AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**Determinação Quantitativa da Homogeneidade da Distribuição de Urânio
em Combustíveis Nucleares Tipo Placa**

Felipe Bonito Jaldin Ferrufino

**Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do Grau
de Mestre em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Materiais**

**Orientador:
Prof. Dr. Michelangelo Durazzo**

**São Paulo
2011**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

DETERMINAÇÃO QUANTITATIVA DA HOMOGENEIDADE DA DISTRIBUIÇÃO
DE URÂNIO EM COMBUSTÍVEIS NUCLEARES TIPO PLACA

Felipe Bonito Jaldin Ferrufino

Dissertação apresentada como
parte dos requisitos para defesa
de Grau de Mestre em Ciências
na Área de Tecnologia Nuclear-
Materiais

Orientador:

Dr. Michelangelo Durazzo

São Paulo

2011

Dedico este trabalho à minha
esposa e filhos por todo incentivo,
companheirismo, compreensão e
paciência

AGRADECIMENTOS

Ao Dr. Michelangelo Durazzo pelo incentivo e pela esclarecedora e indispensável orientação no trabalho realizado para a dissertação.

À Gerente do Centro do Combustível Nuclear – CCN, Elita Fontenelle Urano de Carvalho, pelas facilidades oferecidas e disponibilização dos laboratórios do centro.

À M. Sc. Glaucia Regina Tanzillo dos Santos, Gerente de Produção do Centro Combustível Nuclear – CCN, pela valiosa ajuda e disposição na disponibilização da estrutura para a realização das tarefas.

Aos amigos Jorge Clementino dos Santos e José Maria Fidélis, operadores do Laboratório de Raios-X do Centro do Combustível Nuclear – CCN, pelo profissionalismo e grande dedicação, que foram fundamentais para ajuda na sua parte experimental.

Ao M. Sc. Gilberto Hage Marcondes, colega de trabalho no Centro do Combustível Nuclear – CCN, pela ajuda na realização dos escaneamentos e tratamentos de imagens.

Ao amigo Davilson Gomes da Silva, colega de trabalho do Setor de Montagem e Fabricação do Centro do Combustível Nuclear – CCN, pela realização das artes gráficas e tratamentos de imagem.

Ao Dr. Adonis Marcelo Saliba Silva, por compartilhar seu grande conhecimento em estatística, auxiliando a interpretação dos dados experimentais. Com sua ajuda, enriqueceu muito o conteúdo do trabalho, tornando-o realista e, aplicável sob o ponto de vista estatístico.

Ao Laboratório de Química e meio Ambiente do Centro de Química e Meio Ambiente – CQMA, pela realização das análises necessárias para realização do trabalho.

Às colegas Edna Maria Alves e Maria Eneide de Souza Araújo, funcionárias da Biblioteca do IPEN, pelo profissionalismo e dedicação na ajuda nas pesquisas e referências bibliográficas.

À colega Cristina Leandro Oscrovani, secretária do Centro do Combustível Nuclear – CCN, por seu apoio e colaboração.

A todos que direta ou indiretamente contribuíram para que a realização do trabalho fosse finalizada.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN/CNEN – SP, que proporcionou instalações, equipamentos e insumos para total realização do trabalho proposto.

DETERMINAÇÃO QUANTITATIVA DA HOMOGENEIDADE DA DISTRIBUIÇÃO DE URÂNIO EM PLACAS COMBUSTÍVEIS TIPO MTR

Felipe Bonito Jaldin Ferrufino

RESUMO

O IPEN-CNEN/SP produz o combustível para suprir o seu reator nuclear de pesquisas IEA-R1. O combustível é montado a partir de placas combustíveis contendo um núcleo do composto U_3Si_2-Al . Uma boa homogeneidade na distribuição de urânio no núcleo da placa combustível é essencial, pois garante um bom desempenho sob irradiação. Considerando a baixa potência do reator IEA-R1, atualmente, a distribuição de urânio na placa combustível é avaliada apenas por meio de inspeção visual de radiografias. Contudo, tendo em vista a possibilidade do IPEN fabricar o combustível para o novo Reator Multipropósito Brasileiro (RMB), que terá potência elevada, tornou-se inadiável o desenvolvimento de uma metodologia para determinar quantitativamente a homogeneidade da distribuição de urânio no combustível. Este trabalho apresenta uma metodologia baseada na atenuação de raios X para quantificar a distribuição da concentração de urânio no núcleo da placa combustível, por meio da análise da densidade óptica de radiografias e comparação com padrões. Os resultados demonstraram a não aplicabilidade do método, considerando a especificação atual para as placas combustíveis, devido ao alto valor do erro intrínseco ao método. Contudo, o estudo dos erros envolvidos na metodologia, buscando aumentar a sua exatidão e precisão, pode viabilizar a aplicação do método para qualificar o produto final.

QUANTITATIVE DETERMINATION OF URANIUM DISTRIBUTION HOMOGENEITY IN MTR FUEL TYPE PLATES

Felipe Bonito Jaldin Ferrufino

ABSTRACT

IPEN/CNEN-SP produces the fuel to supply its nuclear research reactor IEA-R1. The fuel is assembled with fuel plates containing an $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ composite meat. A good homogeneity in the uranium distribution inside the fuel plate meat is important from the standpoint of irradiation performance. Considering the lower power of reactor IEA-R1, the uranium distribution in the fuel plate has been evaluated only by visual inspection of radiographs. However, with the possibility of IPEN to manufacture the fuel for the new Brazilian Multipurpose Reactor (RMB), with higher power, it urges to develop a methodology to determine quantitatively the uranium distribution into the fuel. This paper presents a methodology based on X-ray attenuation, in order to quantify the uranium concentration distribution in the meat of the fuel plate by using optical densities in radiographs and comparison with standards. The results demonstrated the inapplicability of the method, considering the current specification for the fuel plates due to the high intrinsic error to the method. However, the study of the errors involved in the methodology, seeking to increase their accuracy and precision, can enable the application of the method to qualify the final product.

SUMÁRIO

	Página
1 INTRODUÇÃO	08
1.1 Processo de fabricação do elemento combustível tipo placa	12
1.2 Processo de qualificação de placas combustíveis	15
1.3 Radiografias	19
2 OBJETIVO DO TRABALHO	24
3 RADIOGRAFIA INDUSTRIAL	25
3.1 Homogeneidade do feixe de raios X	28
3.2 Parâmetros radiográficos	29
3.3 Controle de sensibilidade radiográfica	31
3.4 Controle de tempo de exposição radiográfica	33
3.5 Filmes Radiográficos	34
4 MÉTODOS DE MEDIDA DA HOMOGENEIDADE DA DISTRIBUIÇÃO DE URÂNIO EM PLACAS COMBUSTÍVEIS	38
5 METODOLOGIA ADOTADA	42
5.1 – Mapeamento do feixe de raios X	42
5.2 – Confecção dos padrões de densidade óptica	47
5.3 – Seleção do filme e definição das condições de exposição Radiográfica	49
5.3.1 – Projeto experimental	50
5.4 – Metodologia de quantificação da concentração de urânio no núcleo da placa combustível	51
6 RESULTADOS E DISCUSSÃO	55
6.1 – Escolha do filme e definição das condições das radiografias	55
6.2 – Determinação da posição para exposição da radiografia	64
6.3 – Aplicação do método	67
6.4 – Avaliação da exatidão e precisão do método	83
7 CONCLUSÕES	92
8 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS	94
9 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	95

1 – INTRODUÇÃO

A energia nuclear pode ser considerada tão natural quanto as energias fósseis e renováveis, segundo estudos recentes. Desde muito tempo antes de a humanidade desenvolver tecnologias para fornecer energia a partir da fusão de núcleos atômicos leves e de fissão de núcleos atômicos pesados, ocorria liberação de energia na natureza a partir de processos de fusão e fissão. Exemplo disso é a fusão de hidrogênio em núcleos de hélio, que é a fonte de energia de estrelas como o Sol. Além disso, no planeta Terra, há dois bilhões de anos, reatores naturais de fissão nuclear tornaram-se ativos depois que a água invadiu jazidas de urânio, atuando como moderador. Isso aconteceu, por exemplo, na África Ocidental, próximo a Oklo, atualmente Gabun, onde os reatores de fissão naturais permaneceram ativos por cerca de 200.000 anos, até que o urânio disponível ficasse tão empobrecido, que a reação em cadeia de fissão nuclear tornou-se inviável [1].

Quanto à utilização de energia nuclear de fissão artificial por meio de usinas de fissão nuclear, pode-se afirmar que todas as tecnologias relevantes para permitir uma utilização econômica e ambientalmente segura desta energia estão disponíveis, pelo menos em princípio, com as atuais técnicas existentes e aplicáveis.

Isso vale para toda a cadeia de processos, desde a mineração de depósitos de urânio, passando pelas intrinsecamente seguras usinas de energia nuclear, seus aspectos econômicos e suas questões de segurança, onde há grande diminuição de risco de acidentes de grande porte, até a deposição e estocagem seguras dos resíduos radioativos [1].

Dos muitos métodos possíveis para a redução e refino de urânio, o método escolhido depende da necessidade específica de uso. A redução do tetra fluoreto de urânio por magnésio, por exemplo, é o principal método de produção comercial de urânio metálico no mundo, vista na EQ. 1:

(1)

Há os métodos eletrolíticos que, embora sem importância comercial, também são importantes meios de obtenção e purificação de urânio. Técnicas mais recentes no tratamento do fluoreto de urânio (UF_4) como agente redutor, utilizando o Sódio (Na), Cálcio (Ca) ou Alumínio (Al), deixaram o método mais atraente para uso comercial. A redução direta do dióxido de urânio em urânio metálico tem sido feita em escala laboratorial, e pode representar um avanço significativo no desenvolvimento do método [2].

O mundo está passando por uma crise na produção de radiofármacos, que ainda pode ser agravada. Um fator que contribuiu para esse problema, por exemplo, foi a desativação, por longo tempo, para reparos e manutenção, de plantas nucleares, como do Reator de Petten, na Holanda, que supre cerca de 60% dos radiofármacos da União Européia [3].

A atual crise mundial de radiofármacos teve início quando o reator canadense National Research Universal (NRU), responsável por quase 40% da produção mundial do radioisótopo molibdênio-99 (Mo-99), por problemas técnicos, parou de operar. O Mo-99 gera, por decaimento, o tecnécio-99m (Tc-99m) que, por sua vez, é utilizado em mais de 90% de todos os exames de medicina nuclear.

Em tal cenário, a construção do Reator Multipropósito Brasileiro (RMB), tido como solução a longo prazo para o fornecimento de radioisótopos no país, adquire importância ainda maior para a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), responsável pelo projeto.

A concepção do RMB foi iniciada em 2010 e será construído em Iperó, a 130 quilômetros de São Paulo, ao lado do Centro Experimental de Aramar, da Marinha, que cedeu um terreno de 1,2 milhões de metros quadrados à CNEN; além de um terreno adjacente, que será cedido pelo governo do estado de São Paulo. Para abrigar o reator, a CNEN criará um novo instituto de pesquisas. O custo do RMB, que terá entre 20,0 e 30,0 megawatts de potência, está estimado em US\$ 500 milhões e estima-se sua construção em seis anos.

O Brasil também negocia com o Peru e a Argentina a criação de uma empresa tri-nacional para a produção de Mo-99 . Existe um reator peruano, construído pelos argentinos, que tem capacidade ociosa e que pode ser preparado para começar a produzir o radioisótopo em um ano e meio. A iniciativa atenderia à demanda brasileira durante a construção do RMB, mas, até lá, o país

continuaría dependendo das inconstâncias do mercado mundial, que estão por agora agravadas.

Por ano, são realizados no país cerca de 3,5 milhões de procedimentos de medicina nuclear envolvendo o uso de radioisótopos, mas sua utilização per capita no Brasil ainda é baixo. Além disso, há um claro desbalanceamento na oferta de exames nas diferentes regiões do país, cujo atendimento está concentrado no Sudeste e no Sul. A construção do RMB seria a solução definitiva para a crise e tornaria o Brasil auto-suficiente na produção do Mo-99, que atualmente é 100% importado e distribuído para todo o território nacional pelo Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), ligado à Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN). Mas o alcance estratégico do projeto é bem maior, pois, além de produzir radioisótopos, o RMB também será utilizado para a realização de testes de irradiação de materiais e combustíveis e pesquisas com feixes de nêutrons [3].

O Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN– CNEN – SP, tem como uma de suas principais instalações um reator nuclear de pesquisa, projetado e construído pela empresa Babcock & Wilcox dos Estados Unidos, cuja característica é ser do tipo piscina, moderado e refrigerado a água leve, sendo denominado IEA-R1. Esse reator vinha sendo operado a uma potência de 2,0 megawatts, mas, por projeto, pode chegar a uma potência de operação de 5,0 megawatts. Atualmente, opera a 3,5 megawatts.

O reator nuclear IEA-R1 tem sido utilizado intensamente durante mais de 50 anos, sendo um dos mais antigos e bem utilizados reatores de pesquisa do mundo, conforme avaliação da Agência Internacional de Energia Atômica (AIEA), para atividades de pesquisa e desenvolvimento. Cabe salientar aqui que, além de pesquisa, o reator também é intensamente utilizado para geração de diversos tipos de produtos e prestação de serviços, dentre os quais o mais importante é a produção de radioisótopos primários para a preparação de radiofármacos utilizados na Medicina Nuclear [4].

Durante os últimos 15 anos, o reator sofreu várias reformas em seus sistemas e equipamentos vitais, devido aos desgastes pelo uso e, essas reformas continuam em vista da proposta de elevação da potência do reator de atuais 3,5 para 5,0 megawatts e operação contínua de 120 horas por semana. No ano de 2002, o Centro do Reator de Pesquisa do IPEN obteve a certificação ISO

9001/2000, outorgada pela Fundação Vanzolini e se constitui em um dos poucos reatores do mundo a obter tal certificação.

Para abastecer o Reator de Pesquisas IEA-R1, o Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN/CNEN-SP, tem fabricado, de modo rotineiro desde 1988, elementos combustíveis à base de dispersão de compostos de urânio em alumínio, produzindo, com tecnologia totalmente nacional, placas combustíveis com núcleos de dispersão garantindo a operação do reator na produção de radioisótopos largamente utilizados em fins medicinais e de fontes radioativas seladas de aplicação industrial. Devido a imposição de restrições na comercialização de urânio altamente enriquecido (acima de 90% em ^{235}U), acordado por diversos países [5], tornou-se necessário o aumento da quantidade de urânio em cada elemento combustível, para que não fosse diminuída a reatividade e a vida útil dos núcleos dos reatores, uma vez que se baixou o grau de enriquecimento para 20% em ^{235}U . Esta situação conduziu ao desenvolvimento de novos combustíveis utilizando tipos diferentes de núcleos, que possibilitaram a incorporação de grandes quantidades de urânio em cada placa combustível [6,7,8,9,10]. A nova geração de combustíveis utiliza dispersões de óxidos e intermetálicos de urânio em alumínio, principalmente o U_3O_8 , o U_3Si_2 e, mais recentemente, o UMo , material físsil em desenvolvimento para ser utilizado comercialmente em reatores de pesquisas de alta potência. Com a necessidade do aumento da potência de operação do Reator de Pesquisas IEA-R1 visando a ampliação da produção de radioisótopos, a concentração de urânio de $2,3 \text{ gU} \times \text{cm}^{-3}$ inicialmente utilizada, passou a ser considerada baixa, tornando-se necessário o aumento da concentração de urânio nas placas combustíveis.

Com a disponibilização de novos compostos à base de urânio, iniciou-se, em 1997, o desenvolvimento do combustível $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$, visando fabricar placas combustíveis à base de U_3Si_2 , em substituição ao U_3O_8 , inicialmente usado o que permitiu a imediata elevação da densidade de urânio no combustível para $3,0 \text{ gU} \times \text{cm}^{-3}$, com possibilidade de atingir o limite de $4,8 \text{ gU} \times \text{cm}^{-3}$, que é o combustível comercial mais avançado da atualidade, muito bem qualificado ao redor do mundo [11], e que poderá suprir a necessidade de novos reatores que se pretende construir no Brasil, como o Reator Multipropósito Brasileiro (RMB).

1.1- Processo de fabricação do elemento combustível tipo placa

Assim como o reator IEA-RI, numerosos reatores de pesquisas em todo o mundo utilizam elementos combustíveis que, usualmente, empregam placas combustíveis contendo núcleos de dispersão, fabricadas por laminação de um conjunto formado por núcleo (briquete), moldura e revestimento. O conjunto a ser laminado é montado de forma que o núcleo, formado por um briquete (cermet) obtido por compactação de uma mistura dispersa e homogeneizada de pó de alumínio e pó de U_3O_8 ou U_3Si_2 (materiais físséis), fique alojado dentro de uma moldura de alumínio, entre duas chapas de revestimento, também de alumínio [12,13,14]. Esse conjunto é soldado, para garantir o posicionamento da montagem, e depois de pré-aquecido, levado ao processo de laminação da placa combustível. A FIG. 1 ilustra o esquema de montagem do conjunto a ser laminado para obtenção da placa combustível.

Figura 1 – Esquema de montagem do conjunto para laminação da placa combustível.

As placas combustíveis são fabricadas por laminação, processo no qual os conjuntos sofrem uma conformação mecânica, deformando-se ao passarem entre dois cilindros. Essa deformação produz o alongamento do conjunto com consequente redução de espessura. Esse processo de fabricação é internacionalmente conhecido como “técnica de moldura” (“picture frame technique”) [15,16]. São necessários 12 passes de laminação para se obter a espessura e o comprimento especificados. Esse processo de fabricação é

tradicionalmente adotado ao redor do mundo, sendo uma tecnologia bastante sedimentada, já há muito tempo, na fabricação de combustível tipo placa para reatores nucleares de pesquisas [17, 18, 19].

Para o reator IEA – R1, as placas combustíveis fabricadas seguem especificações técnicas, documentos internos identificados como R19-IPN-213PR-2DJ-003 e R19-IPN-213PR-2DJ-002, onde, valores permitidos dimensionais, de massa, de enriquecimento e consequentemente de densidade superficial de urânio são mencionados e aparecerão no decorrer da metodologia conforme necessidade na confirmação da parte experimental.

Até o presente momento, foram fabricadas pelo Centro do Combustível Nuclear-CCN do IPEN/CNEN-SP cerca de 1300 placas combustíveis à base de U_3O_8 e 600 placas combustíveis à base de U_3Si_2 .

