

ESTUDO DE DANOS DE RADIAÇÃO POR NÊUTRONS RÁPIDOS EM AMOSTRAS DE PASTA DE CIMENTO PORTLAND COMUM

GEORGI LUCKI
ALEXANDRE ANACREONTE ROSA JÚNIOR
Divisão de Danos de Radiação, IPEN-CNEN/SP

RESUMO

Neste trabalho foram avaliados os efeitos da radiação neutrônica em amostras de cimento Portland, e para tal utilizaram-se os métodos de frequência de ressonância e velocidade de pulso de técnicas ultra-sônicas. Dividiu-se as amostras em três grupos: 1) Amostras de monitoração; 2) Amostras submetidas a simulação do aquecimento gama; 3) Amostras irradiadas. Na fabricação das amostras utilizou-se o cimento Portland Santa Rita CP 320, e taxa água-cimento de 0,40 l/Kg, e foram mantidas em câmara de saturação até o momento de serem utilizadas. A irradiação foi feita no reator de pesquisa IEA-R1, do IPEN-CNEN/SP, com um fluxo integrado de $7,2 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$ ($E \approx 1 \text{ Mev}$). Durante a irradiação a temperatura foi de $120 \pm 5 \text{ }^\circ\text{C}$, causada pelo aquecimento gama, a qual foi simulada em laboratório, em um outro lote de amostras, utilizando-se um forno de microondas. As experiências se realizaram de acordo com um plano pré-determinado, com a finalidade de avaliar a influência da temperatura e da radiação neutrônica na estrutura das amostras. Alguns danos foram detectados, em parte causados pelo fluxo de nêutrons, e em parte pelo efeito térmico causado pelo aquecimento gama.

INTRODUÇÃO

Concreto é o resultado da mistura de um aglomerante com água, agregados finos e graúdos, é facilmente obtido, e é um material econômico. Além de outras aplicações, o concreto é utilizado como material estrutural e também como material de blindagem na tecnologia nuclear [1]. Entre os diversos tipos de aglomerantes existentes, o cimento Portland comum é um dos mais usados. Este motivo levou-nos a iniciar nosso estudo por ele, visto que poucos trabalhos visam essencialmente à separação entre os efeitos da radiação neutrônica e efeitos térmicos (aquecimento gama) em amostras de pasta de cimento Portland [2].

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Para a fabricação das amostras foi utilizado o cimento Portland comum (Santa Rita

CP 320) e a taxa água-cimento utilizada foi de 0,40 l/Kg. As amostras tinham forma cilíndricas com as dimensões: comprimento (l) = $51,70 \pm 0,22 \text{ mm}$ e diâmetro (d) = $27,38 \pm 0,17 \text{ mm}$.

A cura foi feita em câmara de saturação (umidade relativa (UR) de 100 %) e temperatura mantida na faixa de $23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ [3].

Após a desmoldagem, as faces das amostras foram polidas a fim de se obter um melhor paralelismo, e também uma melhor acoplagem entre os transdutores ultra-sônicos. As amostras foram mantidas em atmosfera controlada por um período de 210 dias antes que se iniciasse os experimentos, a fim de se obter maior estabilidade das características físicas e químicas e assim uma melhor reprodutibilidade de experimental.

Foi realizada análise quantitativa e qualitativa do cimento empregado e além dos principais constituintes foram detectados os componentes mostrados na tabela 1.

Tabela 1. Composição química do cimento Portland Santa Rita CP 320 determinada através de análise por ativação

Elemento químico	Teor	Elemento químico	Teor
Ca	24,05 %	Nd	Traços
Fe	1,85 %	Ba	"
Na	0,10 %	Yb	"
Ce	165 ppm	Tb	"
La	68,50 ppm	Cr	"
Sm	10,00 ppm	Au	"
Th	9,80 ppm	Sr	"
Sc	7,55 ppm	Cs	"
Co	4,70 ppm	Rb	"
Hf	3,60 ppm	As	"
Eu	1,75 ppm	Sb	"
Lu	0,42 ppm	Ta	"
		U	"

Foi estabelecido um programa com o objetivo de distinguir os efeitos da radiação neutrônica dos efeitos térmicos provocados pelo aquecimento gama. Este programa é mostrado na figura 1.

