

NOTA PRELIMINAR SOBRE A INFLUÊNCIA DE FINOS NA
DENSIDADE DE PASTILHAS DE UO₂

Marcelo Breda Mourão
Nestor Fogaça Filho
Eduardo Jorge Branco Vieira Barcelos
Artur de Moraes Teixeira da Silva



Contribuição Técnica do
Centro de Metalurgia Nuclear
Instituto de Energia Atômica
São Paulo

.ao

XXXII Congresso Anual da
Associação Brasileira de Metais
São Paulo - SP - julho 1977

D. E. N.

NOTA PRELIMINAR SOBRE A INFLUÊNCIA DE FINOS NA DENSIDADE DE PASTILHAS DE UO₂

MARCELO BREDA MOURÃO⁽¹⁾
NESTOR FOGAÇA FILHO⁽¹⁾
EDUARDO JORGE BRANCO VIEIRA BARCELOS⁽¹⁾
ARTUR DE MORAES TEIXEIRA DA SILVA⁽¹⁾

R E S U M O

Os autores estudam, no presente trabalho, o efeito da distribuição granulométrica dos finos na densidade de pastilhas sinterizadas de UO₂.

A variação na distribuição granulométrica foi conseguida através de moagem, empregando-se para isso moinho de bolas e moinho vibratório.

Foram preparadas cinco amostras diferentes de pós, com as quais se confeccionaram pastilhas, que foram sinterizadas a 1400°C sob nitrogênio, por 15 horas.

Os resultados obtidos foram tabelados e é discutida ainda a influência do tamanho da partícula sobre a densidade final.

* * * * *

Trabalho a ser apresentado ao XXXII Congresso Anual da Associação Brasileira de Metais, a ser realizado em julho de 1977 em São Paulo.

(1) Membro da ABM; Engenheiro Metalurgista; Centro de Metalurgia Nuclear, Instituto de Energia Atômica.

PRELIMINARY REPORT ABOUT THE INFLUENCE OF FINES
UPON UO₂ PELLETS DENSITY

A B S T R A C T

In this paper, the authors study the effect of the fines particle size distribution upon the densities of sintered UO₂ pellets.

The particle size distribution changes was achieved through special ball mill and vibratory mill operations.

Five different samples of powders were prepared with which the pellets were made and sintered for 15 hours at 1400°C in nitrogen. The results are presented and the influence of the particle size upon the final density is discussed.

1- INTRODUÇÃO

Vários são os fatores que influem na densidade de pastilhas sinterizadas de UO_2 , do tipo empregadas em elementos combustíveis de reatores de potência refrigerados a água pressurizada (PWR).

Sabe-se⁽¹⁾ que os principais fatores que influem no resultado da sinterização são aqueles relativos a : material, partícula e processo.

Analisando-se tais fatores pode-se avaliar a influência e importância de cada um. Assim tem-se:

- Relativos ao material: são as suas propriedades físicas e químicas, tais como coeficientes de difusão, coeficiente de viscosidade, energia livre superficial, desvio da composição estequiométrica e reatividade química;
- Relativos a partícula: são os fatores tamanho e distribuição granulométrica, forma e estado da superfície e tamanho médio de partícula;
- Relativos ao processo: são os processos de preparação do pó, compactação e sinterização.

A presente contribuição técnica tem como objetivo estudar, através de ensaios de sinterização, a influência da fração granulométrica abaixo de 325 malhas por polegada linear, aqui denominada "finos", na densidade de pastilhas de UO_2 , ou seja, a influência de alguns fatores relativos a partícula, decorrentes do processo de preparação do pó, sobre o resultado da sinterização.

A matéria-prima utilizada na fabricação do pó de UO_2 foi o Diuranto de Amônio (DUA), nuclearmente puro, preparado pelo Centro de Engenharia Química do Instituto de Energia Atômica.

Este sal após passar pelos ensaios de recepção no Centro de Metalurgia Nuclear, é calcinado em forno de mufla a $750^{\circ}C$, por cerca de 10 horas, obtendo-se como produto o U_3O_8 . Este por sua vez é reduzido a UO_2 em forno de mufla sob atmosfera de hidrogênio, por 30 minutos.

2- PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Para a realização das experiências, o pó de UO_2 foi primeiramente seco em estufa, a $80^{\circ}C$ por 4 horas, para a eliminação da umidade. em seguida foi determinada a distribuição granulométrica pelo método de peneiramento, vibrando-se em aparelho apropriado as peneiras de 100, 150, 200, 270 e 325 malhas por polegada linear, por 15 minutos.

Foram separados cinco lotes do pó, e suas frações menores que 44 microns (que passaram na peneira de 325 malhas por polegada linear), sofreram, cada uma, tratamentos diferentes para alterar-se a sua distribuição granulométrica.

Para isso, foram usados um moinho de bolas de ágata e um moinho vibratório de carboneto de tungstênio, empregando-se tempos diferentes para cada uma das quatro frações, enquanto que a quinta não sofreu tratamento algum.

A seguir, cada uma das cinco frações menores que 325 malhas por polegada linear teve a sua distribuição granulométrica determinada por sedimentação, utilizando-se para isso uma balança marca "Sartorius", que registra a massa das partículas que se sedimentam em um determinado meio fluido sobre o prato da balança em função do tempo requerido para a sedimentação. Para um determinado tempo de sedimentação, a massa de pó depositada corresponderá a partículas de diâmetro maior ou igual ao diâmetro calculado a partir da lei de Stokes, levando-se em conta a viscosidade do líquido de sedimentação, a densidade da amostra, a densidade do líquido, a altura da coluna de líquido, a aceleração da gravidade e o tempo de sedimentação. O líquido de sedimentação usado foi a água, sendo a escolha baseada na densidade do material utilizado e na faixa de diâmetros que se quis estudar.

Com a distribuição granulométrica é possível se calcular o diâmetro médio das partículas. Para isso, foi definido para o presente estudo o diâmetro médio como sendo aquele que mantém a mesma relação de superfície/volume do que a somatória das partículas do pó. Esse diâmetro é calculado por:

$$d_{sv} = \frac{\sum \Delta R_i}{\sum \frac{\Delta R_i}{d_{mi}}} \quad \text{onde:}$$

ΔR_i é a porcentagem em massa de partículas contidas em cada intervalo, e d_{mi} é o diâmetro médio de cada intervalo, definido como média aritmética dos diâmetros limites do intervalo (2)

Com a finalidade de se verificar a concordância entre este método de determinação de diâmetro médio e aquele normalmente usado na linha de Controle de Qualidade de pós do CMN, foi feita também esta determinação pelo método Fisher, que se baseia na perda de carga de um fluxo de ar que atravessa uma massa de pó.

Para a observação direta da forma, tamanho e aspectos superficiais das partículas, utilizou-se microscopia eletrônica de varredura.

Após esses ensaios, as frações menores que 325 malhas por polegada linear foram novamente misturadas com o restante do pó de cada um dos cinco lotes, que foram devidamente homogeneizados (3), e determinadas as densidades aparentes solta, batida e limite de cada lote.

Foram então compactadas cinco séries de pastilhas em prensa manual, com matriz flutuante de diâmetro 11,8mm, as pastilhas mantendo a relação altura/diâmetro igual a 1,5, evitando-se assim gradientes de densidade ao longo das pastilhas.

Foi usada uma única pressão de compactação, assim como as condições de sinterização foram as mesmas para todas as pastilhas, de modo que a única variável do processo foi a distribuição granulométrica dos finos.

Após o controle dimensional a verde, as pastilhas foram sinterizadas em forno elétrico com resistência Global, de mufla de alumina a 1.400°C, sob atmosfera de nitrogênio, por 15 horas. O aquecimento foi feito à velocidade de 120°C/h até 1200°C, e a 65°C/h de 1200°C a 1400°C.

As pastilhas assim obtidas tiveram a sua densidade determinada pelo método hidrostático.