Após a laminação, o núcleo é totalmente revestido por alumínio, o que impede seu contato com a água do circuito de refrigeração do reator. A espessura nominal da placa combustível é de 1,52 mm, tendo o núcleo 0,76 mm e cada revestimento, superior e inferior, 0,38 mm, ou 380 μm .

A FIG. 2 ilustra uma vista da placa combustível e seus componentes. Por meio de radiografia, o núcleo pode ser evidenciado e localizado na placa combustível, após o que é efetuado o corte final da placa, obtendo-se, com precisão, as dimensões finais especificadas.

Figura 2 – Esquema da composição da placa combustível.

Os elementos combustíveis tipo placa fabricados no IPEN/CNEN-SP são compostos por dezoito placas planas, alojadas e cravadas em duas placas-suportes laterais, paralelas entre si, por um bocal parafusado numa extremidade e por um pino de sustentação, mecanicamente fixado na outra extremidade, obedecendo às especificações internas expressas no documento R19-IPN-213PR-1DJ-001. A FIG. 3 apresenta uma ilustração do elemento combustível.

Figura 3 – Esquema ilustrativo do elemento combustível e seus principais componentes.

A produção rotineira do combustível U_3Si_2 -Al com densidade de $3,0 \text{ gU} \times \text{cm}^{-3}$ começou no IPEN/CNEN-SP em 1999, iniciando-se a irradiação do primeiro elemento combustível nesse mesmo ano. Desde então, o Instituto vem produzindo todo o combustível necessário para manter a operação do reator IEA-R1, cujo caroço de 24 elementos combustíveis é inteiramente composto por elementos combustíveis nacionais. O novo combustível U_3Si_2 -Al foi qualificado em 2005, quando cinco elementos combustíveis atingiram níveis de queima média superiores a 30%, sem apresentar problemas relacionados ao desempenho sob irradiação, atendendo aos requisitos de projeto. Até o presente momento, foram produzidos 63 elementos combustíveis à base de U_3O_8 e 30 elementos combustíveis à base de U_3Si_2 , o que garante ao IPEN/CNEN-SP grande autonomia e economia de divisas.

1.2 - Processo de qualificação de placas combustíveis

A parte inicial feita no laboratório de preparação e compactação de pós consiste em sua preparação por moagem e classificação granulométrica. A faixa de pó de U_3Si_2 utilizada, após moagem, está entre $44,0\ \mu m$ (#325) e $150,0\ \mu m$ (#100), sendo aceito até 20% da massa de siliceto de pó abaixo de $44,0\ \mu m$ (considerado finos), para a composição de massa final da mistura. O pó de Al, adquirido externamente ao IPEN, é separado em lotes para classificação granulométrica, sendo aproveitado o que fica abaixo de $44,0\ \mu m$, para então ser pesado e misturado com o composto de urânio. Após mistura final e com as cargas prontas, a mistura é homogeneizada por duas horas, para em seguida ser utilizada na compactação.

Cargas prontas são compactadas numa matriz retangular sem cantos vivos, aliviando tensões na extração, com uma carga de aproximadamente 265,0 toneladas, correspondente a pressão de aproximadamente $4,0\ \text{toneladas} \times \text{cm}^2$. Depois de retirada da cavidade da matriz, o corpo compactado, denominado briquete, passa por um processo de identificação, eliminação de rebarbas por uma simples raspagem, pesagem final, análise dimensional e tratamento para retirada de impurezas e gases, também chamada de desgaseificação, realizado a uma temperatura de 220°C por 1 hora, inicialmente com a bomba mecânica obtêm-se o baixo vácuo de $10^{-1}\ \text{atm}$, para na sequência com o auxílio da bomba difusora atingir o alto vácuo de $10^{-7}\ \text{atm}$ com a entrada do N_2 na atmosfera do sistema. Finalizada esta primeira etapa o briquete devidamente identificado é embalado e enviado ao setor de laminação.

No setor de usinagem, o conjunto com moldura e revestimentos é fabricado e controlado dimensionalmente. Neste conjunto, após aquecimento da moldura, o briquete é inserido por interferência na abertura da moldura e encapsulado pelo revestimento superior e inferior e submetido à soldagem para fechamento.

Estes conjuntos soldados são colocados em fornos aquecidos a 440°C por 1 hora. Enquanto isto os cilindros do laminador passam por um processo de aquecimento para início do trabalho de laminação. Esta conformação é uma sequência composta de 8 passes a quente com intervalo de 15 minutos de aquecimento e, um nono passe também a quente, com intervalo de aquecimento

de 10 minutos, até se atingir espessura e comprimento pré-determinados. O conjunto laminado passa então por um tratamento de recozimento de 1 hora na temperatura de 440°C, para com isto possibilitar a observação na possível ocorrência da formação de bolhas pela superfície laminada verificando a qualidade do caldeamento (“blister test”). Após resfriamento é realizada a inspeção visual da superfície da placa combustível, verificando a possível existência e localização de bolhas, que se localizadas na área útil da placa combustível, na região do núcleo, a reprova para as próximas etapas. Em seguida é feita a laminação a frio, onde de 1 a 3 passes consecutivos são aplicados, com o objetivo de se alcançar a espessura especificada e para que ocorra um aumento da resistência mecânica da placa combustível.

Uma vez sendo a placa combustível aprovada em todos estes processos, são feitos os dois primeiros tipos de radiografias, uma denominada de “localização” e a outra denominada de “defeitos”.

Na radiografia de localização é realizada a centralização do núcleo e, a marcação para orientar o corte final da placa combustível, na de defeitos observamos a formação de possíveis anomalias na radiografia na região do núcleo pelos diferentes contrastes observados, definindo trincas, acúmulo de materiais físseis dentro ou fora desta área.

Após a transferência de medidas e marcação definindo linhas para corte, as placas combustíveis são cortadas e identificadas. Uma placa combustível é enviada para análise metalográfica, para através das amostras retiradas, verificar as dimensões dos revestimentos e da espessura do núcleo na região considerada homogênea e a localização de defeitos inerentes as regiões terminais do núcleo da placa combustível provocando contorno e espessuras diferentes ao restante do núcleo da placa, a aprovação do lote de fabricação se dá por esta caracterização obedecendo a especificação técnica da placa combustível, onde estas dimensões estão determinadas e quantificadas.

Como lote de placas, consideramos cada 24 placas combustíveis fabricadas onde uma é retirada como amostragem para análise metalográfica que obedecendo à especificação técnica de fabricação da placa combustível, qualifica o lote e o libera aprovado para as próximas etapas e montagem do elemento combustível.

As tiras restantes após o corte final são ensaiadas por meio de um teste de dobramento, onde numa sequência de movimentos flexionando-as é verificada a qualidade do caldeamento, entre as superfícies dos revestimentos de alumínio, com a moldura e com o núcleo combustível, confirmando a não possibilidade de ocorrer qualquer abertura entre estas regiões, o que exporia o material físsil, comprometendo a segurança da operação do reator.

As placas aprovadas até esta fase são controladas dimensionalmente e encaminhadas para o terceiro tipo de radiografia, denominada “final”, onde são confirmadas as posições do núcleo combustível em relação às bordas laterais e do fim do núcleo em relação às bordas externas da placa combustível. Liberando a placa para sua última inspeção superficial, verificando a existência de possíveis riscos ou pontos sobre a sua superfície originados do seu manuseio. Passando então a última fase de limpeza e desengraxamento por tratamento superficial, onde mergulhadas em tanques com soluções de NaOH, H₂O deionizada, HNO₃, e novamente em H₂O deionizada para passivação das reações e em cada um pelo tempo de 1 minuto. Finas camadas superficiais são retiradas limpando seu revestimento para serem secas embaladas e armazenadas para montagem do elemento combustível do reator IEA-R1.

Os valores especificados, mostram que o valor da densidade superficial de ²³⁵U no núcleo pode, segundo a especificação vigente, variar de $\pm 12\%$ na chamada zona 1 e $\pm 25\%$ na chamada zona 2, sobre o valor de $41,2 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, válido para a dimensão nominal da geometria do núcleo, ou seja, valores com tolerâncias no comprimento de $60,0 \pm 10,0 \text{ cm}$ e na largura de $6,26 \pm 0,22 \text{ cm}$, na massa de U₃Si₂ da mistura de $\pm 0,3 \text{ g}$ e no teor de ²³⁵U no siliceto de $\pm 0,2 \%$. Com isto obtemos uma faixa de valores de densidade superficial de ²³⁵U ao redor do valor nominal, cujo mínimo está relacionado à máxima área do núcleo permitida, e cujo máximo está relacionado à área mínima permitida.

A FIG. 4 a seguir apresenta um diagrama de blocos, detalhando o processo de fabricação das placas combustíveis produzidas pelo centro do Combustível Nuclear – CCN do IPEN / CNEN – SP. As etapas indicadas em azul são as etapas de qualificação das placas combustíveis. As etapas indicadas em vermelho são as envolvidas diretamente com este trabalho.

Figura 4– Diagrama de blocos do processo de fabricação de placas combustíveis, evidenciando em vermelho as operações envolvidas efetivamente neste trabalho.

1.3 – Radiografias

Como dito anteriormente, após a laminação a frio, no processo de fabricação da placa combustível, são obtidas três radiografias da placa. A primeira delas, denominada radiografia de localização, é utilizada para localizar a posição exata do núcleo na placa combustível laminada, com a finalidade de orientar o corte final. A segunda, denominada radiografia de defeitos, tem por objetivo verificar a possível existência de defeitos internos no núcleo combustível, tais como trincas, pontos quentes (concentração localizada de partículas combustíveis, também conhecido como “hot spots”), partículas combustíveis fora do núcleo ou pontos brancos (defeito conhecido como “white points”) e a homogeneidade na distribuição de urânio no núcleo da placa, objeto de estudo deste trabalho. Com a terceira radiografia verifica-se o posicionamento do núcleo no interior da placa combustível após o corte final, liberando-a para a montagem do elemento combustível.

Em um combustível ideal, as partículas no núcleo da placa devem ter tamanho suficientemente grande quando comparadas com o caminho livre médio dos produtos de fissão e pequeno o bastante, quando comparadas com a espessura do revestimento da placa combustível. Ao mesmo tempo, as partículas devem estar separadas por uma distância tal que a interação entre elas durante a laminação seja mínima, assegurando-se a plasticidade necessária para o processo de deformação por laminação. A perfeita separação das partículas também garante que as zonas danificadas pela irradiação (ação dos produtos de fissão) não se interpenetrem, assegurando as propriedades mecânicas do combustível, além de permitir uma eficiente extração do calor gerado na fissão nuclear. As propriedades do combustível ideal devem ser as mais isotrópicas possíveis, devendo-se evitar a fragmentação e alinhamento das partículas combustíveis. Portanto, a homogeneidade do núcleo de uma placa combustível à base de dispersão considera o conceito de uniformidade na concentração e distribuição das partículas físséis numa região grande, quando comparada com o tamanho das partículas e pequena quando comparada com as dimensões da placa combustível [20].

Atualmente, a qualidade da homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo da placa combustível é avaliada por meio de uma simples inspeção

visual. Para a inspeção visual, foi definida uma radiografia padrão, visualmente mais heterogênea em termos de distribuição de urânio, obtida dentre as radiografias feitas das placas combustíveis dos 10 primeiros elementos combustíveis irradiados no núcleo do reator, que atingiram queima média de até 35%, com ótimo desempenho, retirados do caroço até fevereiro de 1999. O procedimento de inspeção visual determina que, para serem aprovadas em termos de homogeneidade de distribuição de urânio, as radiografias das placas combustíveis devem apresentar uma aparência mais homogênea do que a radiografia padrão. A FIG. 5 apresenta uma imagem da radiografia do padrão de aceitabilidade, sendo ela obtida da pior, entre as radiografias, de um universo de 180 placas irradiadas no reator IEA-R1, com bom desempenho, que representa o limite superior de irregularidade na distribuição do ^{235}U superficialmente no núcleo da placa combustível.

Figura 5 – Imagem de radiografia ilustrando o padrão de aceitabilidade da homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo da placa combustível.

Na FIG. 6, observamos exemplos de radiografias onde a homogeneidade da distribuição de urânio é visualmente superior ao padrão (FIG. 6A) e igual ou inferior ao padrão (FIG. 6B), levando, nesse caso, à reprovação da qualidade da homogeneidade da distribuição de urânio e, conseqüentemente, à rejeição da placa combustível.

Este procedimento de qualificação, sendo subjetivo, deixa margem a infindáveis discussões acerca da aceitabilidade de placas combustíveis avaliadas quanto à homogeneidade da distribuição de urânio, discussões que invariavelmente caminham no sentido da segurança, ou seja, de recusar placas combustíveis com homogeneidade visualmente inferior à apresentada pela radiografia padrão.

Figura 6A – homogeneidade superior ao padrão

Figura 6B – homogeneidade inferior ao padrão

Figura 6 - Imagens de radiografia ilustrando diferentes níveis de homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo das placas combustíveis.

Durante as etapas de fabricação, as placas combustíveis passam por diversas fases de qualificação até a obtenção do produto final, atendendo à especificação técnica expressa no documento R19-IPN-213PR-1DJ-001. Essa especificação define valores para a densidade superficial de ^{235}U , conforme mostra a TAB. 1, na PÁG. 22. Segundo a especificação, a concentração superficial de ^{235}U no núcleo da placa combustível pode variar $\pm 12\%$ em torno do valor nominal especificado na tabela, válida para a Zona 1, ou zona central do núcleo da placa combustível. Nas extremidades do núcleo, na chamada zona de defeitos terminais, ou Zona 2, de comprimento 50,0 mm, conforme indicado no desenho da placa combustível, é permitido o desvio de $\pm 25\%$ em relação ao valor nominal da tabela, como ilustra a FIG. 7. Essa faixa de tolerância para a zona de defeitos, ou Zona 2, é substancialmente mais estreita do que a faixa especificada por outros fabricantes. Por exemplo, para o combustível à base de U_3Si_2 para o Reator de Pesquisa Oak Ridge (ORR), de 30,0 megawatts, a faixa de tolerância especificada é de $+27 -100\%$ em relação aos valores especificados para seu combustível [21].

Tabela 1 – Valores especificados para a densidade média de ^{235}U por unidade de área do núcleo combustível.

Material da Dispersão	Densidade de Urânio	Densidade Superficial de ^{235}U ($\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$)	ZONA 1 ($\pm 12\%$) DS_U ($\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$)	ZONA 2 ($\pm 25\%$) DS_U ($\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$)
U_3Si_2	$3,0 \text{ gU} \times \text{cm}^{-3}$	41,2	36,3 – 46,1	30,9 – 51,5

Figura 7 – Desenho esquemático especificando regiões denominadas Zona 1 e Zona 2 de homogeneidade das placas combustíveis.

Uma placa combustível é considerada não homogênea se, em algum ponto dela, detecta-se uma concentração de urânio maior ou menor do que uma porcentagem acima ou abaixo de um valor de densidade superficial nominal preestabelecido, que no caso do reator IEA-R1 deve ser de $41,2 \text{ mg } ^{235}\text{U}$ por cm^{-2} . A homogeneidade das placas combustíveis é uma variável muito importante, uma vez que afeta diretamente a segurança, a integridade e a vida útil do elemento combustível como um todo.

Devido à baixa potência atual do reator IEA-R1, a avaliação da homogeneidade da distribuição de urânio é feita por meio de inspeção visual e comparação com padrão. O padrão é uma radiografia feita de uma placa combustível que foi irradiada no reator IEA-R1 até queima de 35%, sem apresentar qualquer problema no seu desempenho.

Devido ao aumento da potência do reator IEA-R1 para 5,0 MW, e visando a produção de combustível nuclear para o reator RMB, a simples inspeção visual da homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo da placa

combustível não é mais suficiente para a qualificação do combustível, sendo necessária a caracterização quantitativa dessa homogeneidade. Tendo em vista a importância desta determinação quantitativa de urânio no núcleo de placas combustíveis e considerando a subjetividade da atual inspeção visual, foi colocado como o objetivo deste trabalho o desenvolvimento e implantação de uma metodologia que possibilite a determinação quantitativa da homogeneidade da distribuição de urânio no núcleo destas placas combustíveis, de uma maneira segura.

Uma vez que a infra-estrutura atual do Centro do Combustível Nuclear (CCN) conta com equipamentos de radiografia industrial, processamento automático e leitura de filmes radiográficos, a atenuação de raios X foi o método escolhido. Assim, com esse método, pretende-se determinar o valor da concentração superficial de urânio no núcleo da placa, tendo como consequência a aceitação ou rejeição da placa combustível, sob a luz da especificação vigente [22].

Como o reator IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP é um reator de baixa potência (máximo 5,0 megawatts), e operou por muitas décadas com a potência mínima de 2,0 megawatts, apesar da subjetividade, este critério de aceitação pela inspeção visual e comparação com um padrão para determinar a qualidade da distribuição de urânio no núcleo da placa combustível, mostrou-se eficaz visto que com esta potência os 93 elementos combustíveis fabricados pelo CCN com as placas combustíveis aprovadas, se apresentaram qualificados sob irradiação. Contudo, o desenvolvimento de um método quantitativo para essa qualificação, baseado em critérios objetivos, torna-se inadiável face aos planos de construção de um novo reator brasileiro, o Reator Multipropósito (RMB), de 30,0 megawatts, para a nacionalização da produção de radioisótopos. Num reator deste porte, a quantificação da homogeneidade da distribuição de urânio é imprescindível.

2 – OBJETIVO DO TRABALHO

Com esse trabalho, objetiva-se desenvolver um método de análise da quantidade de ^{235}U distribuído no núcleo da placa combustível por meio de densitometria óptica obtida a partir de imagens por raios-X, como meio de se escrever um procedimento operacional.

Pode-se basear esse método em três principais etapas:

- 1) Desenvolvimento de avaliação densitométrica quantitativa em imagens de radiografias de raios-X.
- 2) Estudo da distribuição estatística e amostragem das densitometrias ópticas no núcleo da placa combustível.
- 3) Adoção de uma metodologia de caracterização da homogeneidade da distribuição de ^{235}U pela área do núcleo combustível, descrevendo um procedimento operacional.

3 – RADIOGRAFIA INDUSTRIAL

Em 1895 o físico W. C. Roentgen descobriu os raios X, iniciando-se assim, estudos sobre emissões de partículas de corpos radioativos. Destacaram-se na época dois cientistas, Pierre e Marie Curie, que definiram o termo radioatividade como sendo a emissão de radiações por diferentes substâncias.