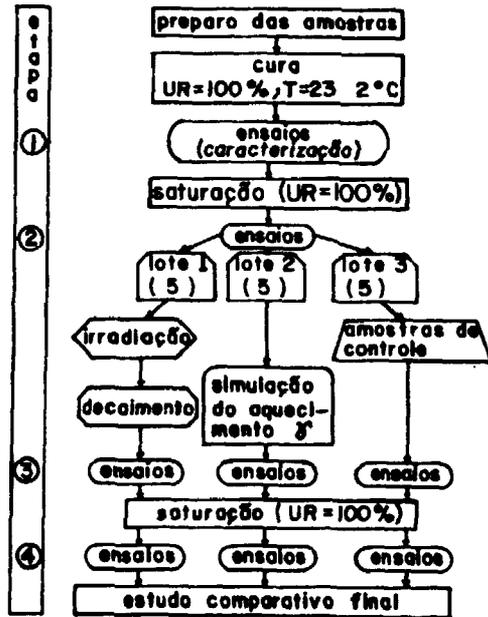


Figura 1. Programa de ensaios

As amostras foram irradiadas no reator de pesquisa IEA-R1, no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN-CNEN/SP, utilizando um equipamento de irradiação especial, e que é descrito na referência [4].

Cinco amostras foram irradiadas, e na amostra situada no plano médio do caroço do reator foi colocado um termopar, para a monitoração da temperatura ($\pm 1^\circ\text{C}$). Daqui para a frente estas amostras serão denominadas amostras não irradiadas. A temperatura de irradiação foi de $120 \pm 5^\circ\text{C}$ devido ao aquecimento gama.

Pelo fato de o reator não operar continuamente, as amostras sofreram 61 ciclos de temperatura durante este período.

As amostras foram irradiadas em atmosfera de argônio, durante 474 h e 27 min. Neste período a pressão no interior do dispositivo de irradiação foi elevada em mais que $2,0 \text{ Kg/cm}^2$, devido a liberação de gases. A análise deste gás acusou a presença de nitrogênio (14,44%), oxigênio (10,12%) e hidrogênio (4,7%). A presença destes elementos é explicada pelo fato da radiação gama provocar a radiólise da água de cristalização da pasta de cimento [5,6].

As amostras foram submetidas aos seguintes fluxos de nêutrons: nêutrons térmicos = $1,16 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$; nêutrons rápidos = $7,20 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$.

A fim de separar os efeitos da radiação neutrônica dos efeitos térmicos (devido ao aquecimento gama) foi realizado em laboratório um recozimento térmico cíclico, em amostras não irradiadas, em um forno de microondas. Isto teve o propósito de simular o aquecimento gama cíclico em amostras irradiadas.

As amostras não irradiadas sofreram as mesmas variações de temperatura daquelas no interior do caroço do reator ($25 \pm 2^\circ\text{C}$ a $120 \pm 5^\circ\text{C}$) e por igual período de tempo (474 h e 27 min.).

No centro geométrico das amostras não ir

radiadas foi colocado um termopar para monitorar as variações de temperatura durante a simulação do recozimento térmico cíclico no interior do forno.

O módulo de elasticidade dinâmico (E_d) foi calculado por meio de técnicas ultra-sônicas. Foi utilizado os métodos da velocidade de pulso (V_p) e frequência de ressonância (Fr), com o objetivo de se obter melhor reprodutibilidade dos resultados experimentais, e eliminar eventuais erros sistemáticos e instrumentais que podem ocorrer nestes experimentos.

O E_d foi calculado por meio das equações:

$$E_d = 4 (Fr)^2 l^2 \rho / g, \text{ para o método da } Fr \text{ (Ref. [7]);}$$

$$E_d = (V_p)^2 \rho (1 - \eta) / g, \text{ para o método da } V_p \text{ (Ref. [8]), sendo:}$$

E_d = Módulo de elasticidade dinâmico (ML^{-2})

Fr = Frequência de ressonância (T^{-1})

V_p = Velocidade de pulso (LT^{-1})

l = Comprimento da amostra (L)

ρ = Massa específica (ML^{-3})

g = Aceleração da gravidade (LT^{-2})

Tt = Tempo de trânsito (T)

η = Coeficiente de Poisson (*)

(*) Para este trabalho foi adotado o valor de $1/6$ para o η , em analogia com experimentos prévios [8].

