

REESTRUTURAÇÃO DE MICROPARTICULAS

RESTRUCTURING OF MICROPARTICLES

Fernando Soares Lameiras
Ana Maria Matildes dos Santos

Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear - CDTN
Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN
Rua Mário Werneck s/nº - Cidade Universitária - Pampulha
Caixa Postal 1941 - CEP 30161 - Belo Horizonte - MG - Brasil

RESUMO

Resultados experimentais de distribuições de tamanhos de grãos, em pastilhas de $(U,Gd)O_2$ sinterizadas, foram interpretados de acordo com o modelo de reestruturação de micropartículas desenvolvido por Lameiras. Este modelo, o qual inclui os fenômenos de crescimento de grão e amadurecimento de Ostwald, supõe que a reestruturação de micropartículas é governada por dois princípios fundamentais: minimização da energia interfacial e uniformização da sua distribuição no espaço. Admite-se que a energia interfacial é estocada nos contornos de grão, linhas triplas e pontos quádruplos. A minimização da energia interfacial pode ocorrer através de três maneiras independentes entre si: diminuição do número de micropartículas, alteração da distribuição de tamanhos e alteração da distribuição de formas. A uniformização da distribuição espacial da energia interfacial pode se dar através de duas maneiras também independentes entre si: tendência à distribuição espacial uniforme das micropartículas e tendência à distribuição uniforme da energia interfacial por micropartícula. Obteve-se boa concordância dos resultados experimentais com as previsões do modelo.

ABSTRACT

Experimental grain sizes distributions of sintered $(U,Gd)O_2$ pellets were analysed according to the model of Lameiras for microparticles restructuring. This model, which includes the grain growth and Ostwald ripening phenomena, assumes that the microparticles restructuring is governed by two fundamental principles: minimization of the interface energy and uniformization of its distribution in space. It is also, assumed that the interface energy is stored in the grain boundaries, triple lines and quadruple points. The minimization of the interface energy can be done through three ways independent of each other: diminishing of the number of microparticles, alteration of the size distribution and alteration of the form distribution. The uniformization of the spatial distribution of the interface energy can be done through two ways also independent of each other: tendency to an uniform spatial distribution of microparticles and tendency to an uniform distribution of the interface energy per microparticle. The model accords well with these experimental data.



1. INTRODUÇÃO

O modelo, desenvolvido por Lameiras, para a reestruturação de micropartículas foi apresentado em detalhes de acordo com as referências [1, 2, 3, 4, 5, e 6]. Conforme este modelo, o fenômeno de reestruturação das micropartículas, que inclui o crescimento de grão e o amadurecimento de Ostwald, é governado por dois princípios fundamentais:

- 1) tendência à minimização da energia interfacial;
- 2) tendência à uniformização da distribuição espacial da energia interfacial.

Considera-se que a energia interfacial é estocada nas interfaces das micropartículas (contornos de grão, linhas triplas e pontos quádruplos).

Para atender ao primeiro princípio, admitem-se três maneiras fundamentais independentes entre si, ou sejam:

- diminuição do número de micropartículas;
- alteração da distribuição de tamanhos das micropartículas; e
- alteração da forma das micropartículas, tendendo para uma equiaxial.

Para atender ao segundo princípio, admitem-se duas maneiras fundamentais também independentes entre si, ou sejam:

- tendência à distribuição uniforme das micropartículas no espaço; e
- tendência à distribuição uniforme de interface por micropartícula (ou seja, todas as micropartículas do mesmo tamanho).

De acordo com as previsões desse modelo, após um determinado instante durante a evolução do crescimento de grão, a distribuição de tamanhos de grãos pode ser descrita pela superposição de duas componentes, sendo que uma corresponde a grãos com a forma de dodecaedro e a outra a grãos com a forma de -tetradecaedro.