No início de 1903, outro cientista famoso, Rutherford, formulou hipóteses sobre essas emissões, mesmo sem o conhecimento do que era um átomo e núcleos atômicos, estruturando o que até hoje é conhecido como um modelo atômico [23].

Essas energias radiantes, que podem atravessar materiais opacos à luz visível e se comportam semelhantemente às propriedades da luz (como por exemplo, deslocam-se em linha reta, impressionam películas fotográficas, criam a fluorescência, ionizam gases), não são afetadas por campos elétricos ou magnéticos e se propagam à mesma velocidade da luz ($300.000 \text{ km} \times \text{s}^{-1}$). Entretanto, uma diferença importante e primordial está no seu comprimento de onda extremamente curto, capacitando-a a atravessar materiais que absorvem ou refletem a luz visível.

A energia radiante ou radiação, sendo uma emissão espontânea do núcleo atômico excitado, define o termo “radioatividade”, originando três diferentes tipos de partículas radioativas: a Alfa (α), de característica corpuscular e baixa penetração (cerca de alguns centímetros no ar); a Beta (β), também corpuscular, mas com um poder de penetração bem maior (cerca de alguns centímetros em materiais sólidos) e a gama (γ), de natureza ondulatória, possuindo, por isso, um alto poder de penetração em materiais.

As radiações X são emitidas nos átomos por suas camadas eletrônicas, ordenadamente, formando um espectro de emissão. No equipamento, os raios X são produzidos no tubo de Coolidge. Este tubo, feito de vidro, tem como principais componentes o cátodo, constituído por um filamento de tungstênio (metal com alto ponto de fusão) para resistir às altas temperaturas e que está envolvido pelo cone de focalização, feito de uma liga de ferro e níquel (Fe-Ni), já que por ele passa uma corrente elétrica da ordem de miliampères,

gerando espontaneamente elétrons que são atraídos, acelerados e concentrados em uma área restrita do ânodo.

Outro importante componente é o ânodo, também feito em parte por tungstênio, pois este material, além de resistir a temperaturas elevadas, apresenta alta densidade e, portanto, grande número de átomos para colisão. Ambos no interior do tubo estão sob vácuo, protegendo-os contra a oxidação e também proporcionando isolamento elétrico, para evitar a ocorrência de centelhas entre os eletrodos. O elemento mais afetado é o ânodo, que recebe o impacto dos elétrons, gerando os raios X e grande quantidade de calor. Devido às altas temperaturas envolvidas, há necessidade de um sistema de refrigeração para evitar danos aos componentes. Um fluido refrigerante, que normalmente é a água, circula no interior do ânodo para sua refrigeração. O tubo apresenta apenas uma abertura para a saída dos raios X, na direção desejada, após sua geração. O revestimento, geralmente feito de chumbo, tem a finalidade de reduzir a intensidade da radiação espalhada.

No ensaio por raios X, observam-se propriedades importantes que possibilitam atravessar o objeto. São elas o comprimento de onda dos raios X, a composição, a espessura e a densidade do objeto que interrompe o feixe de raios X. Essas propriedades definem o grau de absorção dos raios X. Como essas propriedades podem variar, nem todos os raios que penetram atravessam o objeto, e os que atravessam formam a imagem radiográfica [23].

Ao se utilizar radiação, os elementos envolvidos, que são fonte, objeto e filme radiográfico, possuem características que influenciam na imagem gerada. Essas características, juntamente com algumas propriedades que a luz, possui, semelhantes e comuns às radiações X e gama, são observadas quando trabalhamos com radiografias [24].

As diferenças entre os ensaios, envolvendo radiação ou luz, referem-se principalmente aos aspectos operacionais. A radiografia é, na realidade, uma sombra da peça provocada por seu posicionamento na trajetória das radiações X ou gama e pode se, neste caso, utilizar os mesmos princípios geométricos aplicados às sombras produzidas pela luz. Para compreender o que ocorre e, portanto, obter melhores resultados na radiografia, deve-se conhecer a influência da distância e da posição entre os elementos: fonte de radiação, objeto e filme. [23,25,26].

A imagem da peça no filme torna-se maior que a própria peça à medida que aumenta a distância entre a peça e o filme, resultando uma imagem irreal. Para que a imagem projetada no filme represente o tamanho real da peça, filme e peça devem estar próximos. Na prática, o filme deve estar em contato com a peça. A fonte de radiação, pelo contrário, deve ficar a mais afastada possível da peça e do filme, para minimizar o efeito de ampliação da imagem, respeitando as características do equipamento e da fonte [25].

Quanto maiores as dimensões da fonte emissora dos raios X (varia de 1 a 7 mm), menor a nitidez da imagem, devido a distorções na formação da imagem e da penumbra na radiografia. Para evitar este problema, deve-se utilizar uma fonte emissora com a menor dimensão possível. No caso dos raios X, para homogeneizar o feixe gerado, o alvo (ânodo) deve apresentar uma forma geométrica plana e angulada, propiciando um feixe de radiação direcional, de modo a concentrar a radiação emitida, influenciando assim na qualidade da imagem [25].

Se houver um desalinhamento entre a fonte, o objeto e o filme, a imagem resultará distorcida. Para eliminar esta distorção, deve-se colocar a fonte emissora o mais perpendicularmente possível em relação à base da peça e ao filme.

As principais variáveis que influenciam na quantidade de raios X emitidos, são:

- intensidade da corrente: a emissão de elétrons é diretamente proporcional à temperatura do filamento, que é aquecido pela corrente elétrica. Quanto maior for a corrente, maior será a temperatura do filamento e, portanto, maior a quantidade de elétrons emitidos. A intensidade da corrente é medida em mA (miliampere);

- diferença de potencial (DDP): a diferença de potencial ou voltagem é medida em kV (kilovolts). Quanto maior a DDP entre o ânodo e o cátodo, maior a aceleração dos elétrons, causando maior impacto no ânodo e gerando raios X com maior energia, ou seja, com maior poder de penetração e, conseqüentemente, pequeno comprimento de onda, como ilustrado na FIG. 8 [26].

Figura retirada da Referência Bibliográfica – [25]

Figura 8 – Desenhos esquemáticos das ampolas de tubo metálico (à esquerda) e de vidro (à direita) de um aparelho convencional de raios X [25].

A exposição, ou quantidade de radiação recebida, é diretamente proporcional à miliamperagem e à voltagem aplicadas ao tubo de Coolidge. Uma vez fixados esses dois fatores, o tempo de exposição é outro parâmetro que influi na sensibilização do filme. Quanto maior o tempo, maior a sensibilização. Portanto, é fundamental determinar o tempo de exposição e, para fazê-lo, utilizam-se as curvas de exposição fornecidas pelo fabricante do equipamento. Cada equipamento possui sua curva específica. Para entender melhor esse assunto, é necessário conhecer um pouco mais sobre os filmes radiográficos, tema que será abordado posteriormente.

3.1 – Homogeneidade do feixe de raios X

No aparelho, os raios X são produzidos nas ampolas, que variam de tamanho de acordo com a tensão máxima de operação. Podemos dividi-lo em duas partes principais, o painel de controle e a unidade geradora, como são mostrados na FIG. 9. Suas principais características são a voltagem e amperagem máxima, tamanho do ponto focal, tipo de feixe de radiação, peso e tamanho, o que determina a capacidade de operação do aparelho.

Figura 9 – Painel de comando (à esquerda) e ampola geradora do feixe do aparelho de raios X (à direita) do IPEN.

A determinação da área efetivamente útil (ou mapeamento) onde pode ser feita a radiografia, depende do feixe gerado e de sua abrangência, que por sua vez, depende da forma geométrica do ânodo que, se for plano e estiver posicionado de forma angulada na ampola, como na FIG. 8, formará um feixe de radiação direcional. Caso ele tenha a forma de um cone, formará um feixe de radiação panorâmico (360°).

O feixe de raios X deve estar rigorosamente perpendicular ao plano de exposição. Além disso, sendo o feixe divergente, sua intensidade diminui radialmente. Assim, deve-se avaliar a homogeneidade do feixe dos raios X incidente. Posicionar a unidade geradora o mais alto e o mais paralelamente possível à superfície de exposição acarreta melhor distribuição de feixe incidente nela e conseqüentemente, ocasiona menor variação em sua incidência na referida superfície.

3.2 – Parâmetros radiográficos

Deve-se considerar princípios geométricos como fatores que influem na qualidade e obtenção de radiografias. Para aumentar ou diminuir imagens formadas num filme, há uma relação entre a distância foco - filme que interfere diretamente na ampliação e qualidade da imagem formada: se o ponto de abertura para a emissão de raios X da fonte (foco) for pequeno e o objeto estiver distante, mais nítida será a imagem formada, e ao contrário, com maior diâmetro de abertura (foco) e menor distância do objeto, haverá maior formação da

penumbra e, conseqüentemente, distorção da imagem formada. Para maior nitidez ou definição, deve-se considerar a fonte geradora da radiação e a posição onde está localizado o material que será exposto entre esta fonte e o filme. Pode-se formar uma imagem distorcida do objeto caso o ângulo do plano do material variar em relação aos raios incidentes e, por esta razão, deve-se tomar os seguintes cuidados [25]:

- usar o menor diâmetro possível da fonte geradora de radiação;
- posicionar a fonte emissora o mais distante possível do objeto;
- posicionar o objeto o mais próximo possível do filme radiográfico;
- manter a perpendicularidade do feixe em relação ao filme;
- manter o perfeito paralelismo entre o objeto e o filme.

A norma que especifica a placa combustível [22], não cita penumbra como um ponto de aceitação ou rejeição, mas ela efetivamente acontece e por menor que seja, é considerada em nosso processo de transposição de medidas coletadas do filme radiografado para a placa combustível em seu corte final. Para diminuir algum erro existente, levamos em conta alguns cuidados, como a subtração das diferentes medidas entre o filme radiografado e a placa combustível física, e visualmente ocorrem distorções, ilustradas na FIG. 10 e, portanto, pode ser necessário aplicar a EQ. 2, verificando a aceitação ou não da possível penumbra existente, como demonstrado na TAB. 2 [26].

Figura 10 – Desenho esquemático da formação da penumbra.

Calcula-se a penumbra da seguinte forma:

$$Ug = \frac{F \times t}{D} \quad (2)$$

Onde: **Ug** = Penumbra geométrica (mm)

F = diâmetro do ponto focal (mm)

t = espessura do objeto (mm)

D = distância da fonte ao objeto (mm)

Tabela 2 – Parâmetros de aceitação da penumbra.

Espessura do material (mm)	Valor máximo da penumbra (mm)
Abaixo de 50,8	0,508
De 50,8 até 76,2	0,762
Acima de 76,2 até 101,6	1,016
Maior que 101,6	1,778

3.3 – Controle de sensibilidade radiográfica

Para dar maior nitidez às radiografias, diminuir o tempo de exposição e avaliar se uma radiografia representa bem o objeto ou material radiografado, usam-se as telas intensificadoras de imagem, que são finas telas de chumbo, colocadas acima e abaixo do filme, encapsulando-o, com a finalidade de diminuir o tempo de exposição sem interferir na ação da radiação X, auxiliando no controle visual da qualidade da imagem obtida na radiografia. Também conhecido como “ecran”. Estas telas evitam que as radiações que ultrapassam o filme reflitam de volta para ele, o que prejudicaria a nitidez da radiografia, além de favorecer uma maior absorção de radiação pelo filme. Alguns ecrans utilizados são cartões recobertos com película fina de chumbo, da ordem de centésimo de milímetro desde 0,05 mm até 0,25 mm. Posteriormente, com a coleta de medidas de densidade óptica, é possível determinar o contraste na chapa revelada, pela diferença entre o menor e o maior valor de densidade óptica obtido na leitura do aparelho.

Outro acessório que auxilia é o Indicador de Qualidade de Imagem (IQI), que nos mostra o grau de sensibilidade da radiografia obtida, Indicadores de

qualidade de imagem (IQI) são pequenas peças, colocadas sobre o objeto a ser radiografado ou área de interesse, chamado também de “penetrômetro”, construído com material igual ou similar ao objeto que será radiografado.

Estes IQIs são conjuntos de cinco ou sete fios com diâmetros distintos, do mais fino para o mais grosso, selados em um envelope de plástico transparente, contendo identificação e informação sobre eles. O IQI utilizado tem por base de escolha a espessura do objeto a ser radiografado, para depois a escolha das espessuras dos seus fios embalados, contendo o seu fio essencial, o fio mais fino do conjunto, que deverá ser visualizado após a revelação de filme, indicando uma ótima sensibilidade na revelação e qualidade da radiografia, comprovando as melhores condições radiográficas.

Existem normas da Sociedade Americana para Testes e Materiais (American Society for Testing and Materials - ASTM) [27], Sociedade Americana de Engenheiros Mecânicos (American Society of Mechanical Engineers - ASME) [28] e do Instituto Alemão para Normalização (Deutsches Institut für Normung - DIN), especificamente para IQIs do tipo fios, que estabelecem critérios em sua utilização e escolha do IQI ideal no processo, diferenciando em suas identificações e diâmetros dos fios empregados no ensaio, mas qualquer delas com a mesma aplicabilidade para qualificação da imagem gerada. Exemplos de IQIs ASTM e DIN estão ilustrados na FIG. 11.

Figura 11 – Indicadores de Qualidade de Imagem (IQIs).

3.4 – Controle de tempo de exposição radiográfica

Sabe-se que as radiografias são o resultado da intensidade da radiação e do tempo de exposição. Nem toda intensidade da radiação gerada na fonte é recebida pelo filme, por interferência do objeto e pode-se salientar que, mesmo sem o objeto, o total dessa radiação não atingiria o filme. Explica-se isso pela divergência que ocorre nos raios gerados, em seu caminho até atingir o objeto: estando o objeto mais próximo da fonte, sofrerá maior incidência dos raios X gerados e, mais distante, menor incidência.

Com a lei do inverso do quadrado da distância, pode-se caracterizar essa ação. Imagine-se uma lâmpada acesa, à distância de um metro da superfície de uma mesa. Se elevarmos esta mesma lâmpada a dois metros de altura, isto é, se multiplicarmos a altura por dois, o nível de iluminação na superfície da mesa será dividido por quatro, (quadrado da distância entre a fonte de luz e a superfície). A FIG. 12 ilustra esse fenômeno.

Figura 12 – Lei do Inverso do Quadrado da Distância.

Este fenômeno recebe a definição de lei do inverso do quadrado da distância, ou lei da atenuação da radiação. Essa lei também se aplica aos ensaios radiográficos, pois nesses casos as radiações emitidas têm propriedades semelhantes às da luz visível, e sofrem interferência da ionização que ocorre no ar.

Ionização é o processo que torna o ar condutor de eletricidade. Sabe-se que a uma distância **d1** corresponde uma intensidade **I1** e a uma distância **d2**

corresponde uma intensidade **I2**. A lei do inverso do quadrado da distância estabelece a seguinte relação matemática, vista na EQ. 3 [25]:

$$\frac{I(1)}{I(2)} = \frac{[D(2)]^2}{[D(1)]^2} \quad (3)$$

Onde: **I(1)** = Intensidade da radiação a uma distância **D(1)**

I(2) = Intensidade da radiação a uma distância **D(2)**

A intensidade com que um feixe de radiação atinge uma superfície é inversamente proporcional ao quadrado da distância entre esta superfície e o ponto de emissão, ou seja, a radiação é atenuada em virtude do aumento da distância. Esse é outro fator que limita a colocação da fonte distante da peça, para minimizar a ampliação da imagem. Esta perda de eficiência pode ser compensada pelo aumento no tempo de exposição ou na miliamperagem para geração dos raios X emitidos.

3.5 – Filmes radiográficos

Os filmes radiográficos são compostos por uma emulsão e uma base. A base geralmente é constituída por derivados de celulose, transparente e de cor levemente azulada. A emulsão é uma fina camada de gelatina (espessura de 0,025 mm), com diversos e minúsculos cristais de brometo de prata e depositados em ambos os lados do filme.

Quando os cristais de brometo de prata são atingidos pela radiação, tornam-se susceptíveis à reação com o revelador químico, que age sobre os cristais, reduzindo-os a prata metálica negra. Nos locais mais atingidos por radiação, aparecerão mais grãos negros em contraposição às regiões menos afetadas e dessa forma pode-se observar, sob a ação de uma fonte de luz, as áreas mais escuras e mais claras, que irão compor a imagem do objeto radiografado [25].

As principais características dos filmes são: granulação, densidade radiográfica ou óptica, velocidade do filme, classificação, qualidade, contraste da imagem, definição e processamento.

Granulação é o agrupamento de pequenas partículas de sais de prata que formam, após a revelação, a imagem no filme e pode ser vista a olho nu. A união destas pequenas partículas forma uma imagem, que pode ser mais bem visualizada com auxílio de um negatoscópio ou com um pequeno aumento por uma lente.

Densidade radiográfica é a medida coletada da transparência do filme emulsionado, com regiões mais claras e mais escuras, evidenciando a formação de uma imagem. Os diferentes tons de cinza observados na radiografia podem ser medidos, gerando valores. Por análise densitométrica, entende-se a medição e avaliação de valores de densidade óptica em uma placa radiográfica, que se pode definir como sendo o logaritmo da razão entre a luz visível que entra na parte superior da radiografia (luz incidente) e a luz visível que sai na superfície inferior da radiografia (luz transmitida), como expressa a EQ. 4:

$$DO = \log \frac{I_o}{I}$$
(4)

Onde: **DO** = Densidade Óptica

I_o = Intensidade de luz incidente

I = Intensidade de luz transmitida

Filmes que apresentam grãos maiores ou mais acentuados são mais rápidos para trabalho, necessitam de menor tempo de exposição, do que os de menor granulação. Por esta razão, os filmes com grãos mais finos são recomendados quando há o emprego de fontes de raios X de alta energia. Outro fator que interfere aumentando a granulação é um maior tempo de revelação, que acarreta automaticamente um aumento na densidade e na velocidade de trabalho do filme.

Para conceituar a velocidade de trabalho de um filme, é necessário entender que exposição significa a medida da quantidade de radiação que atinge um filme e é representada pelo produto da intensidade da radiação gerada pelo tempo de exposição, evidenciando assim uma maior densidade óptica medida no filme.

Quando expomos igualmente dois filmes com diferentes velocidades, um mais rápido e outro mais lento, teremos valores de densidades ópticas diferentes, sendo que o filme mais rápido apresentará maior densidade, pois necessita de menor tempo de exposição para atingir uma determinada densidade óptica.