RESULTADOS

Os resultados obtidos estão sumariados abaixo, em variações percentuais, e na tabela 2.

Foi adotado a seguinte convenção de sinais: (+) aumento percentual; (-) redução percentual.

Estes resultados referem-se a comparação efetuada com os valores obtidos nas amostras antes de serem submetidas a irradiação e tratamento térmico cíclico (umidade relativa (UR) de 100%) e após estes testes, com as amostras secas e também re-saturadas (UR=100%).

As variações percentuais medidas foram as seguintes:

a) Variação percentual do comprimento (l), Diâmetro (d) e Volume (V)

Parâmetro	Amostras irradiadas		Amostras não irradiadas	
	não saturadas	re-saturadas	não saturadas	re-saturadas
l	- 0,04	0	- 0,39	- 0,02
d	- 0,22	- 0,04	- 0,55	- 0,29
v	- 0,52	- 0,10	- 1,52	- 0,56

b) Variação percentual da Massa (m) e Massa específica (Me)

Parâmetro	Amostras irradiadas		Amostras não irradiadas	
	não saturadas	re-saturadas	não saturadas	re-saturadas
m	- 11,91	+ 2,20	- 17,79	- 0,07
Me	- 11,40	+ 2,07	- 16,58	0

c) Variação percentual da Freqüência de ressonância (Fr)

Amostras irradiadas		Amostras não irradiadas	
não saturadas	re-saturadas	não saturadas	re-saturadas
- 33,86	- 13,71	- 39,41	- 8,94

d) Variação percentual do Tempo de trânsito (Tt)

Amostras irradiadas		Amostras não irradiadas	
não saturadas	re-saturadas	não saturadas	re-saturadas
+ 50,07	+ 30,07	+ 47,59	+ 11,72

e) Variação percentual da velocidade de pulso (Vp)

Amostras irradiadas		Amostras não irradiadas	
não saturadas	re-saturadas	não saturadas	re-saturadas
- 33,33	- 22,95	- 32,12	- 10,61

f) Variação percentual do módulo de elasticidade de dinâmico (Ed)

Parâmetro	Amostras irradiadas		Amostras não irradiadas	
	não saturadas	re-saturadas	não saturadas	re-saturadas
Ed (Vp)	- 60,62	- 38,97	- 61,37	- 18,07
Ed (Fr)	- 59,79	- 23,54	- 69,07	- 17,45

Os resultados referentes às amostras irradiadas não saturadas foram obtidos após um período de decaimento de cinco meses, ao passo que nas amostras não irradiadas os testes foram realizados logo após o término do recozimento térmico cíclico.

CONCLUSÕES

Os testes com as amostras irradiadas (sem ressaturação) foram feitos após um período de decaimento radioativo de cinco meses, durante o qual, possivelmente, as amostras absorveram umidade do dispositivo de irradiação estanque e também ocorreram rearranjos da estrutura cristalina. Todavia, o estudo comparativo é válido se considerarmos que todas as amostras provieram do mesmo lote inicial e portanto com o mesmo tempo de cura, muito além (15 meses) do período inicial de 28 dias, e que as amostras irradiadas foram afetadas idênticamente, durante o período de decaimento radioativo.

Das comparações efetuadas com os valores obtidos inicialmente (amostras saturadas, com UR = 100%), e após os tratamentos realizados (irradiação e recozimento térmico cíclico), sem saturação e após ressaturação, podemos concluir:

1) Todas as amostras apresentaram pequenas variações nas suas dimensões lineares (vide tabela 2).

2) Nas amostras submetidas ao recozimento térmico cíclico, a variação de massa foi grande, e esta foi mais pronunciada nos primeiros ciclos devido a evaporação de água de amassamento, variando a sua massa daí em diante apenas em função da umidade relativa do ar.

Nas amostras irradiadas, a radiação gama exerceu influência análoga, e os recozimentos cíclicos no forno de microondas tem a finalidade principal de por em evidência os efeitos da radiação neutrônica nas amostras.