A expressão analítica desta distribuição é dada por:

$$\frac{\Delta V_i}{V} = n_o^g \cdot d_i \cdot \exp[\lambda_g \cdot (d_o - d_i) \cdot d_i^2] + n_o^p \cdot d_i^3 \cdot \exp[\lambda_p \cdot (d_o - d_i) \cdot d_i^2] \quad (1)$$

1,15

onde,

$\frac{\Delta V_i}{V}$: fração volumétrica de grãos com diâmetro entre d_i e d_{i+1}

d_i : diâmetro de grão na classe i

n_o^g : parâmetro da componente com diâmetro d_o

n_o^p : parâmetro da componente com diâmetro $d_o/1,15$

λ_g : parâmetro da componente com diâmetro d_o

λ_p : parâmetro da componente com diâmetro $d_o/1,15$



d_0 : diâmetro da distribuição

2. EXPERIMENTOS

Amostras de UO_2 com teores variáveis de Gd_2O_3 foram preparadas através de misturas de pós de UO_2 (de três procedências diferentes) e de Gd_2O_3 . A mistura de pós foi prensada na forma de pastilhas e sinterizadas a $1650^\circ C$ em atmosfera de hidrogênio. O tempo de sinterização foi de 3 e 6 horas.

Nessas condições a sinterização dessas amostras alcança o terceiro estágio e espera-se que a distribuição de tamanhos de grãos já possa ser descrita pela equação (1).

As amostras sinterizadas foram preparadas ceramograficamente através de corte, lixamento e polimento. As estruturas de grãos foram reveladas por ataque térmico em atmosfera de CO_2 em temperatura inferior à de sinterização.

As distribuições de tamanhos de grãos foram obtidas através de registro fotográfico com auxílio de microscopia óptica, medição das áreas das seções de corte dos grãos e aplicação do método de Saltykov [7].

Os parâmetros da distribuição (1) foram ajustados às distribuições experimentais através do teste do chi-quadrado com confiabilidade de 95%.

A Tabela 1 sumariza os dados obtidos. Com exceção de uma amostra, observou-se que a distribuição (1) ajusta-se bem aos dados experimentais.

A Figura 1 apresenta o resultado do ajuste para uma das amostras. Nesta figura, o histograma representa a distribuição de tamanhos de grãos medida e a componente da distribuição ajustada correspondente aos dodecaedros aparece como a de menor pico.

3. CONCLUSÃO

O modelo para a reestruturação de micropartículas revelou-se capaz de descrever analiticamente a distribuição de tamanhos de grãos de amostras de UO_2 com adição de teores de até 10% de Gd_2O_3 sinterizadas a $1650^\circ C$ durante 3 e 6 horas.

O presente conjunto de dados adiciona-se a ajustes semelhantes obtidos de modo satisfatório em UO_2 , $(Th,5\%U)O_2$, Al_2O_3 , micropartículas de chumbo em latão recozido e cementita esferoidizada em aço 1080.

Nota

As amostras sinterizadas foram obtidas no IPEN/CNEN e as medidas das distribuições de tamanhos de grãos foram feitas no CDTN/CNEN.

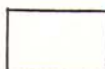


Tabela 1 - Resultado dos Ajustes das Distribuições de Tamanhos de Grãos ao Modelo de Lameiras