Quanto maiores os cristais de prata no filme maior será sua velocidade, formando uma imagem mais grosseira e menos nítida [29].

Os filmes são classificados de diferentes formas, para que seja mais fácil escolher adequadamente um determinado tipo de filme para cada tipo de material a radiografar, já que há uma infinidade de condições e características de heterogeneidade em relação aos materiais estudados com radiografia industrial. A Sociedade Americana para Testes e Materiais propôs uma classificação (ASTM E-1815-96) [30] para os filmes radiográficos, segundo a qual eles são identificados pela velocidade de exposição e sensibilidade. A velocidade de exposição esta relacionada a dose de radiação X necessária para que o filme seja sensibilizado.

Os filmes radiográficos estão classificados conforme apresentado na TAB. 3, pela ASTM, nos seguintes tipos [25]:

Tabela 3 – Classificação de filmes pela ASTM E-1815-96.

TIPO de FILME	Sistema de Classe ASTM	Velocidade "S" ISO	Dose Ks em mGray Para densidade 2,0
A	Especial	32	29,0
B	I	64	14,0
C	I	100	8,7
D	I	200	4,6
E	II	320	3,2
F	III	400	2,5
G	WA	100	8,6
H	WB	300	5,0

tipo A: classe especial – granulação extremamente fina e muito alto contraste. Para obtenção de alta qualidade de imagem em componentes eletrônicos, ligas leves, usado diretamente sob o objeto na superfície de exposição ou com telas intensificadoras;

tipo B : classe I – granulação ultrafina, alto contraste e qualidade. Usado para ensaios em metais leves ou pesados ou seções espessas sob alta

energia de radiação. Não possui granulação tão fina quanto o tipo A, mas possui alta velocidade e praticidade, sendo indicado para ampliações ópticas;

tipo C : classe I – granulação extrafina, média velocidade e alto contraste. Indicado para alta energia de radiação, com ou sem telas intensificadoras;

tipo D : classe I – granulação muito fina, alta velocidade e contraste, se utilizado com telas intensificadoras;

tipo E : classe II – granulação muito fina, alto contraste e velocidade, muito utilizado na indústria pela qualidade e produtividade;

tipo F : classe III – granulação média, pouca utilização na indústria e;

tipos G : classe WA e H : classe WB – são filmes de tecnologia intermediária com qualidade de imagem igual ou superior aos filmes da classe III.

É importante salientar que filme radiográfico mal armazenado, suscetível a exposições de baixas radiações ou excessivo calor, tem suas propriedades e qualidades alteradas. Todo filme apresenta, como característica de fabricação, certa densidade de fundo chamada “Véu de Fundo”, base azulada característica no filme, que pode ser ainda mais acentuada em condições adversas.

Definidos alguns parâmetros ligados às características do filme e da fonte de radiação utilizada, caracteriza-se a qualidade da imagem gerada, havendo, assim, um critério para aceitação ou rejeição da radiografia.

A imagem no filme é formada pela variação de densidade apresentada nele, ou seja, regiões claras e escuras. A diferença medida nessas regiões determina o contraste. Quando se observa com cuidado a imagem formada no filme radiográfico, nota-se que a mudança de densidade não ocorre de maneira brusca, quanto mais estreita for esta faixa de transição, melhor será a definição da imagem.

Durante o processo de obtenção da radiografia, no momento de sua revelação, é necessária muita atenção e cuidado para que se mantenha ótima limpeza dos equipamentos e da câmara escura para o manuseio do filme. Para a preparação dos banhos, devem ser seguidas as recomendações específicas dos fabricantes. Os filmes devem ser manuseados dentro da câmara escura com luz de segurança de baixa intensidade e a certa distância dos filmes processados, para que não interfira na densidade óptica obtida na revelação [31, 32].

4 – MÉTODOS DE MEDIDA DA HOMOGENEIDADE DA DISTRIBUIÇÃO DE URÂNIO EM PLACAS COMBUSTÍVEIS

Obedecendo a critérios de controle de qualidade, todas as placas combustíveis envolvidas na fabricação de um elemento combustível necessitam apresentar uma homogeneidade, em sua distribuição de urânio, dentro de valores especificados na TAB. 1 da PÁG. 22 [22].

Nas placas combustíveis existem regiões denominadas homogênea (Zona 1), e heterogênea ou difusa (Zona 2). Durante o processo de laminação, devido à diferença entre as propriedades mecânicas dos revestimentos e do núcleo, são inevitavelmente formados defeitos na extremidade do núcleo da placa combustível laminada.

Tais defeitos são conhecidos como “osso de cachorro” (ou “dogboning”) e “rabo de andorinha” (ou “fishtail”). A zona 1, ou homogênea, é a zona central da placa, onde estes defeitos não ocorrem e, portanto, a espessura da placa é uniforme. A zona 2 considerada a região a 50,0 mm das extremidades do núcleo, denominada heterogênea ou difusa, e onde ocorrem defeitos que causam o espessamento do núcleo (“osso de cachorro”) e, como consequência, um aumento localizado na concentração de urânio nestes locais. Essas zonas 1 e 2 são mostradas esquematicamente na FIG. 7 da PÁG. 22.

A determinação quantitativa da homogeneidade na distribuição de urânio em placas combustíveis está limitada a poucas técnicas. A técnica mais habitual é a varredura gama, ou “gamma scanning” [33], que faz uma contagem da emissão gama “ γ ”, medindo sua intensidade em um determinado volume da placa combustível, por um dispositivo de movimentação e posicionamento, varrendo transversal e longitudinalmente a área ativa da placa combustível, coletando estas emissões por um colimador blindado e as enviando para um detector de Iodeto de Sódio ativado com Tálcio (NaI (TI)), que fará a interface com um software para coleta de dados.

Essa técnica é confiável, rápida, mas demanda um equipamento de alto custo e apresenta vantagens como não ser uma técnica destrutiva, não ter necessidade de dispositivos para medição no núcleo da placa e boa precisão dos resultados obtidos.

Atualmente, novas técnicas para esta medição estão sendo desenvolvidas. Em uma delas, a idéia principal é determinar a densidade superficial de urânio em placas combustíveis por dois métodos, um quantitativo e um semiquantitativo, através da utilização de dois conjuntos diferentes de padrões e técnicas radiográficas.

No primeiro, não são utilizados os padrões usuais usinados feitos de ligas binárias de urânio-alumínio. Os conjuntos de padrões aqui empregados são fabricados pela aplicação de técnicas de metalurgia do pó, ou seja, compactação, cálculo do teor de material físsil e aplicação na radiografia do núcleo da placa combustível. Este tipo de padrão leva em conta o mesmo material físsil da placa e os outros elementos presentes nas placas combustíveis (como o alumínio, silício, molibdênio, etc.). Assim, estes novos tipos de padrões tornam possível a aplicação de modelos quantitativos para determinar a densidade superficial de urânio com mais precisão.

No segundo semiquantitativo, aplicando-se a técnica radiográfica em placas combustíveis, com jogo de padrões retirados por puncionamento da região do núcleo de placas combustíveis fabricadas com teor de urânio dentro da variação aceita para valor mínimo e máximo de teor de urânio para a região do núcleo. Estes padrões são posicionados em pelo menos três regiões para amenizar uma possível variação no feixe de raios X pelo comprimento da placa combustível, permitindo realizar uma rápida estimativa da distribuição superficial do ^{235}U no núcleo da placa. Ambas as técnicas mostraram ser aplicáveis nestas determinações superficiais de urânio, embora a quantitativa apresente a vantagem de não ser uma técnica destrutiva e facilmente aplicada aos mais variados tipos de placas combustíveis [34].

Segundo apresentado por Barrera [35], ao se utilizar a absorção por raios X gerando uma imagem bidimensional na radiografia da placa combustível, obtemos diferentes níveis de cinza na imagem, informando sobre como ocorre essa atenuação ao longo de uma trajetória num espaço tridimensional, na direção da espessura da placa combustível. Associando essa atenuação à densidade do material atravessado e, conseqüentemente, neste caso, à distribuição de urânio no núcleo, podemos observar a homogeneidade de placas combustíveis por dispersão de U_3Si_2 numa matriz de alumínio.

Comparando-se resultados encontrados entre as leituras de densidade óptica obtidas na região do núcleo da placa combustível por um densitômetro, nas radiografias feitas em três secções para cobrir esta região e compensar desvios pela possível não homogeneidade do feixe de radiação, juntamente com um conjunto de padrões permitindo cobrir a variação aceitável de valores de densidade superficial nominal na área estabelecida do núcleo.

Para diminuir a imprecisão na coleta de dados, os padrões são fabricados através do puncionamento em regiões pré determinadas das placas combustíveis de produção rotineira com teor de $\text{gU} \times \text{cm}^{-2}$ totalmente conhecidos e confirmados por análise química. Com a coleta de medidas pela técnica de densitometria óptica e após escaneamento da radiografia gerada, pelos tons de cinza existentes na radiografia, e análise do software no aparelho denominado analisador de imagens, pode-se comparar os resultados apresentados em imagem e em gráficos dos valores de $\text{gU} \times \text{cm}^{-2}$, pelo núcleo da placa combustível.

A densitometria óptica, que é um método relativamente rápido para coleta e trabalho com grande quantidade de dados coletados, é de fácil aplicação, sendo também muito ilustrativo, o que permite refletir realisticamente os valores obtidos nas leituras em teor de urânio no núcleo da placa. Por meio de um analisador de imagens foi observado que, escaneando-se as três secções das radiografias feitas para gerar a imagem e com o software adequado pode-se chegar a um modelo de leitura de tons de cinza bem configurado e controlado, deixando ainda mais rápida a localização e avaliação, com menor desvio dos valores nominais na análise em relação ao método densitométrico. O trabalho realizado mostra a eficiência na aplicação de ambos os métodos [35].

A metodologia apresentada por Salinas [36], em relação as placas combustíveis fabricadas para utilização no reator de pesquisa RECH-1, da Comissão Chilena de Energia Nuclear (CCHEN), mostra uma comparação entre duas diferentes técnicas de quantificação da distribuição da densidade superficial de $\text{gU} \times \text{cm}^{-2}$, novamente empregando radiografia, realizada em três secções da placa combustível, para amenizar desvios pela não homogeneidade do feixe no comprimento total da área a ser analisada, a primeira com leituras por densitometria óptica e a segunda com o escaneamento da radiografia para

aplicação de técnicas digitais sobre ela, visando melhorar o sistema de controle de qualidade dos combustíveis nucleares utilizados em seu reator.

O procedimento inclui maior quantidade de radiografias, em diferentes posições e tempos de exposição, realizadas juntamente com padrões, que para apresentarem o mesmo comportamento dos núcleos das placas combustíveis frente a exposição aos raios X, foram retirados de placas combustíveis fabricadas com diferentes densidades superficiais de urânio natural, e enviadas para confirmação de teor de urânio por análise química. Diferentes leituras de densidade óptica foram obtidas, variando assim a densidade superficial.

A metodologia consistiu em primeiramente escanear a imagem, localizar a região do núcleo e dos padrões na imagem digitalizada e quantificar os tons de cinza existentes no núcleo da placa e nos padrões posicionados em cada radiografia. Pela comparação entre os resultados obtidos por densitometria óptica e medidas digitais no escaneamento, pôde-se observar um pequeno desvio entre os valores finais, sendo que, por densitometria, foi obtido maior valor nos máximos e menores valores nos mínimos, em relação ao método de escaneamento, o que se explica pela maior área de varredura na análise de imagens em relação à área de abertura de luz do densitômetro, que efetivamente faz a leitura de densidade óptica.

Esses valores foram transformados em densidade superficial de urânio. A técnica de análise de imagens demandou um tempo muito inferior tanto na coleta, como na análise dos dados obtidos, em relação à técnica por análise densitométrica, que necessita maior tempo.

5 – METODOLOGIA ADOTADA

Com os equipamentos existentes no Centro do Combustível Nuclear – CCN foi possível realizar este estudo, utilizando a técnica de exposição por raios X. Determinou-se a maior e mais homogênea área possível para as radiografias.

Foram fabricados padrões confiáveis para transformação das leituras obtidas de densidade óptica e determinadas as melhores condições de exposição radiográfica para otimizar os resultados. Os filmes foram revelados automaticamente e a área do núcleo combustível (cerca de 360,0 cm²) foi dividida em regiões de 1,0 cm², para coleta de dados. As medidas foram feitas com um densitômetro óptico para, através da interface com um computador, elaborar planilhas e gráficos demonstrativos dos resultados finais conclusivos.

5.1 – Mapeamento do feixe de raios X

A determinação da área efetivamente útil (ou mapeamento) onde pode ser feita a radiografia, preferencialmente de uma só vez e, se possível, com maior número de placas ao mesmo tempo, é extremamente importante para a aplicação da metodologia, pois garante a repetibilidade e precisão do método. Foram colocadas 9 chapas do filme Agfa D7 de 43,0 cm de comprimento x 35,0 cm de largura, de modo a cobrir toda a área útil de trabalho. Somente as chapas foram expostas aos raios X, procedimento denominado “teste em branco”.

Esses filmes em chapa foram colocados em porta filmes denominados “chassis”, que servem para proteger e acomodar os filmes mais perfeitamente à superfície de exposição de 1,0 m². A FIG. 13 ilustra o esquema do teste em branco realizado para o mapeamento da área para exposição radiográfica.

Figura 13 – Esquema de posicionamento dos filmes na superfície para radiografia.

Para o mapeamento, as condições radiográficas utilizadas foram de 90,0 kilovolts de diferença de potencial, 6,0 miliamperes de intensidade e 60 segundos no tempo, suficientes para atingir uma densidade óptica aproximada à dos valores obtidos nas placas combustíveis de produção: entre 2,20 e 2,30 de densidade óptica, na região onde somente o filme recebe exposição e, aproximadamente, 1,30 na região do núcleo combustível, área do filme onde ocorre atenuação pela dispersão de urânio no núcleo. Esses valores foram adotados como referência apenas para o estudo, retirados de medidas de densidade óptica obtidas em radiografias de defeitos de placas combustíveis de produção rotineira.

O método proposto baseia-se na análise densitométrica da radiografia do núcleo da placa combustível. Por análise densitométrica entende-se a medição e avaliação de valores de densidade óptica em uma placa radiográfica.

Essa medição foi realizada usando-se um Densitômetro Óptico de Transmissão MacBeth TD-904, com exatidão de $\pm 0,02$ em densidade óptica, diâmetro da janela de abertura de 3,0 mm, mostrado na FIG. 14, localizado no Laboratório de Raios X do CCN.

Figura 14 – Densitômetro MacBeth TD - 904.

Para o processo de revelação no presente estudo, foi utilizada uma processadora automática de marca AGFA, modelo Structurix NDT E, que possibilita o manuseio de películas planas e em rolos, variação do ciclo e do tempo de revelação em três tanques contendo o revelador, o fixador e a água, para passivação e lavagem, como mostra a FIG. 15.

Legenda:

1- Plataforma de alimentação do filme	6- Tanque de água
2- Painele controle	7-Saída dos rolos removíveis
3- Área de varredura do filme	8- Secador infravermelho
4- Tanque do revelador	9- Bandeja de saída dos filmes
5- Tanque do fixador	10- Drenos da processadora

Figura 15 – Imagem e desenho esquemático da Processadora Structurix NDT E.

Principais etapas do ensaio:

1- Na câmara escura, montar o chassi-suporte ou filme envelopado com o ecran, para blindar à luz, com a etiqueta de identificação da radiografia.

2- Montar o sistema no compartimento de blindagem (bunker), local onde se aloja o tubo de raios X, e se coloca o conjunto formado pela peça e o chassi montado, que serão submetidos à radiação. Este compartimento pode ser feito de estrutura metálica revestida com camada de chumbo ou por paredes de concreto, que geralmente são construções para peças maiores. Nessa montagem, incorpora-se ainda um dispositivo de índice de qualidade de imagem (IQI) sobre a peça, para verificar a qualidade da radiografia.

3- Fechar a porta do compartimento, acionando o sistema de segurança visual, pois somente assim o equipamento pode ser ligado, evitando a exposição dos operadores e meio-ambiente à radiação. Regular o equipamento no painel de controle, ajustando o tempo, a voltagem e a amperagem.

4- Após ligar o equipamento, o sistema de refrigeração do tubo começa a circular. Aguardar o tempo estipulado. Decorrido o tempo determinado, desligar a máquina e retirar o chassi do compartimento de segurança. Processar o filme (revelação) na câmara escura, submetendo-o a um processamento químico, a fim de revelar e fixar a imagem obtida na chapa radiográfica. Verificar a qualidade da radiografia num negatoscópio, que é um dispositivo constituído por uma caixa com vidro fosco, tendo em seu interior lâmpadas fluorescentes, para melhor visualização, como ilustra a FIG. 16.

Feita a revelação, pode-se obter a densidade radiográfica no filme revelado com o auxílio de um densitômetro óptico [37, 38].

Figura 16 – Negatoscópio de parede e de bancada.

Após localização, marcação e identificação da melhor região do mapeamento da área pelas radiografias, visando cobrir a área do núcleo da placa combustível. As radiografias foram realizadas juntamente com um conjunto de padrões posicionados sobre o filme e ao lado da placa combustível, como ilustra a FIG. 17.

Figura 17 – Filme com placa e jogo de padrões para radiografar.

O feixe de raios X deve estar rigorosamente perpendicular ao plano de exposição. Assim, foi avaliada a homogeneidade do feixe dos raios X incidentes, para determinar a área total realmente efetiva na superfície de trabalho, de forma que ocorra a menor variação possível de densidade óptica no filme em branco. Para isto, a ampola é presa ao teto do compartimento de retenção, no local mais alto possível para trabalho, e a superfície de exposição deve ser plana e o mais paralela possível ao ponto focal da ampola, por onde sai o feixe incidente, como mostra a FIG. 18.

Figura 18 – Suporte da ampola geradora do feixe (à esquerda) e superfície para mapeamento do feixe de raios X (à direita).

Nesse estudo utilizamos um aparelho de raios X localizado no Laboratório de Raios-X do Centro do Combustível Nuclear da marca PHILIPS, modelo MG 161, com duas possíveis aberturas no ponto focal da ampola, podendo ser de 0,4 mm ou de 3,0 mm, e voltagem nominal de 160,0 kilovolts. Nesse estudo utilizou-se a abertura de 3,0 mm.