3- RESULTADOS E DISCUSSÃO

A análise granulométrica por peneiramento do pó empregado apresentou o seguinte resultado:

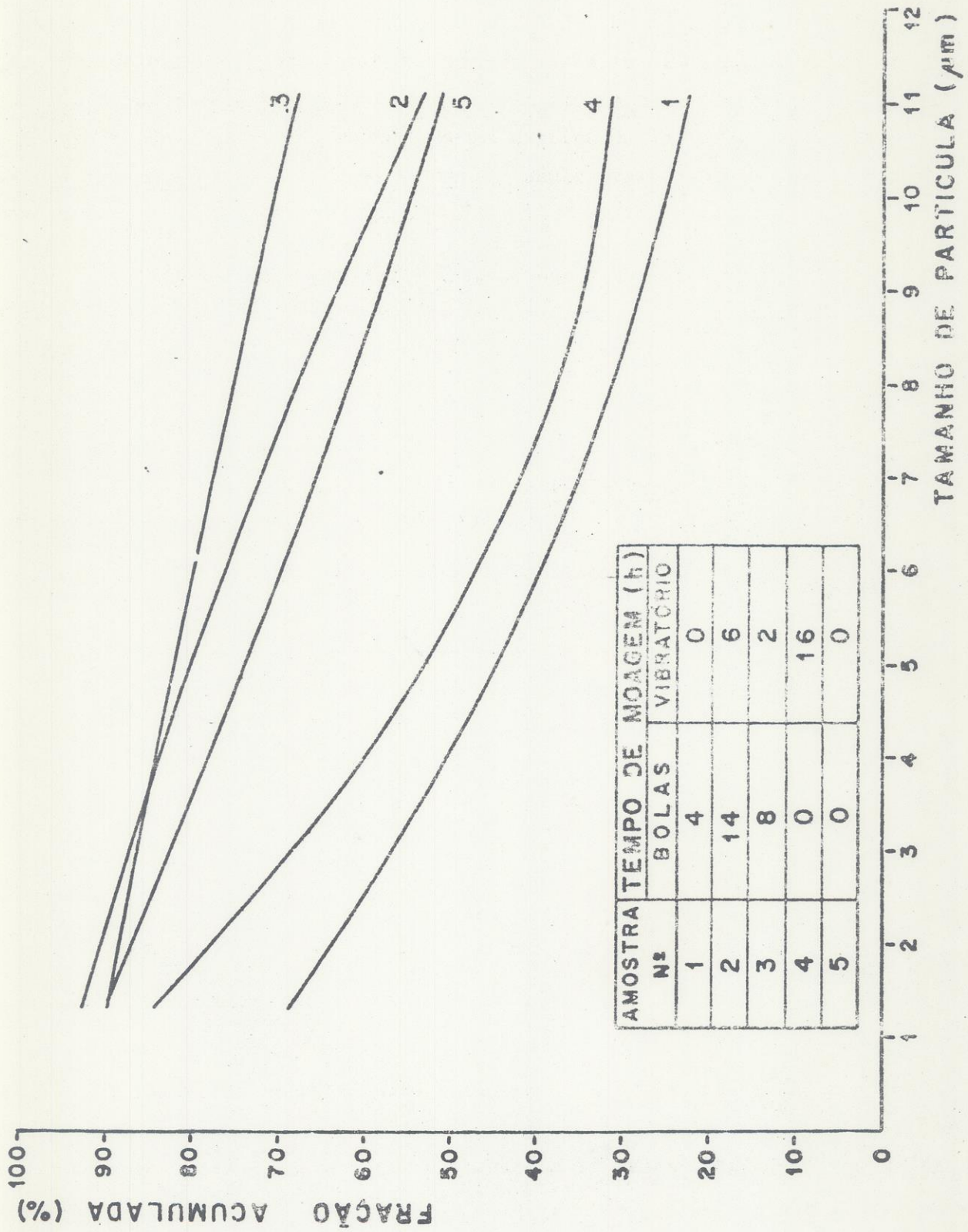
TABELA I

Distribuição Granulométrica do Pó

<u>Fração Granulométrica</u> (malhas/polegada linear)	<u>Porcentagem Retida</u> (%)
+ 100	0,2
- 100 + 150	18,0
- 150 + 200	26,2
- 200 + 270	27,9
- 270 + 325	13,6
- 325	14,1
TOTAL	100,0

Portanto, a massa de pó manipulada corresponde a apenas 14,1% da massa total do pó.