3) A freqüência de ressonância que é um parâmetro extremamente sensível às mudanças estruturais mostrou variação mensurável durante todo o período do recozimento térmico cíclico (amostras não irradiadas) e também no resultado final das amostras irradiadas. Isto nos leva a concluir que tanto o recozimento térmico cíclico quanto a irradiação no reator causaram gradual formação de poros e microfissuras, que podem ser resultantes da quebra das ligações cristalinas nas amostras. A variação da freqüência de ressonância é mostrada nas figuras 2a e 2b.

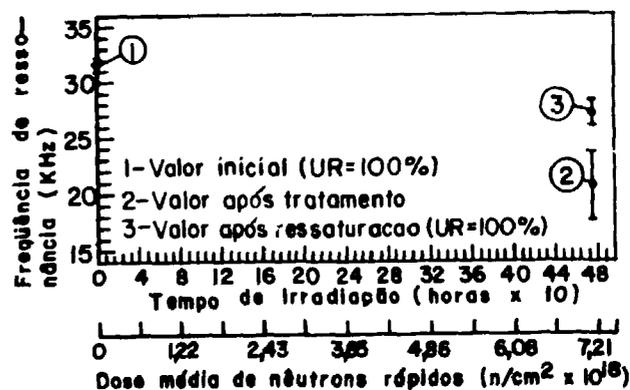


Figura 2a. Variação na freqüência de ressonância das amostras irradiadas

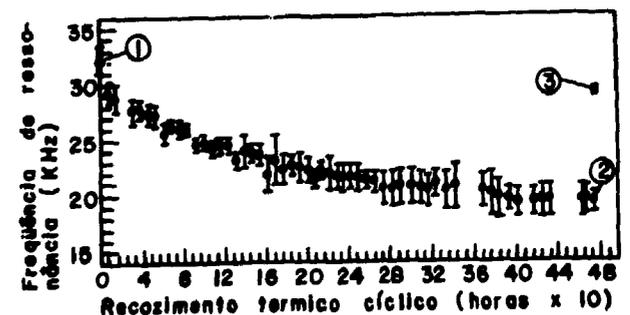


Figura 2b. Variação na freqüência de ressonância das amostras não irradiadas

4) Após a ressaturação das amostras, ocorreu uma recuperação parcial no comprimento, diâmetro, massa, volume, massa específica e módulo de elasticidade (vide tabela 2). Nas amostras irradiadas ocorreu uma recuperação menos satisfatória que naquelas submetidas ao recozimento térmico cíclico. Isto é mais uma indicação de que a radiação neutrônica causou danos na estrutura das amostras, apesar da baixa fluência a que estas foram submetidas

($7,20 \times 10^{18}$ n/cm²).

5) A recuperação observada na massa e massa específica das amostras após a ressaturação, é atribuída ao preenchimento dos poros e fissuras das amostras com água. Nas amostras irradiadas a absorção foi mais pronunciada (vide tabela 2), e isto é uma indicação de que a radiação neutrônica contribuiu para uma mudança microestrutural das amostras. Tanto as amostras irradiadas como não irradiadas apresentaram fissuras em sua superfície após os tratamentos a que foram submetidas.

6) A análise do módulo de elasticidade das amostras irradiadas e não irradiadas mostra claramente que os ciclos térmicos contribuíram de modo decisivo para um decréscimo deste parâmetro. Porém, uma comparação entre os dois tipos de amostras após a ressaturação, põe em evidência os danos de radiação neutrônica nas amostras irradiadas, aumentando conseqüentemente a fragilização e comprometendo a resistência do material. O comportamento do módulo de elasticidade avaliado através dos dois métodos (Fr e Vp) é coerente dentro do desvio experimental encontrado na literatura [9]. A variação do módulo de elasticidade dinâmico é mostrada nas figuras 3a, 4a, 3b e 4b.

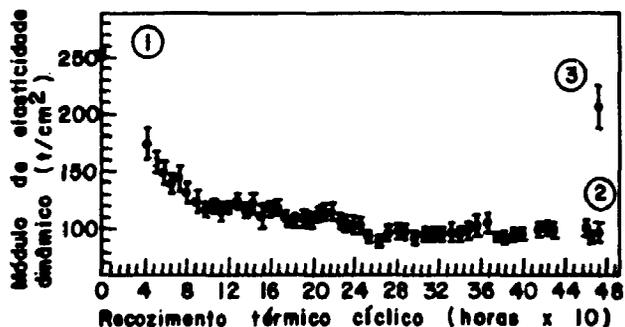


Figura 3a. Variação no módulo de elasticidade dinâmico das amostras não irradiadas (método da velocidade de pulso)