Uma vez reveladas, as chapas radiográficas foram traçadas com grafite, divididas em áreas de 1,0 cm² por toda sua superfície e medidas com o densitômetro óptico, ponto a ponto, totalizando 1000 leituras de densidade óptica. Avaliando-se as 9 radiografias colocadas em toda a superfície do granito, foi determinada e marcada a melhor posição ou local, abrangendo a área total do núcleo de uma placa fabricada (aproximadamente 7,0 cm de largura x 63,0 cm de comprimento) para executar a radiografia. Esta posição foi determinada onde ocorreu a menor variação das leituras de densidade óptica.

5.2 – Confeção dos padrões de densidade óptica

Os padrões foram fabricados de uma liga obtida por fusão em um forno de indução, visando atingir alto grau de homogeneidade no composto de urânio-alumínio, liga metálica que facilita a usinagem, como meio de se obter o jogo de padrões com diferentes espessuras, como ilustra a FIG. 19. Estes padrões contêm uma quantidade de urânio conhecida, analisada e certificada por análise química, que está distribuída homogeneamente por todo o volume dos mesmos. A concentração de urânio nesta liga deve ser tal que a faixa de densidades ópticas obtidas numa radiografia de padrões com diferentes espessuras inclua as densidades ópticas máximas e mínimas da placa combustível cujo núcleo deve ser analisado.

Figura 19 – Lingote de UAl com padrões fabricados por usinagem.

Os padrões foram fabricados a partir de um lingote, confeccionado usando-se uma liga com concentração de urânio nominal de 30% em peso, solubilizado em alumínio, concentração esta que, utilizando-se espessuras de padrões numa faixa confortável (1,0 a 4,0 mm), gerou uma faixa de densidades ópticas dentro da qual estão inseridas aquelas obtidas de placas combustíveis contendo núcleos com concentrações de urânio na faixa de interesse, sejam à base de U_3O_8 -Al ou de U_3Si_2 -Al. O lingote foi solidificado rapidamente para que apresentasse uma microestrutura homogênea, com o mínimo de segregações, para então serem obtidos os padrões usinados diretamente do lingote.

Padrões com diferentes medidas de espessura foram fabricados para gerarem diferentes valores de densidades ópticas, mais ou menos distribuídos entre os valores máximos e mínimos medidos no núcleo da placa combustível, de modo a obter-se uma curva de calibração bem caracterizada. O diâmetro do lingote foi definido para possibilitar a medição da densidade óptica em, no mínimo, cinco posições diferentes de cada padrão. Um diâmetro de 15,0 mm foi utilizado, suficientemente grande, considerando-se a janela no densitômetro, cujo diâmetro é de 3,0 mm. É importante a obtenção de alto grau de paralelismo entre as faces dos padrões e suas espessuras foram determinadas com grande precisão. A composição exata da liga U-Al utilizada deve ser determinada, precisamente, por análise química do urânio total.

Todos os padrões foram posicionados juntamente com a placa combustível sobre o mesmo filme radiográfico, sendo expostos simultaneamente para garantia de reprodutibilidade de exposição e revelação. No caso dos padrões de liga U-Al, foi incluído sobre e sob cada padrão uma folha de alumínio do

mesmo material (atualmente Al 6061) e com a mesma espessura do revestimento da placa combustível (superior e inferior), de 0,38 mm ou 380 μm , valor conhecido com base na reprodutibilidade do processo de fabricação. Dessa forma, obtém-se, numa mesma radiografia, a imagem do núcleo combustível e dos padrões.

5.3 – Seleção do filme e definição das condições de exposição radiográfica

Outro estudo necessário se faz em relação à seleção do filme radiográfico, já que se encontra disponível uma grande variedade de filmes. Como mostrado anteriormente, há a Sociedade Americana para Testes e Materiais (ASTM) e Sociedade Americana de Engenharia Mecânica (ASME) [25], que classificam o filme pela sua velocidade e sensibilidade. Atualmente, o filme utilizado no CCN é do tipo E classe 2, que é um filme de granulação fina com alto contraste e velocidade, apresentando boa qualidade na revelação e alta produtividade. Trata-se do filme Agfa Structurix D7, escolhido pela facilidade de obtenção no formato de rolo (roll-pack) com 10,0 cm de largura x 100,0 m de comprimento, o que é necessário para que seja feita a radiografia da placa combustível de uma só vez, facilitando a avaliação, reprodutibilidade e a produção. A FIG. 20 ilustra o filme usualmente utilizado no CCN.

Figura 20 – Embalagem do filme em rolo (à esquerda) e filme cortado após exposição (à direita).

Contudo, existem outros fabricantes de filmes no formato rolo, como a Fuji e a Kodak. Além disso, estão também disponíveis filmes de classe 1, com

granulação ultra-fina, alto contraste e qualidade de imagem [23,26], o que os qualificariam ao menos para serem testados nesta metodologia.

5.3.1 – Projeto experimental

Sendo assim, foi necessária a realização de um projeto experimental com o objetivo de selecionar o melhor filme e as melhores condições de exposição, com possíveis variações da energia do feixe, corrente do feixe e tempo de exposição, de modo a maximizar o contraste da imagem obtida. O projeto de experimento foi realizado com 4 diferentes filmes disponíveis no mercado e possíveis de serem encontrados na forma de rolos.

No projeto de experimento foram testados os filmes Kodak AA400; Agfa D7 de classe II, tipo E; Fuji Lx50 de classe I, tipo B e o Agfa D4 de classe I e tipo C. Estes filmes foram escolhidos devido à “relativa” facilidade de mercado, visto que todos são importados, mas principalmente por apresentarem formato de rolo (roll-pack), o que facilita o manuseio e obtenção da radiografia de uma só vez beneficiando a produtividade, levando-se em conta o comprimento da placa combustível.

O teste consistiu na realização de 18 radiografias com diferentes condições de kilovtagem (kV), miliamperagem (mA) e tempo (s), com ajuda do software Estatística [39], pelo método: “Central Composite Experiment (Response Surface)”, gerando aleatoriamente as condições dos testes. Todas as radiografias foram feitas com uma tela intensificadora de chumbo (ecran) e penetrômetro ou IQI (DIN 16), separadamente, sendo mantida a mesma posição na superfície de exposição.

Para avaliação do contraste, foram escolhidas e marcadas na região do núcleo de uma placa combustível de produção rotineira, duas áreas de aproximadamente 1 cm^2 , uma que apresentasse o menor valor de leitura de densidade óptica (região mais clara) e outra com o maior valor de leitura (região mais escura). Foi então realizada a sequência de exposições (18), com suas respectivas condições, uma de cada vez e sempre na mesma posição para todos os filmes. Reveladas as radiografias, foram então medidas suas densidades ópticas nas áreas determinadas como mais escura e mais clara em cada uma, gerando valores para comparação e escolha, como ilustra a FIG. 21.

Figura 21 – Radiografia com áreas escolhidas para coleta de medidas.

Este teste permitiu a escolha da condição de máximo contraste comparativamente entre os filmes, definindo o filme AGFA D7 como o de maior e por conseqüência, o de melhor contraste. Isso originou um segundo projeto experimental, agora com o filme AGFA D7 escolhido, para determinar com mais precisão a condição de exposição e obtenção do maior contraste deste filme. Este segundo projeto foi executado com 23 diferentes condições de kilovtagem (kV), miliamperagem (mA) e tempo (s), novamente geradas com ajuda do software Estatística, pelo método: “Central Composite Experiment (Response Surface)”. Todas as radiografias foram executadas, marcadas e medidas exatamente da mesma forma como no projeto anterior.

Assim, com os dois projetos experimentais, foram definidos o filme de trabalho e melhores condições de exposição.

5.4 – Metodologia de quantificação da concentração de urânio no núcleo da placa combustível

Por meio da utilização do densitômetro óptico de transmissão, e com o núcleo da placa combustível dividido em seções de $1,0 \text{ cm}^2$, realizou-se, no centro dessas seções, uma leitura de densidade óptica, como ilustra o esquema da FIG. 22.

Figura 22 – Esquema de registro radiográfico para medição de densidades ópticas no núcleo da placa combustível.

A exposição radiográfica da placa combustível, foi realizada juntamente com o conjunto de padrões com 9 peças, como mostra a FIG. 23, posicionados na região central da placa combustível. Foi calculada a média aritmética de cinco leituras obtidas em cada um dos padrões e determinados os valores das densidades ópticas obtidas em cada seção de $1,0 \text{ cm}^2$ da radiografia do núcleo. Nenhuma densidade óptica obtida do núcleo combustível ou dos padrões foi descartada.

Figura 23 – Registro radiográfico do conjunto de padrões, no centro da placa combustível.

Os valores de densidade superficial de ^{235}U são calculados de acordo com a massa de urânio total que compõe o núcleo de uma placa combustível, dividida pela área nominal do seu núcleo. A TAB. 4 mostra os valores válidos para os dois tipos de combustíveis fabricados pelo IPEN/CNEN-SP. Esses são os

valores de densidades superficiais que definem a homogeneidade da distribuição de urânio nas placas combustíveis, aprovando-as ou rejeitando-as a partir de um método de controle. Estes valores foram definidos com base nos valores nominais especificados para o comprimento e largura do núcleo e não consideram a variação dimensional permitida pelo desenho do projeto de fabricação da placa combustível, que sendo considerada, aumentam os valores desta variação e consequentemente os valores de densidade na área superficial do núcleo da placa, assunto tratado mais adiante no trabalho.

Tabela 4 – Valores especificados no Item 5 – Tópico 5.4 que trata da homogeneidade no núcleo da placa combustível de ^{235}U por unidade de área.

Material da Dispersão	Densidade de Urânio	Concentração Superficial de ^{235}U ($\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$)	ZONA 1 ($\pm 12\%$) ($\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$)	ZONA 2 ($\pm 25\%$) ($\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$)
U_3O_8	$2,3 \text{ gU} \times \text{cm}^{-3}$	32,4	28,5 – 36,3	24,3 – 40,5
U_3Si_2	$3,0 \text{ gU} \times \text{cm}^{-3}$	41,2	36,3 – 46,1	30,9 – 51,5

Na FIG. 24, tem-se um exemplo da curva de calibração, correlacionando-se valores obtidos de densidade óptica em cada padrão, variando do maior valor de densidade óptica ao menor, por efeito de suas diferentes espessuras, determinam-se diferentes concentrações de ^{235}U em cada peça do conjunto

Figura 24 – Exemplo da curva de calibração construída pela relação da densidade superficial de ^{235}U e densidades ópticas medidas dos padrões.

A construção e explicação destas curvas de calibração encontram-se detalhadas nos resultados e discussão do trabalho.

A partir dos valores obtidos desta curva de calibração, foi realizada uma regressão que gera uma equação, onde substituindo as incógnitas pelos valores de densidade óptica medidos ponto a ponto na placa combustível, num total de 360 cm², formam uma planilha que mostra a concentração superficial de ²³⁵U em cada ponto, gerando valores por toda área do núcleo, possibilitando a aprovação ou reprovação da mesma.

Com estes valores obtidos, foram construídos gráficos nos resultados do trabalho, contendo o valor especificado e suas possíveis tolerâncias, para as chamadas zona 1, ou zona central do núcleo, e zona 2, nas extremidades do núcleo, mostrando coluna a coluna na área do núcleo combustível, a distribuição superficial em cada placa.

6 – RESULTADOS E DISCUSSÃO

A metodologia experimental foi aplicada numa placa combustível fabricada segundo os procedimentos adotados no CCN para a produção do combustível para o reator IEA-R1, identificada como Si-448.

A placa foi escolhida aleatoriamente entre lotes fabricados aprovados (conjunto de 8 placas) e armazenados para processo de montagem do elemento combustível. Esta placa foi considerada aprovada segundo o atual método de inspeção visual para verificação da homogeneidade da distribuição de urânio, tendo qualidade superior ao padrão visual estabelecido, apresentado na FIG. 5 da PÁG. 19.

A placa foi posicionada na região escolhida do feixe de raios X e exposta sob as condições definidas anteriormente. Como a placa combustível apresenta um revestimento de alumínio 6061, com sua espessura verificada por análise metalográfica, os padrões foram cobertos com o mesmo alumínio 6061, de mesma espessura, simulando a atenuação sofrida pelo feixe de raios X devido à presença do revestimento.

6.1 – Escolha do filme e definição das condições das radiografias

A TAB. 5 apresenta resultados obtidos da diferença de medidas de densidade óptica no ponto mais claro e mais escuro, caracterizando o “contraste”. Com os dados coletados no primeiro projeto experimental, objetivando a comparação entre os 4 filmes utilizados para o projeto. O filme Kodak AA400, nas condições do experimento **9** apresentou melhor resposta, (em vermelho na tabela).

Tabela 5 - Resultados comparativos dos contrastes entre os filmes utilizados.

				Valores Máximos de Contraste			
Exp.	t (s)	V (kV)	I (mA)	Kodak AA400	Agfa D7	Fuji Lx50	Agfa D4
1	170	115,0	7,0	0,09	0,10	0,68	0,64
2	40	150,0	4,0	0,43	0,52	0,25	0,23
3	170	115,0	4,0	0,46	0,34	0,51	0,51
4	170	80,0	7,0	0,64	0,76	0,15	0,25
5	170	150,0	7,0	0,02	0,02	0,20	0,21
6	170	115,0	7,0	0,14	0,09	0,67	0,63
7	40	115,0	7,0	0,50	0,77	0,25	0,26
8	170	115,0	10,0	0,02	0,05	0,65	0,60
9	300	80,0	10,0	0,87	0,62	0,57	0,49
10	170	115,0	7,0	0,15	0,10	0,72	0,71
11	40	80,0	10,0	0,24	0,46	0,09	0,1
12	170	115,0	7,0	0,13	0,11	0,68	0,67
13	300	150,0	4,0	0	0,02	0,18	0,20
14	300	150,0	10,0	0	0,01	0,01	0,02
15C	40	80,0	4,0	0,10	0,13	0,03	0,05
16C	300	115,0	7,0	0,02	0,02	0,43	0,48
17C	40	150,0	10,0	0,23	0,17	0,49	0,49
18C	300	80,0	4,0	0,65	0,81	0,33	0,32

Na FIG. 25, mostramos as condições de máximo contraste obtido por meio de superfícies de resposta geradas pelo software estatístico. A TAB. 6 apresenta os valores de contraste máximo obtidos experimentalmente por meio do software, com as condições radiográficas que geraram a sua maximização.

Figura 25 – Gráficos de superfície mostrando melhor condição de contraste (esfera preta), relacionando $t \times kV$, $t \times mA$ e $kV \times mA$.

Tabela 6 – Melhor resultado obtido experimentalmente para o filme KODAK AA400.

Kodak AA400	t (s)	DDP (kV)	i (mA)	Contraste
Melhor valor experimental	300	80,0	10,0	0,87

Para o filme Agfa D7, o melhor resultado obtido é apresentado na FIG. 26, nas condições de máximo contraste obtido experimentalmente. O mesmo resultado pode ser visto na TAB. 5 - experimento **18C**. A TAB. 7 a seguir, apresenta os valores de contraste máximo obtidos experimentalmente por meio do software, juntamente com as condições radiográficas que geraram a sua maximização.

Figura 26 – Gráficos de superfície mostrando melhor condição de contraste (esfera preta), relacionando t x kV, t x mA e kV x mA.

Tabela 7 - Melhor resultado obtido experimentalmente para o filme AGFA D7.

Agfa D7	t (s)	DDP (kV)	i (mA)	Contraste
Melhor valor experimental	300	80,0	4,0	0,81

Da mesma forma para o filme Agfa D4, o melhor resultado obtido é apresentado na FIG. 27, nas condições de máximo contraste obtido experimentalmente. O mesmo visto na TAB. 5 - experimento 10. A TAB. 8 a seguir, apresenta os valores de contraste máximo obtidos experimentalmente por meio do software, com as condições radiográficas que geraram a sua maximização.

Figura 27 – Gráficos de superfície mostrando melhor condição de contraste (esfera preta), relacionando $t \times kV$, $t \times mA$ e $kV \times mA$.

Tabela 8 - Melhor resultado obtido experimentalmente para o filme AGFA D4.

Agfa D4	t (s)	DDP (kV)	i (mA)	Contraste
Melhor valor experimental	170	115,0	7,0	0,71

Agora para o filme Fuji Lx50, o melhor resultado obtido é apresentado na FIG. 28, nas condições de máximo contraste obtido experimentalmente. O mesmo visto na TAB. 5 - experimento **10**. A TAB. 9 a seguir, apresenta os valores de contraste máximo obtidos experimentalmente por meio do software, com as condições radiográficas que geraram a sua maximização.

Figura 28 – Gráficos de superfície mostrando melhor condição de contraste (esfera preta), relacionando $t \times kV$, $t \times mA$ e $kV \times mA$.

Tabela 9 - Melhor resultado obtido experimentalmente para o filme FUJI LX 50.

Fuji Lx50	t (s)	DDP (kV)	i (mA)	Contraste
Melhor valor experimental	170	115,0	7,0	0,72

O valor otimizado está na máxima diferença entre o menor e maior valor de densidade óptica encontrado, nas condições determinadas para as 18 radiografias. Este valor obtido determina a diferença entre a região mais clara e mais escura no filme emulsionado que chamamos de contraste. Pelos valores experimentais gerados pelo software, o filme Kodak AA400 (0,87), apresentou melhor resultado de contraste em relação ao Agfa D7 (0,81), Agfa D4 (0,71) e Fuji Lx 50 (0,72).

Coerentemente os resultados obtidos dos filmes Agfa D7 e Kodak AA400, demonstraram que, por serem da mesma classe (II), necessitam maior tempo de exposição para melhor sensibilização (reação à granulometria do filme). Já para os outros dois filmes, Agfa D4 e Fuji Lx50, necessita-se menor tempo de exposição para a sensibilização, por também serem da mesma classe (I).

Sendo a diferença entre os dois melhores resultados de contrastes obtidos não é muito significativa (0,87 para o Kodak AA400 e 0,81 para o Agfa D7), e o filme de trabalho usual no CCN é o Agfa D7 (cuja obtenção é mais fácil, pois é fornecido por representante exclusivo da empresa AGFA), decidiu-se por aprimorar o projeto de experimento com o filme Agfa D7, mudando algumas condições na realização, com o objetivo de encontrar uma condição ideal para a obtenção de melhor contraste final usando este filme.

