatura absoluta.

#### 6.6. Etapas Sugeridas para Liberação de He

Com base no que foi discutido até aqui, e levando-se em conta a energia associada ao processo de difusão para superfícies, contornos de grãos abertos, defeitos em linha, e volumétrica (58,59), sugere-se as seguintes etapas para liberação do He de pastilhas de BeO (43,44):

Temperaturas Baixas	<u>Liberação do gás de defeitos volumétricos -</u> Poros abertos, trincas, poros pouco ligados.
------------------------	--

Temperaturas Intermediárias	<u>Liberação do gás de defeitos de superfície -</u> contornos de grãos abertos, sub-contornos de grãos, falhas de empilhamento.
--------------------------------	--

	<u>Liberação do gás de defeitos em linha -</u> deslocações, "jogs".
--	--

Temperaturas Elevadas      Liberação do gás de defeitos pontuais - lacunas, dilacunas, pares lacunas - interstícios, "clusters".

### 6.7. Considerações Finais

A aplicação de uma equação que realmente descreva o desprendimento de gás de fissão complica-se pois além dos defeitos de irradiação, ainda devem ser considerados os defeitos intrínsecos, como por exemplo contornos de grãos. Tem sido observado que em temperaturas superiores a 900°C, a difusão volumétrica de hélio em BeO faz com que átomos de He se acumulem nos contornos de grãos fechados precipitando-se como bolhas (vide item 5.1.3.). Este fenômeno por certo dificultará a aplicação de um modelo matemático para explicar a liberação do gás, tanto em estudos "in pile" como "out pile", pois a quantidade de bolhas acumuladas aumenta com o tempo até o aparecimento de micro trincas (vide item 5.1.3.). BAREAU(1) deduziu uma equação matemática baseada no Modelo de Aprisionamento em Defeitos para explicar o desprendimento "in pile" de He de pastilhas de BeO, ou seja:

$$Q = h C_0 e^{-ht} + q(1 - e^{-ht}) - qA(1 - e^{-kt})$$

onde,

Q = quantidade de He que sai da amostra de BeO

q = produção de átomos de He por cm<sup>3</sup>

C<sub>0</sub> = concentração inicial de He

h = constante de tempo do fenômeno de desprendimento do gás.

t = tempo

A = termo que caracteriza fenômeno de captura dos átomos de He pelos defeitos.

BAREAU(1) verificou qualitativamente a validade da equação acima, mas não determinou os valores dos parâmetros envolvidos na equação, nem considerou a variação desses parâmetros com o tempo de irradiação (burn up).

#### 6.8. Modelo Sugerido pelas Experiências em Recozimento Dinâmico com Patamares Isotérmicos.

O desprendimento de hélio, ocorrendo discretamente na forma de picos, sugere para o fenômeno os seguintes estágios:

- i. os átomos de hélio são capturados por defeitos (intrínsecos ou criados por irradiação), mantendo-se nesses sítios através de ligações, com energias características;
- ii. no recozimento, os átomos de hélio podem adquirir, por excitação térmica, energias suficientes para transporem a barreira energética característica de um tipo específico de defeito;
- iii. os átomos liberados de hélio movem-se na rede ou por defeitos, associados ou não a outros defeitos, saindo afinal da amostra e caindo no sistema de detecção.

Observa-se que as diferenças de temperaturas entre

picos, embora não sejam grandes, são suficientes para distingui-los claramente (fig.17).



## 7. CONCLUSÕES

O desprendimento de hélio em recozimento dinâmico com patamares isotérmicos ocorre na forma de picos. Mecanismos de "trapping" são evidenciados no estudo de liberação de He em pastilhas de BeO. Os defeitos de aprisionamento de átomos de He são tanto defeitos intrínsecos à pastilha, como defeitos criados por irradiação.

A fração do gás desprendida depende sensivelmente da "história" da amostra - processo de fabricação e condições de irradiação - para amostras de mesma origem, sendo que a quantidade de gás desprendida decaiu a valores muito baixos para pastilha com densidade próxima da teórica.

O recozimento dinâmico com patamares isotérmicos, revelou-se um método experimental adequado ao estudo do desprendimento de hélio radiogênico, especialmente com a utilização de um detetor de fuga. Mesmo em doses baixas de irradiação foi possível detetar átomos de He formados pelas reações  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$ .

O desprendimento de hélio em temperaturas relativamente baixas (desde  $260^{\circ}\text{C}$ ) indica que o mecanismo de recuo dos átomos de He formados nas reações  $(n,2n)$  e  $(n,\alpha)$  adquire importância nas temperaturas de irradiação onde o mecanismo de difusão volumétrica é praticamente desprezível.