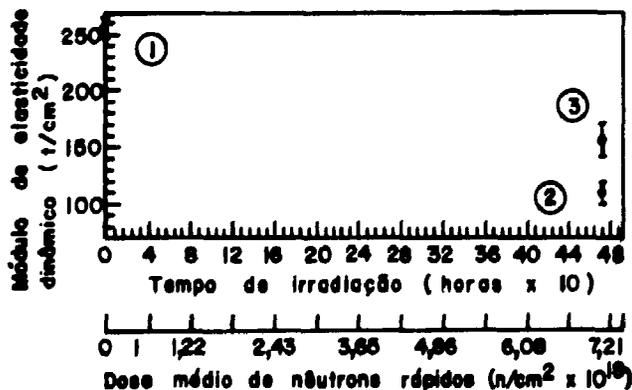


Figura 3b. Variação no módulo de elasticidade dinâmico das amostras irradiadas (método da velocidade de pulso)

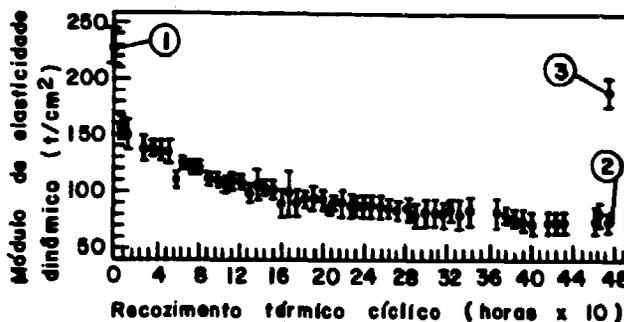


Figura 4a. Variação no módulo de elasticidade dinâmico das amostras não irradiadas (método da frequência de ressonância)

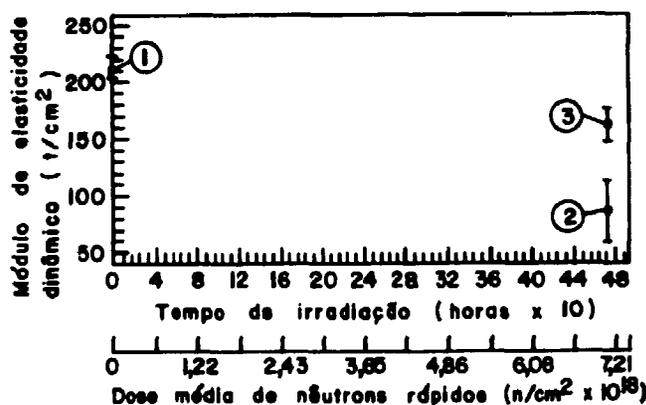


Figura 4b. Variação no módulo de elasticidade dinâmico das amostras irradiadas (método da frequência de ressonância)

- 1 Valor inicial (UR = 100 %)
- 2 Valor após tratamento
- 3 Valor após ressaturação (UR = 100 %)

De um modo geral, pelos resultados obtidos podemos concluir que os efeitos térmicos nas amostras foram predominantes. Porém, quando estas foram ressaturadas, foi observado que mesmo para baixas fluências como as mencionadas neste trabalho, a radiação neutrônica causou danos detectáveis nas amostras.

Apesar de não podermos assegurar como a radiação neutrônica interfere em uma estrutura complexa como a do cimento, pode ser concluído que danos devido a radiação neutrônica ocorreu, uma vez que todos os parâmetros estudados mostram uma recuperação menor nas amostras irradiadas.