A Fig. 1, mostra as curvas de distribuição granulométrica das cinco amostras. Deve-se notar que o maior diâmetro marcado (11,1 μ m) corresponde ao limite de sensibilidade da medida para o líquido de sedimentação usado, no caso a água.



Nota-se também que as amostras 2 e 3, que foram moidas, apresentam curvas localizadas acima da curva da amostra 5, que não sofreu tratamento algum, quando era de se esperar que estivessem abaixo ainda da curva da amostra 1, pois foram moidas por mais tempo. Isto é devido a um processo de aglomeração, que tende a ocorrer à medida que as partículas se tornam mais finas, devido à predominância das forças externas resultantes do processo de moagem sobre as forças que tendem a rompê-las(4).

Os resultados das determinações das densidades aparentes solta, batida e limite dos pós, assim como da densidade a verde das pastilhas, estão reunidos na tabela II.

TABELA II

Densidades Aparentes do Pó e da Pastilha a Verde

Amostra	Densidade (g/cm ³)			
	solta	batida	limite	verde
1	1,5	2,2	2,4	5,09
2	1,5	2,2	2,5	5,13
3	1,6	2,0	2,4	5,15
4	1,4	1,9	2,3	5,04
5	1,3	1,8	2,2	5,03

De acordo com Nishioka(5), deveria haver uma maior variação nas densidades aparentes solta, batida e limite com o tempo de moagem, o que não ocorreu. Isto provavelmente é devido a que no presente estudo, apenas a fração que passou na peneira de 325 malhas por polegada linear foi moída, o que não altera significativamente o arranjo final das partículas, após a mistura e homogeneização dessa fração com o restante do material.

A tabela III resume os resultados de diâmetro médio (calculado e Fis_{her}) e densidade hidrostática das pastilhas sinterizadas.

TABELA III

Tamanho Médio de Partícula e Densidade de Pastilha Sinterizada

Amostra	Tamanho Médio de Partícula (µm)		Densidade (g/cm ³)	(*) $\frac{\rho_s}{\rho_t} \times 100$
	calculado	Fis _{her}		
1	1,72	0,64	10,76	98,2
2	4,71	0,75	10,60	96,7
3	4,35	0,70	10,50	95,8
4	2,53	0,65	10,69	97,5
5	4,06	0,68	10,65	97,1

(*) Densidade teórica (ρ_t) do UO₂ 10,96g/cm³

Comparando-se os resultados da tabela III com as curvas da Fig. 1, vê-se que a densidade final decresce à medida que a curva se coloca mais acima, isto é, à medida que diminui a quantidade de partículas menores que um determinado diâmetro. Isto era de se esperar já que com a moagem, aumentou-se a superfície específica do pó, bem como o número de contatos entre partículas devido à diminuição do seu tamanho médio(6).

Entretanto, comparando-se os valores dos diâmetros médios para as amostras 2 e 3, era de se esperar uma maior densidade final das pastilhas obtidas com a amostra 3, fato que não ocorreu; neste caso, portanto, o fator preponderante no resultado final, foi a distribuição granulométrica de partículas.

Nota-se que, tanto o diâmetro médio calculado como o medido pelo método Fisher apresentaram a mesma sequência de valores relativos para as cinco amostras, inclusive nas amostras 2 e 3, o que indica ser o método Fisher um bom indicador qualitativo de diâmetro médio de partículas.

As micrografias eletrônicas de varredura, feitas empregando-se técnica de dispersão do pó em lâminas, mostram (Figs. 2, 3 e 4) a ocorrência de aglomeração na amostra 2, e as diferenças de tamanho e forma das partículas entre a amostra 5, não moída, e a amostra 1, que foi moída por 4 horas em moinho de bolas.