Com o objetivo de otimizar o contraste do filme Agfa D7, o segundo projeto de experimento consistiu na realização de 23 radiografias, novamente geradas aleatoriamente pelo software Statística [39], “Central Composite Experiment (Response Surface)”, com diferentes condições de kilovoltagem (kV), miliamperagem (mA) e tempo em segundos (s), todas feitas com uma tela intensificadora de chumbo (ecran) e penetrômetro ou IQI (DIN 16).

Todas as radiografias foram feitas separadamente e na mesma posição na superfície de exposição utilizada no experimento anterior. Os valores obtidos são mostrados na TAB. 10, a seguir.

Tabela 10 - Resultados dos valores máximos de contraste com filme Agfa D7.

Exp.	t (s)	V (kV)	I (mA)	AgfaD7 (contraste)
1	200	70,0	10,0	0,91
2	200	70,0	10,0	0,91
3	200	70,0	10,0	0,91
4	100	80,0	12,0	0,93
5	368,179283	70,0	10,0	0,95
6	200	53,1820717	10,0	0,30
7	300	60,0	8,0	0,68
8	200	86,8179283	10,0	0,53
9	200	70,0	10,0	0,85
10	31,8207169	70,0	10,0	0,21
11	100	60,0	12,0	0,36
12	300	60,0	12,0	0,86
13	100	80,0	8,0	0,71
14	300	80,0	8,0	0,73
15C	100	60,0	8,0	0,24
16C	200	70,0	10,0	0,87
17C	200	70,0	6,63641434	0,73
18C	200	70,0	10,0	0,87
19C	200	70,0	10,0	0,84
20C	300	80,0	12,0	0,47
21C	200	70,0	10,0	0,91
22C	200	70,0	10,0	0,92
23C	200	70,0	13,3635857	0,98

Analisando os dados coletados, observamos que o melhor contraste (0,98) foi obtido na condição 23C, com voltagem de 70,0 kilovolts, intensidade de 13,4 miliamperes e tempo de 200 segundos, gerando gráficos de superfície de respostas apresentadas na FIG. 29.

Com ajuda da simulação realizada pelo software Statística, construindo um gráfico com os valores obtidos, foi possível determinar a chamada condição crítica de trabalho para maximização do contraste, conseguindo um valor de 1,00 de contraste, aplicando energia de 70,0 kilovolts, intensidade de 14,0 miliamperes e tempo de exposição de 257 segundos (mostrado na TAB. 11), e definir que essa é a condição adequada para realização da metodologia proposta, com as radiografias evidenciando no máximo possíveis defeitos de fabricação no processo de obtenção das placas combustíveis.

Figura 29 – Superfícies de resposta mostrando melhor condição de contraste (esfera preta), relacionando t x kV, t x mA e kV x mA.

Tabela 11 - Resultado obtido experimentalmente e valores críticos obtidos pelo software.

Agfa D7	t (s)	DDP (kV)	i (mA)	Contraste
Melhor valor experimental	200	70,0	13,4	0,98
Valores Críticos	257	70,0	14,0	1,00

6.2 – Determinação da posição para exposição da radiografia

Uma vez selecionado o filme, foi determinada a área efetivamente útil para realizar a radiografia, com o filme devidamente cortado, envelopado e posicionado. Essa região foi encontrada por meio do teste em branco, realizado para o mapeamento do feixe gerado em toda a superfície de trabalho. Na FIG. 30 temos o gráfico de superfície que mostra o espalhamento do feixe de raios X pela superfície de trabalho, orientando a determinação da melhor posição para realizar as radiografias.

Figura 30 – Curvas de níveis mostrando a distribuição da densidade óptica pela superfície de trabalho radiográfico.

A área da superfície para exposição radiográfica (placa de granito com 1,0 m²), nivelada por suportes reguladores e paralela ao ponto focal da emissão dos raios X, foi coberta com 9 filmes Agfa D7 em chapas retangulares de 43,0 cm de comprimento x 35,0 cm de largura, acondicionados em “chassis” para melhor posicionamento na superfície e a exposição realizada de uma só vez. Após a revelação, as chapas foram traçadas para medição no densitômetro óptico, com divisões de 1,0 cm² por toda sua superfície. Com os valores de densidade óptica coletados foi possível encontrar regiões onde houve menor variação, na área correspondente ao núcleo combustível (60,0 cm de comprimento por 6,0 cm de largura).

Com o mapeamento realizado, observou-se que em posições a menor variação de densidade óptica se repetiu. Isto possibilitou que várias posições pudessem ser usadas no ensaio, por apresentarem variações iguais entre si.

A escolha da posição 3, deveu-se ao menor valor da variação de densidade óptica encontrada e, por ser uma posição acessível e confortável para trabalho na realização das radiografias.

A partir dessa observação, dois pontos importantes podem ser destacados:

O primeiro é o fato de se realizar a radiografia com uma placa combustível desta dimensão de uma só vez, mostrando homogeneidade no feixe de raios X gerado.

O segundo é a possibilidade de se realizar mais de uma radiografia ao mesmo tempo, com outra placa combustível, contanto que não se sobreponham e nem extrapolem a área de trabalho, agilizando o processo. Para esta condição é necessário que cada placa radiografada tenha junto, um conjunto de padrões, para se efetuar a coleta de medidas de densidade óptica e construir a curva de calibração para ajuste e transformar os dados coletados no núcleo da placa em densidade superficial de ²³⁵U.

A posição determinada para a realização das repetições radiográficas foi escolhida entre as possíveis para o ensaio. A FIG. 31 mostra um gráfico de superfície com algumas regiões para exposição e, em destaque, a posição 3, escolhida dentre as que apresentaram menor variação.

Figura 31 – Gráfico de superfície, com 8 possíveis posições, onde foram encontradas variações mínimas, para radiografar a placa combustível,. A posição 3 em destaque foi a escolhida.

Dentro da área de trabalho, de $1,0 \text{ m}^2$, determinou-se a região com menor variação de densidade óptica, onde se deve posicionar o núcleo da placa combustível para a radiografia. Assim, maximizou-se a precisão na coleta de medidas de densidade óptica para a realização de todo o estudo feito a seguir. A TAB. 12 mostra esta variação e destaca a posição escolhida.

Tabela 12 – Variação de densidade óptica por posição encontrada

Posição	1	2	3	4	5	6	7	8
Variação D O	0,10	0,19	0,10	0,19	0,10	0,10	0,19	0,19

6.3 – Aplicação do método

Com a escolha do filme, condições radiográficas mais adequadas e posição para radiografia, pôde-se dar início ao procedimento para aplicação do método, que consiste, basicamente, em radiografar as placas combustíveis juntamente com o conjunto de padrões fabricados a partir da liga U-Al de concentração conhecida, como ilustrado na FIG. 32.

Figura 32 – Região escolhida após mapeamento da superfície de granito, com posicionamento da placa combustível e conjunto de padrões.

Após exposição, a radiografia é revelada por um processo automatizado, gerando a radiografia identificada a seguir, na FIG. 33.

Figura 33 - Imagem da radiografia de uma placa combustível de produção rotineira e conjunto de padrões, traçada para coleta de medidas

Uma importante questão sobre a possível atenuação que o alumínio da composição da liga poderia causar, resultando em alguma interferência na coleta das medidas de densidade óptica lidas na área desejada, foi averiguada, fazendo-se com um teste de exposição de um conjunto de padrões feitos de alumínio 6061, com as mesmas 9 espessuras dos padrões da liga UAl. Este mesmo alumínio é o que “encapsula” o núcleo combustível e foi utilizado para cobrir os padrões de UAl nas radiografias realizadas.

O teste radiográfico foi realizado nas mesmas condições estabelecidas como “críticas”, ou seja, de melhor aproveitamento de contraste de filme AGFA D7, com 70 kV, 14,0 mA e 257 s. Os valores coletados em quinze medidas na área superficial de cada padrão de Al foi o mesmo encontrado para a menor e maior espessura do conjunto, apresentando apenas a variação dentro da precisão do aparelho densitômetro utilizado na coleta de dados. Isso evidenciou que, para estas condições de exposição utilizadas, o alumínio não influencia nos valores de densidades ópticas. Na FIG. 34, vemos o conjunto de 9 padrões de Al 6061 e na TAB. 13, os resultados obtidos.

Figura 34 – Conjunto de “padrões” de Al para exposição.

Tabela 13 – Valores médios obtidos nas leituras de Densidade Óptica nos padrões na exposição radiográfica.

	Padrão 1	Padrão 2	Padrão 3	Padrão 4	Padrão 5	Padrão 6	Padrão 7	Padrão 8	Padrão 9
Esp. (mm)	0,98	1,49	1,68	2,02	2,12	2,39	3,05	3,65	4,19
DO média	2,31	2,31	2,30	2,31	2,31	2,32	2,32	2,32	2,31

Considerando agora a não interferência do alumínio, a região do núcleo na radiografia revelada foi dividida em 360 áreas de $1,0 \text{ cm}^2$ ($1,0 \text{ cm} \times 1,0 \text{ cm}$), como ilustra a FIG. 35 identificando as linhas e colunas medidas, definindo-se 6 linhas do ponto 1 para baixo e 60 colunas do ponto 1 para a direita.

Com a janela de abertura do densitômetro em 3,0 mm, foram realizadas as leituras das densidades ópticas no centro de cada centímetro

quadrado traçado na radiografia. Medindo-se do ponto 1, no canto superior esquerdo da radiografia e seguindo para o ponto 2 e subsequentes, até o sexto ponto na mesma coluna e iniciando-se novamente do ponto 1, agora na coluna 2, e todos os pontos e colunas subsequentes, até a medição das 60 colunas traçadas na radiografia. Quinze valores de densidade óptica em cada um dos padrões foram medidos, em posições ao redor do seu ponto central. No núcleo da placa, 360 leituras são realizadas, considerando-se seu comprimento nominal de 60,0 cm e sua largura de 6,0 cm. Como mostrado na FIG. 35.

Figura 35 – Desenho esquemático representando como a medição de densidade óptica foi feita na radiografia seguindo colunas, linhas e conjunto de padrões.

Uma vez conhecida a concentração de urânio na liga usada na confecção dos padrões, a sua espessura, a massa do padrão, a área superficial do padrão e o grau de enriquecimento, pode-se determinar a densidade superficial de ^{235}U nos padrões, segundo a EQ. 5:

$$D_{SU} = \frac{(m_{pad.} \times C_{U_{Liga}} \times C_{^{235}U})}{A_{pad.}}$$

(5)

Onde: D_{SU} = densidade superficial de ^{235}U ($\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$)

$m_{pad.}$ = massa do padrão (mg),

$C_{U_{Liga}}$ = concentração de U da liga usada para os padrões
(% em massa),

C_{235U} = enriquecimento, ou porcentagem em massa de ^{235}U
(% em massa),

$A_{pad.}$ = área do padrão (cm^2).

A liga UAl, com teor de 30% de urânio utilizada neste trabalho, foi produzida no Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear-CDTN, instituto de pesquisas da CNEN, localizado em Minas Gerais.

Com o envio de amostras desta liga para o Laboratório do Centro de Química e Meio Ambiente (CQMA) do IPEN/CNEN-São Paulo, em diferentes datas por três vezes, com o intuito de verificar o teor de urânio da composição da liga, constatou-se um problema, pois em cada uma das análises o valor determinado apresentou-se diferente, o que implica um impacto negativo, para se determinar os valores de ^{235}U pontual na área da placa.

Na TAB. 14, são mostrados os valores encontrados pelos certificados, evidenciando algum desvio na determinação da composição da liga, quer seja pelo método de fabricação da liga ou pela metodologia empregada na análise, acarretando um problema de exatidão para o restante do experimento.

Tabela 14 – Valores encontrados de teor de U pelas diferentes técnicas de análises.

	Técnica Utilizada	Teor de U encontrado	Data análise
Matriz CDTN	Volumetria	30,18 %	06 / 2000
Repetição 1	Volumetria	27,80 %	11 / 2000
Repetição 2	Volumetria	31,40 ± 0,1 %	11 / 2010
Repetição 3	ICP-OES	30,90 ± 0,01 %	12 / 2010

O valor da análise realizada no laboratório do CDTN-MG, segundo o certificado emitido foi de 30,18% em massa de urânio na liga. A FIG. 36 mostra as curvas obtidas das relações de densidade óptica medidas nos padrões pela densidade superficial de urânio para cada regressão, nos diferentes teores de urânio na liga. Na FIG. 37 mostramos os diferentes resultados das regressões com seus respectivos desvios padrões.

Figura 36 – Curvas obtidas da regressão polinomial de 4º do conjunto com 9 padrões.

Regressão polinomial para Teor Urânio de 27,80% :			
$Y = A + B1 \cdot X + B2 \cdot X^2 + B3 \cdot X^3 + B4 \cdot X^4$			
Parâmetro	Valor	Erro	
A	204,83993	4,76741	
B1	-415,3504	18,74345	
B2	401,71539	25,22135	
B3	-175,65645	14,07083	
B4	27,66749	2,78307	
R-quadrado	SD	N	P
0,99694	1,08793	135	<0.0001

Regressão Polinomial para Teor de Urânio de 30,18% :			
$Y = A + B1 \cdot X + B2 \cdot X^2 + B3 \cdot X^3 + B4 \cdot X^4$			
Parâmetro	Valor	Erro	
A	222,94445	5,19661	
B1	-452,9328	20,43088	
B2	438,60144	27,49197	
B3	-191,97729	15,3376	
B4	30,27137	3,03362	
R-quadrado	SD	N	P
0,99692	1,18588	135	<0.0001

Regressão Polinomial para Teor Urânio de 30,90% :			
$Y = A + B1 \cdot X + B2 \cdot X^2 + B3 \cdot X^3 + B4 \cdot X^4$			
Parâmetro	Valor	Erro	
A	228,24723	5,3331	
B1	-463,66513	20,96752	
B2	448,9456	28,21407	
B3	-196,48012	15,74045	
B4	30,97663	3,11331	
R-quadrado	SD	N	P
0,99691	1,21702	135	<0.0001

Regressão Polinomial para Teor Urânio de 31,40% :			
$Y = A + B1 \cdot X + B2 \cdot X^2 + B3 \cdot X^3 + B4 \cdot X^4$			
Parâmetro	Valor	Erro	
A	231,78709	5,417	
B1	-470,59967	21,29738	
B2	455,50451	28,65794	
B3	-199,30124	15,98808	
B4	31,41409	3,16228	
R-quadrado	SD	N	P
0,99691	1,23617	135	<0.0001

Figura 37 – Teor de U 27,80%, 30,18%, 30,90%, 31,40% e valores do desvio padrão de cada regressão polinomial com 9 padrões.

Para o caso da placa combustível com concentração de $3,0 \text{ gU} \times \text{cm}^{-3}$, produção atual para o reator IEA-R1, a faixa ideal de composição do conjunto de padrões para construção da curva de calibração, em termos de teor de ^{235}U , ficou restrita entre $30,0$ a $60,0 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, e a uma faixa de valores de densidades ópticas medidas entre $1,0$ e $1,5$.

Optou-se por reduzir o conjunto a 4 padrões, para a faixa estabelecida, visando aumentar a precisão do método, com a diminuição do desvio padrão nos dados coletados. Os padrões agora específicos para o ensaio são os de números 3,4,5 e 6, observados na FIG. 38, originando o gráfico da FIG. 39 e resultados dos respectivos desvios padrões na FIG. 40.

Figura 38 – Conjunto de padrões de UAI utilizados na coleta de dados e obtenção de resultados.

Figura 39 – Curvas de regressão polinomial do conjunto com 4 padrões.

Regressão polinomial com Teor de U de 27,80% :			
$Y = A + B1*X + B2*X^2 + B3*X^3 + B4*X^4$			
Parâmetro	Valor	Erro	
A	708,69611	338,38031	
B1	-2174,63684	1154,55963	
B2	2711,98773	1469,54637	
B3	-1522,6925	826,87814	
B4	320,78535	173,50706	
R-quadrado	SD	N	P
0,99751	0,20859	60	<0.0001

Regressão polinomial com Teor de U de 30,18% :			
$Y = A + B1*X + B2*X^2 + B3*X^3 + B4*X^4$			
Parâmetro	Valor	Erro	
A	770,19569	366,95944	
B1	-2363,55334	1252,07213	
B2	2947,41549	1593,66221	
B3	-1654,69895	896,71511	
B4	348,55212	188,16123	
R-quadrado	SD	N	P
0,9975	0,22621	60	<0.0001

Regressão polinomial com Teor de U de 30,90% :			
$Y = A + B1*X + B2*X^2 + B3*X^3 + B4*X^4$			
Parâmetro	Valor	Erro	
A	803,43819	377,60571	
B1	-2467,32507	1288,3974	
B2	3073,91517	1639,89774	
B3	-1723,55327	922,73072	
B4	362,58417	193,62018	
R-quadrado	SD	N	P
0,99748	0,23277	60	<0.0001

Regressão polinomial com Teor de U de 31,40% :			
$Y = A + B1*X + B2*X^2 + B3*X^3 + B4*X^4$			
Parâmetro	Valor	Erro	
A	796,07269	382,30772	
B1	-2441,07767	1304,44075	
B2	3043,78374	1660,31804	
B3	-1708,98023	934,22073	
B4	360,05716	196,03118	
R-quadrado	SD	N	P
0,9975	0,23567	60	<0.0001

Figura 40 – Teor de U 27,80%, 30,18%, 30,90%, 31,40% e valores do desvio padrão de cada regressão polinomial com 4 padrões.

Por se tratar da exatidão do método, estes valores deixam margem de dúvida para aplicação. Com os resultados agora encontrados nas regressões, com valores do desvio padrão reduzidos em até 5 vezes, comparando com os encontrados anteriormente, e aplicando isoladamente cada um, observamos que o valor de teor de urânio de 30,18%, destacado na FIG. 40, pelo contorno vermelho, é o que mais se aproxima do real da placa, quando transformamos os valores de densidade óptica em mg de ^{235}U por cm^2 .

Por essa razão, adotou-se o valor de 30,18% para a obtenção dos resultados apresentados na TAB. 15 e nos demais gráficos feitos a partir da parte experimental de coleta de medidas.

Outro fator que devemos levar em consideração é a faixa de valores para a densidade superficial de U^{235} , que podem ser encontrados no núcleo de uma placa combustível, considerando-se as especificações de comprimento e largura do núcleo. Isso é uma indicação de que o valor da concentração de urânio da liga utilizada na confecção dos padrões obtido pela análise de urânio total (30,18%) apresenta valor bem próximo da real concentração, já que o valor calculado nominal da placa combustível é exato e preciso obtido, por meio da pesagem rigorosamente controlada e de equipamento que apresenta variação de

$\pm 0,01$ g da massa de urânio no núcleo da placa, garantindo-se a incorporação de $84,37 \pm 0,3$ g de U_3Si_2 na mistura do núcleo da placa combustível.