A partir de cerca de  $1000^{\circ}\text{C}$  o mecanismo de difusão volumétrica controla a liberação de He. Acima de  $1100^{\circ}\text{C}$ , para pastilha com alta porosidade aberta, o desprendimento do gás pareceu seguir o modelo clássico de difusão de gás homogeneamente distribuído em sólido.

A descrição matemática da liberação de gás de fissão é dificultada pelo aspecto dinâmico como se comporta o material no qual o gás está se difundindo. O recozimento de defeitos, a precipitação do gás em contornos de grãos, fenômenos superficiais, crescimento de grãos em altas temperaturas, variam com o tempo de irradiação.

8. APÊNDICECalibração do Detetor de Fuga

O detetor de He, devido a sua alta sensibilidade, deve ser calibrado ou ajustado antes de cada operação, ou pelo menos periodicamente. A calibração foi feita seguindo-se o manual de operação, e a sensibilidade do aparelho determinada usando-se uma garrafa padrão de hélio, de vazão conhecida. A seguinte expressão foi utilizada para se determinar a sensibilidade  $S$  do detetor.

$$S = \frac{Q_L \times C_T}{(\text{Divisão}) \cdot (\text{Escala}) - \text{Zero}}$$

onde,

$S$  = sensibilidade do detetor em atm. cm<sup>3</sup>/s.div.

$Q_L$  = vazão da garrafa padrão em atm. cm<sup>3</sup>/s =  $3,7 \times 10^{-9}$  atm.cm<sup>3</sup>/s.

$C_T$  = fator de correção de temperatura (tirado de gráfico do manual)

(Divisão) = deflexão do ponteiro

(Escala) = fator de multiplicação

zero = deflexão do ponteiro sem conexão com fonte de hélio.

É conveniente, neste caso, determinar a sensibilidade  $S$  em átomos por segundo por divisão. A sensibilidade do detetor em átomos por segundo por divisão será:

$$S' = \frac{S \cdot N}{R \cdot T} \quad (56)$$

sendo,

$$N = \text{número de Avogadro} = 6,03 \times 10^{23}$$

$$R = \text{constante dos gases} = 82,06 \text{ cm}^3 \cdot \text{atm}/^\circ\text{C} \cdot \text{mol}$$

$$T = \text{temperatura absoluta}$$

O valor determinado para  $S$  foi

$$S = 1,9 \times 10^{-10} \text{ atm} \cdot \text{cm}^3/\text{s} \cdot \text{div.}$$

resultando,

$$S' = 4,6 \times 10^9 \text{ átomos/s} \cdot \text{div.}$$

Observação: As figuras de desprendimento de hélio foram apresentadas em escala milimetrada, sendo que

1 milímetro na figura  $\equiv$  uma divisão no detetor.

A razão de átomos de He desprendida  $\bar{e}$  pois  $S' \cdot (\text{mm})$ .

BIBLIOGRAFIA

1. BAREAU, Jean Études sur l'évolution de l'hélium produit par réactions nucléaires dans l'oxyde de béryllium. Saclay, Centre d'Études Nucleaires, 1969 (CEA-R ~~2963~~  
3273)
2. BRUIN, H.J. & KAIRAITIS, D. A new model for gas release from irradiated ceramics. In: NATIONAL MEETING AMERICAN NUCLEAR SOCIETY, Denver, Colorado, June 20-4, 1966.
3. LIVEY, D.T. Materials for engineers; nº 8 - beryllium oxide. The Engineer: 347-9, Mar. 1967.
4. CARDOSO, P.E. & Veado, J.T. Perspectiva de combustível cerâmico num programa nuclear brasileiro. Cerâmica, 15(59):188-94, jul./set. 1969.
5. DROULERS, Y. et alii Calcul et mesure de l'hélium produit par réactions (n,2n) et (n,α) dans le béryllium. Grenoble, Centre d'Études Nucleaires, 1965. 15p (conf. 651.154-2 UC-34-3)
6. FERREIRA, O.C. IPP, Comunicação pessoal
7. SILVA, Carlos Augusto Feu Alvim da Medidas do fluxo de neutrons no reator Triga Mark I. Belo Horizonte, Instituto de Pesquisas Radioativas, 1968.
8. BATISTA, Hertz F. IPR, Comunicação pessoal
9. BATISTA, H. Freire Preparation et frittage de l'oxide de béryllium. Fontenay-aux-Roses, Centre d'Études Nucléaires, 1964.
10. SAX, N. Irving Dangerous properties of industrial materials. New York, Reinhold, 1957.