Amostra	d_0	λ_g	λ_p	n_g^g	n_p^p	χ^2	Nº de Pontos Experimentais
DU0006	-	-	-	-	-	-	12
DU0503	6,9	$2,79 \times 10^{-3}$	0	0,074	0	0,66	8
DU1003	7,4	$4,85 \times 10^{-3}$	0,0281	0,0706	0,0190	0,39	8
DU0506	7,7	$3,89 \times 10^{-3}$	0	0,0714	0	0,90	7
DU0053	12,6	$2,42 \times 10^{-4}$	$1,54 \times 10^{-3}$	$5,98 \times 10^{-3}$	$7,31 \times 10^{-3}$	0,61	12
DU0056	14,7	$1,18 \times 10^{-4}$	$1,70 \times 10^{-3}$	$3,31 \times 10^{-3}$	$4,12 \times 10^{-3}$	0,59	11
DU0003	13,3	$2,81 \times 10^{-3}$	$1,01 \times 10^{-3}$	$1,32 \times 10^{-3}$	$2,41 \times 10^{-3}$	0,66	12
DU0203	7,0	$1,37 \times 10^{-3}$	0,01	0,0433	0,0113	0,35	10
UE0353	2,1	$5,80 \times 10^{-3}$	0,039	0,221	0,484	1,25	10
UE0056	3,2	$1,33 \times 10^{-3}$	0,0236	0,0625	0,127	0,88	12
UE0053	3,5	$6,11 \times 10^{-4}$	$6,10 \times 10^{-3}$	0,0316	0,0484	0,49	9
UE0306	4,8	$8,92 \times 10^{-3}$	0,1273	0,150	0,122	2,42	10
TC0503	9,6	$1,50 \times 10^{-3}$	$7,91 \times 10^{-3}$	0,0268	0,0116	0,62	8
TC0056	12,8	$3,42 \times 10^{-4}$	$2,34 \times 10^{-3}$	$7,76 \times 10^{-3}$	$5,99 \times 10^{-3}$	0,41	9
TC0053	9,6	$1,50 \times 10^{-3}$	$7,91 \times 10^{-3}$	0,0268	0,0116	0,62	9
TC0506	4,0	$5,54 \times 10^{-3}$	0	$2,79 \times 10^{-3}$	0	0,45	10

OBSERVAÇÕES:

1) Na denominação das amostras, os símbolos alfanuméricos significam:

- os 2 primeiros: procedência do pó de UO_2
- o 3º, 4º e 5º: teor de Gd_2O_3 , p.ex. 035 = 3,5%; 005 = 0,5%
- o 6º: tempo de sinterização em horas

2) Significado dos parâmetros, vide equação (1)



$$\Delta V / V^{\dagger} = 0,0316.d_p^3 \cdot \exp[6,11 \cdot 10^{-4} (3,48 - d_p) \cdot d_p^2] + 0,0484.d_p^3 \cdot \exp[6,10 \cdot 10^{-3} (3,03 - d_p) \cdot d_p^2]$$