Foi calculada a densidade de urânio superficial em cada um dos padrões, segundo a EQ. 5 da PÁG. 70, conhecendo-se a massa de urânio, calculada a partir da determinação da concentração de urânio na liga UAI, por volumetria na análise química. A área dos padrões é constante ($0,79 \text{ cm}^2$), uma vez que o valor de seu diâmetro também é constante ($1,51 \text{ cm}$). O enriquecimento, ou teor de ^{235}U do siliceto, encontrado por análise, foi 19,75 % em massa.

A TAB. 15 apresenta os valores calculados para o valor da densidade superficial de ^{235}U para cada um dos padrões utilizados e, no quadro preto, os valores dos padrões considerados.

Tabela 15 – Caracterização dos padrões de UAI.

Padrões de UAI com Concentração da liga de 30,18% de Urânio e 19,75% de ^{235}U					
Identificação Padrão	Diâmetro cm	Espessura cm	$A_{\text{pad.}} \text{ cm}^2$	$m_{\text{pad.}} \text{ g}$	$DS_U (m^{235}\text{U}_{\text{pad.}}) \text{ mg x cm}^{-2}$
UAI 01	1,51	0,09	1,79	0,57	18,98
UAI 02	1,51	0,14	1,79	0,85	28,30
UAI 03	1,51	0,17	1,79	1,09	36,30
UAI 04	1,51	0,20	1,79	1,26	41,96
UAI 05	1,51	0,21	1,79	1,33	44,29
UAI 06	1,51	0,23	1,79	1,45	48,28
UAI 07	1,51	0,30	1,79	1,87	62,27
UAI 08	1,51	0,36	1,79	2,27	75,59
UAI 09	1,51	0,42	1,79	2,64	87,91

Com estes valores determinados, o passo seguinte é transformar os valores medidos de densidade óptica, nos seus 360 pontos por placa combustível, em teor de ^{235}U na área do núcleo.

Existe um sistema de comunicação entre o densitômetro óptico e um computador para coleta, tratamento e armazenamento de dados, como ilustra a FIG. 41. Assim, foi possível a elaboração e construção dos gráficos de calibração e cálculos automaticamente, a partir dos valores de densidade óptica medidos no densitômetro.

Figura 41 – Sistema para coleta e processamento de dados.

Conhecendo-se agora as densidades ópticas de cada padrão e a sua concentração superficial de ^{235}U pontual na radiografia do núcleo, é possível traçar curvas de calibração correlacionando-as.

As condições radiográficas utilizadas para realização das determinações foram 70,0 kilovolts para a energia do feixe de raios X, 14,0 miliampères para a corrente do feixe e 257 segundos (4'17" minutos) para o tempo de exposição, condições obtidas dos testes realizados anteriormente.

As densidades ópticas obtidas de cada um dos padrões (quinze medidas) foram plotadas contra as respectivas densidades superficiais de ^{235}U presentes em cada padrão, obtendo-se uma curva de calibração construída por meio do ajuste de uma curva aos dados experimentais.

Foi utilizada regressão polinomial de grau quatro. A FIG. 42 mostra a curva obtida para a análise da placa combustível Si-448.

Figura 42 – Curva de calibração experimental com equação, para obtenção de valores de densidades superficiais de ^{235}U a partir das densidades ópticas medidas em radiografias dos padrões.

A regressão polinomial de grau quatro gerou uma curva de calibração, expressa pela EQ. 6:

$$D_{SU} = 770,2 - 2363,6 \times DO + 2947,4 \times DO^2 - 1654,7 \times DO^3 + 348,6 \times DO^4 \quad (6)$$

Onde: D_{SU} = densidade superficial de ^{235}U ,
 DO = densidade óptica.

O valor obtido para o $r^2 = 0,99$ (coeficiente de determinação), que mede a parcela de y , que é explicada por x (e vice e versa), demonstra que 99% dos valores de DO medidos são “explicados” pela massa em $\text{mg } ^{235}\text{U}$ existente nos padrões, ficando 1% sem explicação, o que indica uma boa qualidade do ajuste da curva de calibração.

O desvio padrão de 0,23 (anteriormente era de 1,19) encontrado na regressão, agora com o conjunto de 4 peças, mesmo diminuído aumenta o erro

global da metodologia. Com essa diminuição no valor encontrado, o aumento de peças que formam o conjunto de padrões, variando a espessura entre 1,7 e 2,3 mm, para essa faixa de trabalho com concentração de $3,0 \text{ gU} \times \text{cm}^{-3}$, deve diminuir ainda mais este desvio, conferindo mais precisão ao método.

A FIG. 43 mostra a distribuição das densidades ópticas medidas na região do núcleo. Estão apresentados os valores médio, mínimo e máximo de seis medidas obtidas em cada coluna da radiografia (60 colunas).

Figura 43 – Valores de densidade óptica medidas ao longo do núcleo da placa combustível Si-448.

As densidades ópticas obtidas na leitura do núcleo combustível, devidamente localizadas em sua superfície, foram convertidas em massa de ^{235}U , com o auxílio da curva de calibração apresentada na FIG. 42 da PÁG. 78. Os resultados obtidos estão apresentados na FIG. 44.

Figura 44 – Distribuição da massa de ^{235}U ao longo do núcleo da placa combustível Si-448.

Outra maneira de visualização desta distribuição de ^{235}U é o gráfico de superfície apresentado na FIG. 45.

Figura 45 – Gráfico de superfície mostrando a distribuição de ^{235}U na região do núcleo da placa combustível Si-448.

Os valores especificados apresentados na TAB. 16, mostram que o valor da densidade superficial de ^{235}U no núcleo pode, segundo a especificação, variar de $\pm 12\%$ para zona 1 e $\pm 25\%$ para zona 2, sobre o valor de $41,93 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, valor encontrado pela especificação, considerando medidas exatas da geometria do núcleo, ou seja, comprimento de 60,0 cm e largura de 6,26 cm.

Como esses valores nominais apresentam tolerâncias para menos e para mais, no comprimento de $\pm 10,0 \text{ cm}$, na largura de $\pm 0,22 \text{ cm}$, na massa de U_3Si_2 da mistura de $\pm 0,3 \text{ g}$ e no teor de ^{235}U no siliceto de $\pm 0,2 \%$, temos uma faixa de valores de densidade superficial de ^{235}U ao redor do valor nominal, que atende à especificação vigente, cujo mínimo está relacionado à máxima área do núcleo permitida, e cujo máximo está relacionado à área mínima permitida. Esses são também apresentados na TAB. 16.

Nesta tabela foi subtraído o valor da área dos quatro cantos arredondados do núcleo, mostrado na FIG. 46, a seguir (ver também radiografias das figuras 6A e 6B).

Os valores dos cantos na FIG. 46 detalhe (1), foram calculados a partir da média das medidas obtidas de 20 placas combustíveis fabricadas pelo CCN. Esses cantos arredondados são oriundos do formato do conjunto matriz – punção para compactação do briquete. Analisados por radiografias foram medidos, calculados e suas médias descontadas no cálculo da área final do núcleo. Esse desconto dos 4 cantos é obrigatório para qualquer placa de produção, para o cálculo real de sua área na região do núcleo combustível.

Figura 46 – Cantos arredondados (1) considerados para desconto.

Nota-se que o valor de $41,93 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, encontrado e utilizado nos cálculos, difere do valor $41,2 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$ especificado, como referido na TAB. 1 da PÁG. 21. Esta diferença, certamente ocorre devido aos valores aplicados nos cálculos da especificação, em que não foram consideradas as possíveis variações dimensionais, as de enriquecimento e os descontos dos 4 cantos na região do núcleo. Sendo assim, para efeito de aproximar os valores obtidos do mais real possível de fabricação, todos eles foram aplicados para a metodologia.

Tabela 16 – Densidades superficiais de ^{235}U obtidas assumindo a faixa de variação especificada para as Zonas 1 (homogênea) $\pm 12\%$ e 2 (heterogênea) $\pm 25\%$ na área do núcleo da placa.

	Compr. (cm)	Larg. (cm)	Área (cm ²)	Área cantos (cm ²)	Área corrigida (cm ²)	Massa de U (g)	Teor ^{235}U (g)	DS _U (mg x cm ⁻²)	Zona 1 $\pm 12\%$	Zona 2 $\pm 25\%$
Área Núcleo Mínima	59,000	6,035	356,065	8,796	347,269	78,150	15,591	44,90	50,28	56,12
									39,51	33,67
Área Núcleo Nominal	60,000	6,260	375,600	8,796	366,804	77,873	15,380	41,93	46,96	52,41
									36,90	31,45
Área Núcleo Máxima	61,000	6,485	395,585	8,796	386,789	77,597	15,170	39,22	43,93	49,03
									34,51	29,42
Área Núcleo Produção (Si-448)	60,000	6,112	366,720	8,796	357,924	76,528	15,206	42,48	47,58	53,11
									37,39	31,86

Considerando estas possíveis variações na área do núcleo da placa combustível e aplicando a especificação para aceitação do desvio do valor de densidade superficial de ^{235}U , de $\pm 12\%$ para a Zona 1 e de $\pm 25\%$ para a Zona 2, conclui-se que a faixa de variação aceita pela especificação é de 34,51 a 50,28 mg ^{235}U x cm⁻² para a Zona 1, e de 29,42 a 56,12 mg ^{235}U x cm⁻² para a Zona 2 (em vermelho na TAB. 16).

O valor nominal considerado é de 41,93 mg ^{235}U x cm⁻² (valor na TAB. 16 e linha preta da FIG. 47). Utilizando a faixa de especificação discutida acima, para os valores máximos e mínimos, tanto para a Zona 1 (zona homogênea) como para a Zona 2 (zona difusa, ou de defeitos) representados pelas linhas pretas na FIG. 47, e após aplicarmos as medidas reais dimensionais deste núcleo encontramos o valor nominal para essa placa, de 42,48mg ^{235}U x cm⁻², valor obtido utilizando-se o teor de 30,18% de urânio no padrão e indicado na FIG. 47 pela linha magenta. Podemos construir o gráfico mostrando a tendência da distribuição destes pontos de ^{235}U superficialmente por todo o núcleo da placa.

Figura 47 – Resultado da aplicação do método proposto, com valores da especificação (em preto) da placa combustível fabricada no CCN, Si-448.

Observando-se o resultado apresentado na FIG. 47, pode-se notar que o valor nominal da densidade superficial de ^{235}U para a placa Si-448, de $42,48 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$ (linha magenta da FIG. 47) é próximo ao valor da média geral de todos os pontos medidos, segundo a metodologia proposta, de $43,03 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$ (linha verde da FIG. 47).

A especificação diz que a variação permitida para o valor nominal de $41,93 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, está fechada para os dimensionais especificados da placa combustível. Neste caso o valor nominal acima citado foi o considerado para aplicar as porcentagens permitidas nas duas zonas de interesse das placas combustíveis fabricadas e na FIG. 47, estas faixas estão traçadas pelas linhas pretas, em relação aos valores de densidades ópticas obtidos convertidos em $\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$.

6.4 – Avaliação da exatidão e precisão do método

A avaliação da exatidão do método torna-se muito dependente do valor do teor de urânio encontrado na composição da liga usada para confecção dos padrões, o que se verificou pelos diferentes resultados das análises químicas. A variação encontrada sugere a necessidade da confecção do conjunto de padrões por um meio mais exato. Também determina que deva ser considerada apenas a faixa de valores encontrada em torno do valor médio das 10 repetições.

A precisão do método foi aumentada com a restrição do número de peças do conjunto de padrões, pois com isso, diminuiu-se o desvio padrão da regressão na área usual para cada concentração e, assim, deu-se mais significância ao método na determinação dos valores de ^{235}U por ponto medido na área do núcleo da placa.

Como outra fonte de erro, que aumenta a imprecisão, está o densitômetro, aparelho eletrônico, sujeito a variações da rede elétrica. Pela prática, foi observada sua sensibilidade durante o processo de coleta de dados, embora no procedimento tenha sido adotada a zeragem do aparelho a cada seis medidas. Muitas vezes o aparelho apresentou variação ou desvios perceptíveis acima do normal na operação, acarretando a necessidade de nova zeragem antes da medição do ponto seguinte.

Para quantificar esse erro, foi feito o seguinte teste: foram coletadas, durante 3 dias de operação normal, por oito horas, de 10 em 10 minutos em trabalho ininterrupto, um total de 144 medidas de densidade óptica, observando a necessidade de zerar o aparelho caso necessário. A variação encontrada, agora convertida em $\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, é apresentada na TAB. 17, a seguir.

Tabela 17 – Variação das leituras de densidade óptica encontradas no densitômetro no teste de repetibilidade transformadas em Densidade superficial de ^{235}U .

Máximo valor encontrado	44,36 $\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$
Mínimo valor encontrado	40,96 $\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$
Média	43,36 $\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$
Desvio padrão	0,59 $\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$

Podemos, assim, concluir que o densitômetro é uma fonte considerável de erro, pois o desvio de $\approx 0,6 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, tem alta significância no desvio encontrado na metodologia e deve ser levado em conta como ponto a ser trabalhado para obter sua diminuição.

A precisão do método foi analisada repetindo-se a aplicação da metodologia por 10 vezes na placa combustível Si-448, exatamente nas mesmas condições de posição, exposição, revelação, manuseio e coleta de medidas pelo densitômetro. Em todas as radiografias foram coletados 360 pontos em densidade óptica, totalizando 3600 pontos.

Com as repetições, foi possível verificar se houve mudança nos valores obtidos e, conseqüentemente, a reprodutibilidade nas condições de geração e aplicação do feixe de raios X pelo equipamento, na operação sobre o objeto e o filme radiográfico. Verificaram-se, também, as condições de processamento dos filmes, visto que eles são feitos por modo automático, mantendo seus ciclos idênticos e, neste caso, se existe variação da ação dos produtos químicos da processadora durante diferentes ciclos de revelação. Observou-se, além disso, se o densitômetro apresenta leitura de densidade óptica confiável nos diferentes tempos de medição, já que apenas uma radiografia pode ser inspecionada por vez.

Nos resultados encontrados, houve variação dos valores médios obtidos em cada coleta dos 360 pontos de densidade óptica de cada placa radiografada, e nos 60 pontos de densidade óptica medidos, que se referem aos 4 padrões da faixa de interesse da concentração de placa, que é de $3,0 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-3}$.

As medidas nas radiografias apresentaram variações inerentes aos desvios encontrados, referentes à precisão do método com valores diferentes para cada média de cada repetição, observadas na TAB. 18, a seguir.

TAB. 18 – Valores das médias obtidas de DS_U por repetição.

Repetições Placa Si-448	Valor médio de $DS^{235}U$ ($mg^{235}U \times cm^{-2}$)	Desvio Padrão da Análise	Aplicação no valor nominal da especificação ($41,93 mg^{235}U \times cm^{-2}$)
Análise 01	45,96	1,60	Aprovada
Análise 02	43,16	1,28	Aprovada
Análise 03	43,21	1,70	Aprovada
Análise 04	42,82	1,39	Aprovada
Análise 05	43,03	1,44	Aprovada
Análise 06	43,05	1,36	Aprovada
Análise 07	43,86	1,80	Aprovada
Análise 08	45,27	1,61	Aprovada
Análise 09	43,63	2,04	Aprovada
Análise 10	43,69	2,04	Aprovada

Quando consideramos a aplicação da metodologia para o valor nominal da especificação de densidade superficial de urânio de $41,93 mg^{235}U \times cm^{-2}$, em relação aos valores médios encontrados pelas medições das dez repetições, encontramos variações, mostrando grande imprecisão do método, porém todas as placas apresentaram valores dentro dos limites de variação permitidos pela especificação interna.

Os dados coletados foram trabalhados da seguinte forma:

- todos os pontos medidos em cada radiografia foram considerados;
- foi calculada a média e o desvio padrão global dos 3600 pontos medidos;
- como em cada radiografia o ponto medido é localizado, pois são 6 linhas e 60 colunas, todos os pontos puderam ser agrupados por posição. Assim, o ponto um da coluna um e linha um foi o mesmo em cada radiografia, e esses dez valores convertidos em DS_U , geraram um valor médio para estudo;
- a partir dos valores médios obtidos nos pontos das dez repetições, foi construída uma nova tabela e, com a ajuda de cálculo computacional, novos gráficos de análise foram construídos, apresentados nas figuras a seguir [39].

Todos os gráficos se referem aos 3600 pontos medidos, já convertidos em mg de $^{235}U \times cm^{-2}$ e sempre em relação ao comprimento do núcleo.

1 – Distribuição Normal

Figura 48 – Gráfico da distribuição normal dos pontos analisados.

O gráfico 1 da FIG. 48, sugere que os dados experimentais coletados, considerando a variação de ± 3 sigma (6 sigma), mostra uma aleatoriedade aceitável para os resultados alcançados em relação a reta normal, com um leve desvio nos valores coletados, convertidos em densidade superficial de urânio nas extremidades do núcleo combustível.

2 – Gráfico das Médias - $\bar{X} = 43,77$: Dpadrão = 1,52 : n = 10

Figura 49 – Gráfico das Médias.

No gráfico 2 da FIG. 49, temos o histograma da frequência de distribuição dos valores médios de DS_U encontrados e os valores das médias das 10 repetições por posição. Ele mostra uma linha sinusoidal, indicando repetibilidade na distribuição dos pontos por radiografia, fato que determina alguma ação influente ao método e também uma nova fonte de erro, que deve ser considerada, visto que esta variação aumenta o desvio dos dados computados.

O formato da linha sugere alguma ação externa ao processo. Como a placa combustível sofre conformação por cilindros, no processo de revelação a radiografia passa por roletes dos banhos químicos e o próprio filme se apresenta no formato de rolo, deixando-o com pequenas ondulações, isso poderia indicar o comportamento observado. Nos pontos mostrados na distribuição está considerada a variação de seis sigma (± 3 vezes o desvio padrão de 1,52), em relação ao valor da média das médias ($43,77 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$) das 10 repetições, com valor mínimo (- 3 sigma) de $39,21 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$ e máximo (+ 3 sigma) de $48,33 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, posicionando todos os valores convertidos encontrados dentro dos valores permitidos de fabricação.