11. ANALITICAL, method for the determination of porosity and density of massive lithium aluminate or beryllia. Warrington United Kingdom Atomic Energy Authority, 1963 (P.6 Report 352-(5))
12. MURTA, Clécio C. IPR, 1970, Comunicação pessoal
13. REEVE, K.D. et alii Fabrication of beryllia-coated, fuelled beryllia spheres for in-pile fission product release tests. Lucas Heights, Australian Atomic Energy Commission, 1966 (AAEC/TM 333)
14. HANNA, G.L. Further examination of irradiated hot-pressed beryllium oxide based fuel specimens. Lucas Heights, Australian Atomic Energy Commission (s.d.) (AAEC/E-125)
15. KEILHOLTZ, G.W. et alii. Radiation damage in BeO. In: SYMPOSIUM ON RADIATION DAMAGE IN REACTOR MATERIALS, Venice 7-11 May, 1962. Proceedings... Viena, International Atomic Energy Agency, 1963. 762p. p.693-702.
16. ELSTON, J. Comportement de l'oxyde de beryllium fritté irradié par des neutrons. In: SYMPOSIUM ON RADIATION DAMAGE IN REACTOR MATERIALS, Venice 7-11 May, 1962. Proceedings... Viena, International Atomic Energy Agency, 1963. 762p. n.703-24.
17. BISSON, Auguste André. Etude au microscope électronique de l'oxyde de beryllium irradié. Saclay, Centre d'Études Nucleaires, 1966. (CEA-R-2963).
18. LEVY, Viviane et alii. Contribution a l'étude de la precipitation de l'hélium dans un alliage aluminium-lithium. Saclay, Centre d'Études Nucleaires, 1964. (CEA-R-2529)

19. LEVY, Viviane et alii. Etude de la diffusion et de la precipitation des gaz rares dans les metaux. In: SYMPOSIUM ON THERMODYNAMICS, Vienna, 22-27 July, 1965. Proceedings... Vienna International Atomic Energy Agency, 1966. 658p.p. 115-32.
20. BARNES, R.S. The behaviour of irradiated beryllium. Harwell, Atomic Energy Research Establishment, 1961 (AEPE-R-3769).
21. HANNA, G.L. et alii. The irradiation behavior of beryllium oxide dispersion fuels. Sydney, Australian Atomic Energy Commission, 1963. (AAEC/E 106).
22. COLLINS, C.G. Radiation effects in BeO. In: HIGH TEMPERATURE MATERIALS. Cincinnati, General Electric, 1964. p.9-20 (GEMP-34A).
23. RAU, Robert C. Electron microscopy of irradiated BeO. Journal of Nuclear Materials, 11(3):320-32, Apr. 1964.
24. WOOLLASTON, H.J. & WILKS, R.S. The contribution of helium bubbles to the expansion of neutron-irradiated BeO. Journal of Nuclear Materials, 12(3):305-9, Aug. 1964.
25. RAU, R.C. Further replica electron microscopy studies of irradiated BeO. Journal of Nuclear Materials, 17(4):341-3, Dec. 1965.
26. WILKS, R.S. Neutron-induced damage in BeO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and MgO; a review. Journal of Nuclear Materials, 26(2):137-73 May. 1968.
27. CLARKE, F.J.P. The strength of irradiated beryllium oxide. Journal of Nuclear Materials, 11(1):117-8, Jan. 1964.

28. SABINE, T.M. et alii. The scattering of long wave length neutrons by irradiated beryllium oxides. Philosophical Magazine, 8(85):43-57, Jan. 1963.
29. BUDIN, Claude & LUCASSON, Pierre. Méthode d'étude des défauts ponctuels dans le métaux (a method for studying point defects in metals. In: COLLOQUE DE MÉTALLURGIE, 10, Saclay, 1966. Fragilité et effects de l'irradiation, Gif-sur-Yvette, Centre d'Études Nucleaires de Saclay, 1967. 246p. p.227-40.
30. BELBEOCH, B. et alii Etude par diffraction des rayons X de glucine irradiée aux neutrons. Saclay, 1969 (CEA-R 2943)
31. CAMPOS, Mauricio Mendes, Medidas de neutrons por ativação. Belo Horizonte, Instituto de Pesquisas Radioativas (s.d)
32. KELLY, B.T. Irradiation damage to solids. Oxford, Pergamon, 1966, 232p.
33. PRYOR, A.W. et alii Thermal conductivity at low temperature of neutron-irradiated BeO. Journal of Nuclear Materials, 14(1):208-19, Dec. 1964.
34. WALKER, D.G. et alii. X-Ray diffraction studies of irradiated beryllium oxide. Journal of Nuclear Materials, 14(1):147-58, Dec. 1964.
35. STUBBS, F.J. Diffusion studies in dispersion-type fuels. Harwell, Atomic Energy Research Establishment, 1961. Trans. Brit. Ceramic Soc., 62:257-68, Mar. 1963.
36. DREYER, Howard S. Emanation of xenon and krypton from oxide fuels during reactor operation. In: AMERICAN NUCLEAR SOCIETY 11th. Annual meeting Gatlinburg, Tennessee, 1965 (AED-Conf. 1965; 125-119)