Tabela 2. Valores obtidos nos testes

PARÂ- METRO	UNI- DADE	AMOSTRAS SUBMETIDAS À IRRADIAÇÃO			AMOSTRAS NÃO IRRADIADAS		
		VALOR INICIAL (AMOSTRAS SA- TURADAS : UR = 100 %)	APÓS IRRADIAÇÃO		VALOR INICIAL (AMOSTRAS SA- TURADAS : UR = 100 %)	APÓS RECOZIMENTO TÉRMICO CÍCLICO	
			SEM SATURAÇÃO	APÓS RES- SATURAÇÃO		SEM SATURAÇÃO	APÓS RES- SATURAÇÃO
DIÂMETRO	mm	27,44 ± 0,2	27,38 ± 0,1	27,43 ± 0,2	27,23 ± 0,1	27,08 ± 0,1	27,15 ± 0,8
COMPRI- MENTO	mm	51,90 ± 0,0	51,88 ± 0,2	51,90 ± 0,1	51,90 ± 0,0	51,70 ± 0,1	51,89 ± 0,1
MASSA	g	59,18 ± 1,1	52,13 ± 0,9	60,49 ± 1,2	59,99 ± 0,2	49,32 ± 0,3	59,95 ± 0,3
FREQÜEN- CIA DE RESSONÂN- CIA	KHz	31,72 ± 0,6	20,98 ± 3,0	27,37 ± 1,1	32,20 ± 1,1	19,51 ± 0,8	29,32 ± 0,6
TEMPO DE TRÂNSITO	s	14,20 ± 0,3	21,31 ± 0,8	18,47 ± 1,1	14,50 ± 0,2	21,40 ± 0,6	16,20 ± 0,7
VOLUME	cm ³	30,69 ± 0,3	30,53 ± 0,3	30,66 ± 0,5	30,21 ± 0,2	29,75 ± 0,2	30,04 ± 0,2
MASSA ES- PECÍFICA	g/cm ³	1,93 ± 0,0	1,71 ± 0,0	1,97 ± 0,0	1,99 ± 0,0	1,66 ± 0,0	1,99 ± 0,0
VELOCIDA- DE DE PULSO	Km/s	3,66 ± 0,1	2,44 ± 0,1	2,82 ± 0,1	3,58 ± 0,0	2,43 ± 0,1	3,20 ± 0,1
Ed (Fr) 1	t/cm ²	213,19 ± 8,5	85,72 ± 26,5	163,00 ± 15,0	226,32 ± 12,8	69,99 ± 6,5	186,83 ± 11,3
Ed (Vp) 2	t/cm ²	256,20 ± 9,0	100,90 ± 9,4	156,35 ± 15,9	252,37 ± 2,8	97,50 ± 6,2	206,76 ± 19,2

1 Ed (Fr) : Módulo de elasticidade dinâmico (Método da frequência de ressonância)

2 Ed (Vp) : Módulo de elasticidade dinâmico (Método da velocidade de pulso)

OBSERVAÇÃO : Os valores acima representam a média de valores medidos em 4 amostras

REFERÊNCIAS

- [1] Polivka, M & Davis, H.S. Radiation Effects and Shielding. In: ASTM Significance of tests and properties of concrete and concrete-making materials. 1978 Capítulo 26 p. 420-33
- [2] Kelly, B. T & Davidson, I. Irradiation effects on concrete. In: Institution of civil Engineers. Prestressed concrete pressure vessel: Conference on... held Church house, Westminster, 13-17 marc. 1967. London 1968 p. 173-5
- [3] Associação Brasileira de Normas Técnicas Ensaio de cimento Portland. (ABNT - MB-79) In: ABNT Materiais para concreto e concreto armado. Especificações e métodos de ensaios. p. 37-50
- [4] Gabarra, M.H.C. Aplicações de técnicas ultrassônicas no estudo de efeitos de irradiação em cimento Portland comum de fabricação nacional. São Paulo, 1983 (Dissertação de mestrado IPEN/CNEN-SP)
- [5] British Standards Institution. Specification for Prestressed concrete pressure vessel for nuclear reactors. July 1973 (BS 4975)
- [6] McDowall, D. C. The effects of gama irradiation on the creep properties of concrete. In Benzler H. Comp. An information exchange meeting on results of concrete irradiation programmes, proceedings of... held in Brussels, april 19, 1971 Luxembourg, 1972 p 55-69 (EUR - 4751)
- [7] Whitehurst, E. A. Evaluation of concrete properties from sonic tests. American Concrete Institute, the Iowa State University Press, 1966
- [8] Jones, R. Non destructive testing of concrete. Cambridge, Cambridge at the University press, 1962
- [9] Whitehurst, E. A & Malhotra, V. M. Non destructive tests. In: ASTM Significance of tests and properties of concrete and concrete-making materials. 1978 Capítulo 15 p. 200-25