No gráfico, os limites mostrados relacionam-se à variação permitida pela especificação do CEN para o valor nominal encontrado na placa combustível de $43,91 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$ de - 12% ($34,51 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$) e de + 12% ($50,28 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$) para a zona 1, considerada homogênea.

3 – Gráfico das Amplitudes - $\bar{A} = 4,69$: $D_{\text{padrão}} = 1,21$: $n = 10$

Figura 50 - Gráficos das Amplitudes dos dados coletados em $\text{mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$.

O gráfico **3** da FIG. 50, mostra no histograma das amplitudes a faixa de variação e a frequência de distribuição em DS_U na coleta de medidas e como as amplitudes alcançadas distribuem-se ponto a ponto nas médias das repetições, com o valor de amplitude média de $4,67 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, aplicando limites de ± 2 e ± 3 sigma para o desvio padrão de 1,21.

A distribuição dessas amplitudes médias se apresenta, em grande quantidade, dentro do limite de ± 2 sigma (linha verde), o que já determinaria boa capacidade de produção, industrialmente falando. Já para o limite de ± 3 sigma (linha vermelha) no universo de pontos obtidos, mostra 5 pontos externos a essa tolerância de 99,7% de aceitação. Esses pontos devem ser investigados para que se descubra sua origem. Do ponto de vista do controle estatístico, quando falamos que 97,9% dos pontos estudados se apresentam dentro destes ± 3 sigma, pode-se considerar que um ótimo valor significativo.

Em termos de probabilidade, a chance dos pontos ocorrerem no processo são de 0,001, ou seja, 1 chance em cada 1000 pontos coletados, o que por si só dá a dimensão da aceitabilidade do método.

O modelo estatístico adotado, para o manuseio dos dados coletados foi o da distribuição normal, que busca resultados da variação em torno da média.

Aplicando-se as tolerâncias da especificação das placas combustíveis pelo Centro de Engenharia Nuclear, esses 5 pontos externos “reprovariam” a placa combustível, pois considera 100% de aproveitamento dos pontos medidos para sua aprovação. Essa avaliação permite o seguinte questionamento:

- ou a especificação das placas combustíveis para tolerância deve ser revista, pois mesmo que estes pontos externos não acontecessem, deixariam os limites encontrados pelos desvios da metodologia muito próximo dos máximos e mínimos valores permitidos;

- ou deve-se diminuir satisfatoriamente as fontes de erro do processo, de modo a conferir melhor exatidão e precisão ao método.

Figura 51 - Gráfico da Distribuição dos pontos medidos em DS_U .

No gráfico 4 da FIG. 51, observamos novamente o comportamento sinusoidal pelo comprimento do núcleo e os pontos externos detectados pela medição, agora sobre os limites de densidade superficial de urânio em $\text{mg } ^{235}\text{U x cm}^{-2}$ permitidos pela especificação vigente, que reprovariam a placa combustível.

Mostra-se como os 3600 pontos medidos encontram-se distribuídos dentro dos limites permitidos, visualizando-se que, com o acréscimo do desvio padrão global de 1,92, para os 6 sigma, é determinada uma faixa de variação em relação ao valor médio encontrado não permitindo folga, para os possíveis valores de densidade superficial, aplicando-se a metodologia proposta em outras placas combustíveis fabricadas.

5 – Gráfico da Capacidade

Figura 52 - Gráficos da capacidade de trabalho dos dados coletados em mg ²³⁵U x cm⁻².

No gráfico 5 da FIG. 52, é apresentada a distribuição pelo histograma, ferramenta de análise e representação de dados quantitativos agrupados em classes de frequência, que permite distinguir a forma, o ponto central e sua variação, além de outros dados como amplitude e simetria. O histograma simétrico ou de distribuição normal apresenta uma frequência mais alta no centro, que vai diminuindo conforme se aproxima das bordas. Ele representa processos estáveis e padronizados.

Neste histograma, alguns índices importantes da capacidade produtiva do método são demonstrados. Com o valor da média das médias (43,77 mg ²³⁵U x cm⁻²) e com o desvio padrão das médias (1,52), temos o Cp de valor 1,72, que é a capacidade potencial do processo, obtida pela diferença entre o limite superior e o limite inferior da especificação dividida por 6 sigma. E o Cpk de valor 1,42, significando a capacidade de desempenho do processo, quando da subtração do limite superior ou inferior da especificação pelo valor da média das médias, separa-se o menor valor dos dois resultados e dividimos por 3 sigma. Como regra, o Cpk sempre será menor ou igual ao Cp e, para o caso do processo estar bem distribuído e centralizado, o valor do Cp será igual ao Cpk [42].

Para situações onde somente é possível quantificar, além de causas comuns, as causas especiais de variação, usaremos os índices conhecidos como

de desempenho do processo, que informam como o processo agiu no passado ou está agindo no momento. Se o processo está estável, os índices de capacidade (C_p e C_{pk}) estarão muito próximos dos índices de desempenho (P_p e P_{pk}). Porém, uma diferença grande entre capacidade e desempenho indica a existência de instabilidade no processo. O cálculo dos índices P_p e P_{pk} são iguais aos índices C_p e C_{pk} , porém aplicando o desvio padrão global encontrado no processo de 1,92. Para o P_p o valor encontrado foi de 1,37 e para o P_{pk} , de 1,13.

Se os valores desses índices forem maiores do que 1,0 indicam ótima capacidade produtiva e de desempenho pelo processo, conferindo robustez ao método do ponto de vista estatístico [39].

7 – CONCLUSÕES

Os resultados demonstraram que é possível obter uma imagem radiográfica de qualidade confiável com a utilização do filme AGFA D7, garantindo a aplicabilidade do método estudado. Com a aplicação da equação de regressão usada como calibração para transformar os valores de densidade óptica em massa de ^{235}U superficial, observou-se que a variação de uma unidade centesimal do valor lido no densitômetro determina uma diferença de densidade superficial de aproximadamente $0,36 \text{ mg } ^{235}\text{U} \times \text{cm}^{-2}$, para mais ou para menos. Esse valor demonstra alta sensibilidade na aplicação do método proposto.

O método demonstrou ser aplicável, considerando a interpretação da especificação permitindo +12% acima da máxima densidade superficial de ^{235}U , e -12% abaixo da mínima densidade superficial de ^{235}U , assumindo-se as tolerâncias dimensionais do núcleo.

Os pontos observados acima da faixa de tolerância aplicando-se os desvios padrões ocorrem devido à inexatidão do método, que deslocou o valor médio encontrado para fora da região central onde o valor médio da faixa especificada deve se encontrar.

A variação da amplitude total dos valores observados em torno da média de 10 repetições foi de 5,76 para 99,7% dos valores (3 sigma). Isso corresponde a $\pm 13,2\%$ em torno da média. Essa dispersão é considerada demasiadamente grande, pois é maior do que a faixa especificada, de $\pm 12\%$, não deixando margem para a variabilidade inerente ao processo de fabricação de placas combustíveis. Um estudo adicional visando à redução do erro do método se faz necessário.

O método mostrou-se muito sensível à concentração de urânio nos padrões utilizados, ou seja, dependente de resultados de análise química para determinação do urânio total dos padrões resultado da baixa exatidão. Sendo assim, utilizando-se este tipo de padrões, o método não permite a determinação de um valor quantitativo de densidade superficial de ^{235}U , mas sim apenas uma medida da variação desta densidade em torno de um valor médio.

Uma análise preliminar de erros demonstrou que o densitômetro óptico disponível no CCN é uma importante fonte de erro, responsável por cerca de 30% do erro total do método (0,60 de 1,92). A aplicação da curva de calibração contribui com cerca de 12% do erro total do método (0,23 de 1,92).

Observou-se a possibilidade de modificações na especificação técnica da placa combustível, em relação ao real valor de densidade superficial de ^{235}U que se encontra no núcleo da placa, considerando os descontos da área dos cantos, a variação dimensional do núcleo, de massa do composto e do enriquecimento permitida.

Estudos adicionais são necessários para que esta metodologia tenha sua aplicabilidade comprovada num processo de produção, na direção de minimização de erros e interpretação da especificação técnica.

8 – SUGESTÃO PARA TRABALHOS FUTUROS

Os estudos efetuados neste trabalho e as observações experimentais permitem a proposição de trabalhos adicionais que refinariam o método desenvolvido neste trabalho, viabilizando a sua aplicabilidade.

- 1) Utilizar padrões com uma faixa estreita de concentração ao redor do valor de concentração do combustível a ser analisado, buscando a diminuição da componente de erro resultante da regressão.
- 2) Utilizar padrões fabricados por metalurgia do pó, onde a massa exata de urânio incorporada seja conhecida. A utilização de pós finos de alumínio e U_3O_8 , que têm estequiometria estável, é indicada. A utilização de pós finos possivelmente resultará numa boa homogeneidade na distribuição de urânio destes padrões. Isso resolveria o problema de exatidão do método.
- 3) Utilizar análise de imagens na avaliação das radiografias e padrões, buscando a eliminação do uso do densitômetro óptico, que mostrou ser uma importante fonte de erro.
- 4) Aprofundar o estudo dos erros envolvidos no método, assim como a discussão sobre a especificação e suas possíveis interpretações, estabelecendo critérios claros e objetivos para aceitação e rejeição de placas combustíveis analisadas pelo método.

9 – REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] ALKAN Z.; BARRÉ B.; BOCK R.; CAMPBELL D.; GRÄTZ W.; HAMACHER T.; HEINLOTH K.; HOFFMANN D. H. H.; HOFMANN I.; HOGAN W. J.; KRÖGER W.; KUGELER E.; KUGELER K.; LOGAN G. B.; NAGAMINE K. **Energy technologies**: sub volume B nuclear energy. Berlin: Springer, 2004. (Landolt-Börnstein: numerical data and functional relationships in science and technology - new series, advanced materials and technologies, 3)
- [2] WILKINSON, W. D. **Uranium metallurgy**; uranium process metallurgy. International Institute of Nuclear Science and Engineering / Argonne National Laboratory. New York:, NY: Interscience, 1962. Vol.1
- [3] **Sobre a urgência da construção do reator multipropósito brasileiro**, fevereiro de 2010. Acesso em novembro de 2010. Disponível em:<<http://www.alerta.inf.br/ct/nuclear/1612.html>>.
- [4] MITIKO, S. ; SAXENA, R. N. **The IEA-R1 nuclear reactor as a source of neutrons and its use in research**; development and training of human resources. (Projeto de Pesquisa nº 03/10156-6) São Paulo: FAPESP / IPEN- CNEN-SP, 2008.
- [5] TRAVELLI, A. Current status of the RERTR program. In: DEVELOPMENT FABRICATION AND APPLICATION OF REDUCED-ENRICHED FUELS FOR RESEARCH AND TEST REACTOR, Oak Ridge; Tn, 12-14 November 1980. **Proceedings** (CONF – 801144).
- [6] BINFORD, F.T.; W.KNIGHT, R. The use of U₃O₈-Al cermet fuel in research reactors. **Trans.Amer.Nucl.Soc.**, v 27, p. 834, 1977.
- [7] TRAVELLI, A.; LEWIS, R.A.; MATOS, J.E.; DELANEY, E.; BALLARD, W.; AKERS, L.U.S. Reduced-enrichment research and test reactors program. **Trans.Amer.Nucl.Soc.**, v 30, p. 725, 1978.
- [8] SCHWARTZ, J.P. Enrichment reduction in research and test reactors. **Trans.Amer.Nucl.Soc.**, v 30. p. 729, 1978.
- [9] SNELGROVE, J.L.; BURN, R.R.; KOMORIYA, H.; MOSS, T.A. Near-term reduced enrichment conversions of plate-type research and test reactors **Trans.Amer.Nucl.Soc.**, v 30, p. 72,1978.
- [10] STAHL, D.; CUNNINGHAM, J.E.; FRANCIS, W.C. Development of advanced high-uranium-density reduced-enrichment plate-type fuels. **Trans.Amer.Nucl.Soc.**, v 30, p. 726, 1978.

- [11] DURAZZO, M.; PERROTTA, J. A. Fuel improvement for the IPEN research reactor. São Paulo: IPEN / IAEA, January-June; 2000. (Technical Project BRA/4/047. Semiannual Progress Report).
- [12] CAPOCHI, J.D.T.; CINTRA, S.H.L.; GENTILE, E.F. Estudo experimental de fabricação de elementos combustíveis planos contendo núcleos de cermts. ***Metalurgia***, v. 24, p. 207, 1968.
- [13] CAPOCHI, J.D.T.; CINTRA, S.H.L.; GENTILE, E.F. Estudo de fabricação de elementos combustíveis planos com núcleos de cermts de 65% U_3O_8 -35% Al; revestidos com liga de alumínio. ***Metalurgia***, v 24, p. 913, 1968.
- [14] CINTRA, S.H.L.; GENTILE, E.F.; NISHIOKA, I.; ABRÃO, M.A.S.; AMBROZIO, F.F. Análise de variáveis do processo de fabricação de placas combustíveis com núcleos de dispersões Al- U_3O_8 . ***Metalurgia***, v 26, p. 31, 1970.
- [15] CUNNINGHAM, J.E.; BOYLE, E.J. MTR-type fuel elements. In: UNITED NATIONS. PEACEFUL USES ATOMIC ENERGY: THE INTERNATIONAL CONFERENCE - REACTOR TECHNOLOGY AND CHEMICAL PROCESSING, 9, Geneva, 8-20 Aug. 1955. ***Proceedings*** ...New York, N.Y: 1956. p. 203-7.
- [16] MAN; A.R. ***Nuclear reactor fuel elements***; metalurgy and fabrication. New York; N.Y: Interscience, 1962.
- [17] KUCERA, W. J.; LEITTEN, C. F.; BEAVER, R. J. ***Specifications and procedures used in manufacturing U_3O_8 -aluminum dispersion fuel elements for core I of the Puerto Rico research reactor***. Oak Ridge,Tn.: Oak Ridge National Lab, 1963. (ORNL-3458).
- [18] NIGHT,R. W.; BINNS,J.; ADAMSON Jr, G. M. ***Fabrication procedures for manufacturing high flux isotope reactor fuel elements***. Oak Ridge, Tn.: Oak Ridge National Lab, 1968. (ORNL-4242).
- [19] BEAVER, R. J.; ADAMSON Jr, G. M.; PATRIARCA, P. ***Procedures for fabricating aluminum-base ATR fuel elements***. Oak Ridge, Tn.: Oak Ridge National Lab., 1964. (ORNL-3632).
- [20] TESTAR, E. ; CASTILLO, F. J. ; Homogeneidad del núcleo en elementos combustibles ***Nucleotecnica***, a. 7, n. 12, 1987, PP. 71-72.

- [21] AIEA - INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Standardization os specifications and inspection procedures for LEU plate-type research reactor fuels**. Vienna: IAEA, 1988. (IAEA-TECDOC-467)
- [22] INTERNATIONAL PHOTOGRAPHIC DIVISION / EASTMAN KODAK COMPANY **Elementos de radiografia. 6 ed.** New York – NY: 1961.
- [23] SANCHEZ, W. **Ensaaios não destrutivos pela técnica dos raios – x e raios gama** : São Paulo – Brasil: Coordenadoria de Aplicação de Radioisótopos na Engenharia e na Indústria – Instituto de Energia Atômica, 1974. (Informação IEA nº 29 Agosto de 1974).
- [24] ANDREUCCI, R. **Radiografia industrial**. São Paulo – SP: ABENDE – Associação Brasileira de Ensaaios Não Destrutivos, Julho - 2003.
- [25] EASTMAN KODAK COMPANY **Radiography in modern industry**; 2 ed. New York - NY: X-ray Division, 1957.
- [26] ASME - AMERICAN SOCIETY MECHANICAL ENGINEER **Code ASME sec. V and VIII Div. 1 and 2** New York - 2001.
- [27] ASTM - AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS STANDARD - **Standard practice for design; manufacture and material grouping classification of wire image quality indicators (IQI)**; used for radiology. {S.I: s.n., s.d }. (ASTM E 747 - 04).
- [28] EASTMAN KODAK COMPANY; **Radiography in modern industry**. 4 ed. New York - NY: {s. n.}, 1980.
- [29] ASTM - AMERICAN SOCIETY FOR TESTING AND MATERIALS STANDARD **Tst method for classification of film systems for industrial radiography**. {S.I: s.n.}, 2001. (ASTM E 1815-96).
- [30] GREENE, A.; **Radiographic inspection**. – In: ASM Handbbok – nondestructive evaluation and quality control. – Cleveland: John Wiley & Sons, 1989. P. 628-763. ISBN 0-87170-007-7.
- [31] GE – INSPECTION TECHNOLOGIES. **Radiographic film systems**. {S.I: s.n. }, 2005. (Geit – 40007GB – 08/2005/09).
- [32] LABBE; D. E. **Gamma scanning for MITR II fuel plates**. U S A : S. B. Technological Institute / Massachusetts Institute of Tecnology, August – 12 - 1974.

- [33] GOMEZ MARLASCA, F. ; HEY, M. A.; FABRO, J. O.; RESTELLI, M. A. ***New methods for measuring uranium superficial density in MTR fuel plates using radiography.*** Buenos Aires, Argentina: UACN / CNEA, 2006. (RRFM – 2006).

- [34] BARRERA, M.; OLIVARES, L.; CHÁVEZ, J.; LISBOA, J.; SALINAS, J.; MARIN J. ***Homogeneidad de dispersiones de U_3Si_2 em matriz de alumínio de placas combustibles nucleares.*** Santiago, Chile: Unidadad de Combustibles / CCHEN - Comisión Chilena de Energia Nuclear, 2000.

- [35] SALINAS, R.; RAFF, U.; CORONADO, H.; OLIVARES, L. Quality control of nuclear fuel plates using digital image processing techniques. ***Nucleotecnica***, a. 23, n. 37, Diciembre 2003.

- [36] GEVAERT, N. V. ***Radiographic systems*** : structurix film systems – B – 2640. Belgium: AGFA , 2000/09.

- [37] GEVAERT, N. V. ***Instruction manual*** : structurix NDT E . Germany: AGFA, 06/1987.

- [38] STATSOFT, Inc. (2007). ***Statistica*** (data analysis software system) version 6.1. www.statsoft.com.

- [39] MONTGOMERY, D. C.; RUNGER, G. C. ***Estatística aplicada e probabilidade para engenheiros.*** 2ª ed. - São Paulo – SP - 2003 LTC Livros Técnicos e Científicos Editora - . ISBN 85-216-1360-1.