37. ORTEGA, Miguel. Comportement des combustibles disperses de haute temperature vis-a-vis des produits de fission, Grenoble, Centre d'Études Nucleaires, 1967 (Bibliographie CEA-86)
38. SOULHIER, R. & HAIRION, S.P. Les gaz de fission dans l' $UO_2$ . Bulletin de la Societē Française de Cēramique, 73:65-77, Oct./Dec. 1966.
39. ELLEMAN, T.S. et alii. Influence of defects on rare-gas diffusion in solids. Journal of Nuclear Materials, 30(1-2): 89-106, Apr. 1969.
40. MATZKE, H.J. On the stabilization of radiation damage by rare gas atoms. Journal of Nuclear Materials, 30(1-2):107-9, Apr. 1969.
41. MORRISON, David L. et alii. Diffusion of xenon in ceramic oxides. Journal of Applied Physics, 35(5):1616-20, May 1964.
42. MORRISON, David L. The behavior of fission gases in ceramic reactor materials. Reactor Materials, 6(4):1-10, Winter 1963-4.
43. GUY, Albert G. IPR, 1971, Comunicaçāo pessoal
44. ONG, Andres Sy IPR, 1971, Comunicaçāo pessoal
45. ELSTON, J. et alii. Étude des propriétés de l'oxyde de beryllium avant et aprēs irradiation. Journal of Nuclear Materials, 14(1):111-24, Dec. 1964.
46. ONG, Andres Sy & ELLEMAN, T.S. Effect of trapping on the release of recoil injected gases from solids. Nuclear Instruments and Methods, 86(2):117-25, Set. 1970.

47. CARROLL, R.M. Fission-gas release during fissioning in  $UO_2$ . Transactions of the American Nuclear Society, 8(1):22, June 1965.
48. MACEWAN, J.R. The migration of xenon through a  $UO_2$  matrix containing trapping sites. Transactions of the American Nuclear Society, 8(1):21, June 1965.
49. ONG, Andres Sy. The diffusion of xenon-133 in cesium iodide and calcium fluoride single crystals. Raleigh, Department of Nuclear Engineering, 1970 (Thesis submitted to the Graduate Faculty of North Carolina State University at Raleigh for the degree of Doctor of Philosophy)
50. DREYER, S. Emanation of xenon and krypton from oxide fuels during reactor operation. American Nuclear Society. Transactions, 8(1):25-6, June 1965.
51. SHAKED, H. Simple theory for the release of fission gas from powders. Journal of Nuclear Materials, 17(2):136-41, Oct. 1965
52. ADDA, Y.; PHILIBERT, J. La diffusion dans les solides. Saclay, Institut National des Sciences et Techniques Nucleaires, 1966, 2v. v.1
53. ROTHWELL, E. Preliminary observations of the release of tritium from irradiated beryllia. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON BERYLLIUM OXIDES. Sydney, 1963. Sydney, Australian Atomic Energy Commission, 1963 (Conf 281-18-Paper 25)
54. CLARE, T.E. Gaseous flow through sintered beryllia. Journal Ceramic Society, 2(2):24-31, Nov. 1966
55. GENTHON, J.P. Formulation des repartitions spectrales energetiques de flux neutroniques en pile (energies superieurs a quelques centaines d'electrons volts). Saclay, Centre d'Etudes Nucleaires, 1964 (CEA R 2402)

56. STANSFIELD, Orlin M. The influence of tensile stress on gaseous permeation in glassy-state and complex ceramics Berkeley, University of California, Lawrence Radiation Laboratory, 1963 (M.S. thesis. UCRL-10755)
57. BEZELLA, W.A. Analyses of the fission gases released within spent yankee fuel rods. Pittsburg, Westinghouse Electric Corporation, 1968 (TID-4500)
58. BROPHY, Jere H.; ROSE, Robert M.; WULFF, John Thermodynamics of structure, In: WULFF, John et alii. Structure and properties of materials. New York, J. Wiley, 1964. 4v. v.2
59. GUY, Albert G. Difusão no estado Sólido. Belo Horizonte, Instituto de Pesquisas Radioativas, 1971 (Publicação interna).
60. ADDA, Y. et alii. Comportement de l'uranium sous irradiation, Saclay, Centre d'Études Nucléaires, 1964 (CEA-P 2671)