4- CONCLUSÕES

1- Durante o processo de moagem, aumentando-se o tempo de operação, ocorre um fenômeno de aglomeração das partículas, sendo este efeito mais pronunciado nos moinhos de bola do que em moinho vibratório.

2- A alteração da distribuição granulométrica da fração menor que 325 malhas por plegada linear, por moagem, não alterou significativamente as densidades aparentes do pó nem a densidade a verde das pastilhas compactadas.

3- A densidade final das pastilhas sinterizadas é afetada pela mudança na distribuição granulométrica dos finos.

4- As curvas de distribuição granulométrica de finos são melhores indicadores relativos de densidade final de pastilhas do que medidas de diâmetro médio desses finos.

5- Pode-se alterar o comportamento de uma massa de pó, manipulando-se apenas uma fração desta massa (neste trabalho 14,1%).

X REFERÊNCIAS.

- (1) HAUSNER, H.H. and DEDRICK, J.K. - "Electrical Properties as Indicators of the Degree of Sintering" - The Physics of Powder Metallurgy, (KINGSTON, W.E.; Ed.), Cap. 20, pp. 320 - 321, 1951.
- (2) ALLEN, T. - "Particle Size Measurement" - Chapman and Hall, p. 23, 1968.
- (3) Idem ref. (2) - p. 4
- (4) BEKE, B. - "Principles of Comminution" - p. 123, Budapest, 1964.
- (5) NISHIOKA, I. - "Influencia da Moagem sobre as Características dos Póis de UO_2 " - Metalurgia-Rev. Ass. Bras. Met., v. 26, nº 156, p. 892, 1970. ✓
- (6) MULLER, N.G. - "Pore Structure and Sintering of UO_2 " - p. 145, Meeting on Characterization of Uranium Dioxide, TID - 7637, 1961.

LISTA DE FIGURAS

- Fig. 1 - Curvas de distribuição granulométrica da fração menor que 325 malhas por polegada linear, das 5 amostras.
- Fig. 2 - Micrografia eletrônica de varredura de pó de UO_2 da amostra número 5. Aumento 650 X.
- Fig. 3 - Micrografia eletrônica de varredura, mostrando a fragmentação dos grânulos de UO_2 , após moagem, da amostra 1. Aumento 650 X.
- Fig. 4 - Micrografia eletrônica de varredura, mostrando a aglomeração ocorrida com tempo maior de moagem, da amostra 2. Aumento 650 X.



Fig. 2

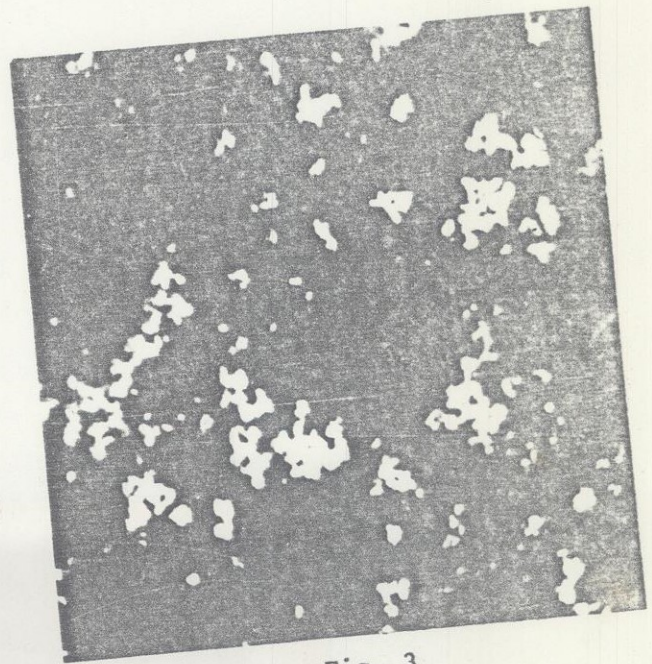


Fig. 3



Fig. 4