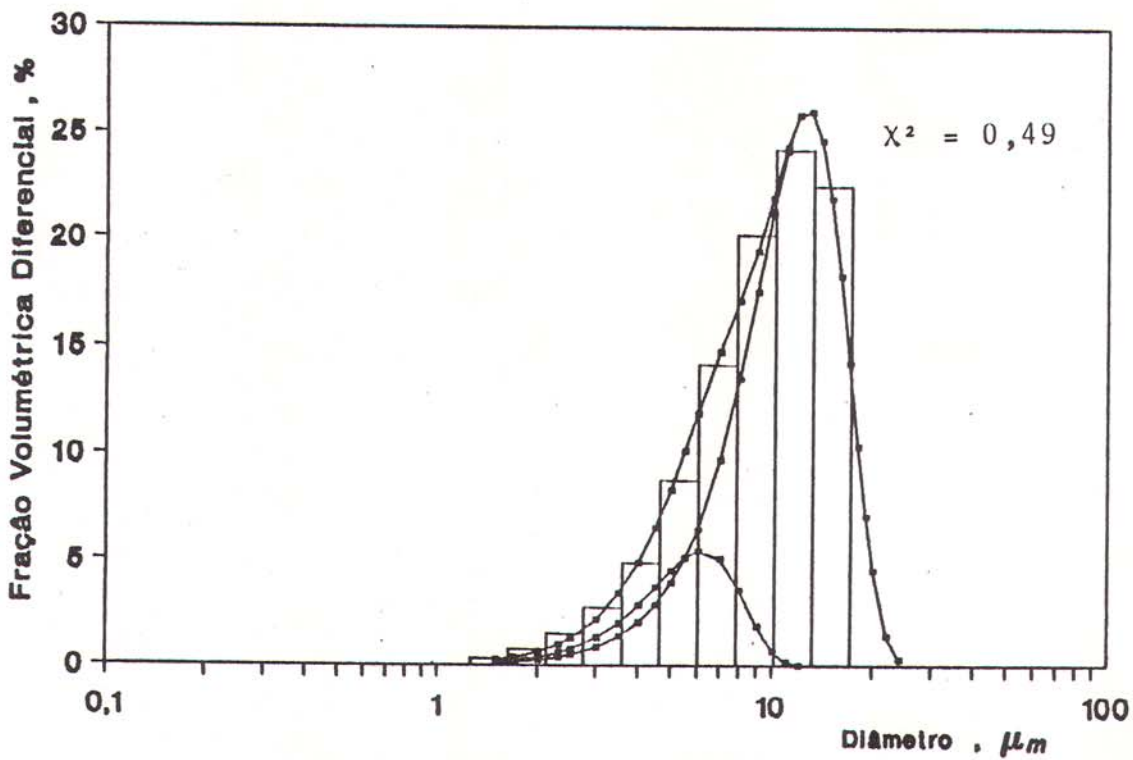


Figura 1 - Distribuição de tamanhos de grãos da amostra UE0053, interpretada conforme o modelo desenvolvido por Lameiras [1, 2, 3, 4, 5 e 6].

4. REFERENCIAS

- [1] LAMEIRAS, F.S. Reestruturação de Micropartículas. Tese de Doutorado. Departamento de Engenharia Metalúrgica e de Minas. Escola de Engenharia da UFMG. Belo Horizonte, junho de 1991.
- [2] LAMEIRAS, F.S. Reestruturação de Micropartículas em Materiais Cerâmicos Nucleares. Parte I: Fundamentos e Distribuição de Tamanhos. Anais do XXXV Congresso Brasileiro de Cerâmica e III Iberoamericano de Cerâmica, Vidro e Refratário. Vol. I, p. 346-353, Belo Horizonte, MG, Brasil, 1991.
- [3] LAMEIRAS, F.S. Reestruturação de Micropartículas em Materiais Cerâmicos e Nucleares. Parte II: Dedução Analítica da Distribuição de Tamanhos Estacionária. Anais do XXXV Congresso Brasileiro de Cerâmica e III Iberoamericano de Cerâmica, Vidro e Refratário. Vol. I, p.354-360, Belo Horizonte, MG, Brasil, 1991.
- [4] LAMEIRAS, F.S. Reestruturação de Micropartículas em Materiais Cerâmicos Nucleares. Parte III: Distribuição de Formas. Anais do XXXV Congresso Brasileiro de Cerâmica e III Iberoamericano de Cerâmica, Vidro e Refratário. Vol. I, p. 361-367, Belo Horizonte, MG, Brasil, 1991.
- [5] LAMEIRAS, F.S. Reestruturação de Micropartículas em Materiais Cerâmicos Nucleares. Parte IV: Evolução. Anais do XXXV Congresso Brasileiro de Cerâmica e III Iberoamericano de Cerâmica, Vidro e Refratário. Vol. I, p. 368-373, Belo Horizonte, MG, Brasil, 1991.
- [6] LAMEIRAS, F.S. - Reestruturação de Micropartículas em Materiais Cerâmicos Nucleares. Parte V - Resultados Experimentais. Anais do XXXV Congresso Brasileiro de Cerâmica e III Iberoamericano de Cerâmica, Vidro e Refratário. Vol. I, p. 374-381, Belo Horizonte, MG, Brasil, 1991.
- [7] LAMEIRAS, F.S. et al. Aplicação do Método de Saltykov para Determinação da Distribuição Volumétrica de Poros e Grãos. Anais do XXXV Congresso Brasileiro de Cerâmica e III Iberoamericano de Cerâmica, Vidro e Refratário. Vol. II, p. 623-630, Belo Horizonte, MG, Brasil, 1991.

