

APLICAÇÃO DA IRRADIAÇÃO DE U_3O_8 POR MICROONDAS NO PROCESSAMENTO DE COMBUSTÍVEIS NUCLEARES

Aldo Furlan Neto*, Clauer Trench de Freitas*, Paulo E.O. Lainetti*

*Coordenadoria de Tecnologia de Combustíveis - MC
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN/CNEN-SP
Travessa R, nº 400, C. Universitária, S. Paulo-SP, CEP 05508-900

ABSTRACT

Preliminary investigations were developed at the IPEN on the technical feasibility of using microwave heating, for obtaining U_3O_8 to be used in fuel plates fabrication. Some modifications were made in a 41 liters microwave oven, in order to improve its thermal insulation and heat transfer characteristics, to allow ceramic materials processing. This furnace operates at 2,45 GHz; waves at such frequency have appreciable interaction with U_3O_8 . Experiments were carried out in a laboratory scale, varying the samples residence time and their total weight per sintering operation, as well as the configuration of the insulation and internal components inside the furnace cavity. The intermediate sintering stage was reached for 360° - 500°C operating temperatures.

1 - INTRODUÇÃO

A utilização da energia carreada por microondas, em processos ligados à indústria cerâmica, ainda se encontra nos estágios iniciais de desenvolvimento, considerando-se seu potencial de aplicação. O crescente interesse no emprego do processamento por meio de microondas, em substituição a processos convencionais já firmemente estabelecidos, decorre de sua capacidade para promover [1]:

- 1 - uma significativa redução de custos de manufatura, pela economia de energia e diminuição nos tempos de processamento;
- 2 - a uniformidade dos produtos e melhores rendimentos no processo;
- 3 - melhorias quanto às propriedades e à microestrutura;
- 4 - a síntese de novos materiais.

As pesquisas quanto à utilização industrial de microondas foram iniciadas em meados de 1940 [2]. Foram utilizadas microondas no tratamento de carvão (remoção de enxofre), reaquecimento de alimentos congelados, na vulcanização de borracha, e na secagem e calcinação de materiais. A viabilidade da sinterização de cerâmicas foi constatada em meados de 1960 pelo pesquisador W.R. Tinga em colaboração com a Universidade de Edmonton [3], no Canadá. No Brasil, as pesquisas nas aplicações de microondas, em atividades diferentes das de comunicações, começaram em meados da década de 70 com os trabalhos do Professor Edvandro Conforte, juntamente com A. Marsaioli

Jr. e T. G. Kiechbusch na Universidade Estadual de Campinas (UNICAMP). No Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), as pesquisas na área de processamento de materiais cerâmicos foram iniciadas na segunda metade da década de 80 [4], por C.T. Freitas.

Na indústria nuclear, a utilização de microondas é particularmente interessante, sendo empregada em escala industrial em algumas aplicações como, por exemplo, o reprocessamento de soluções nítricas mistas de urânio e plutônio [5]. O potencial de utilização de microondas é particularmente interessante em alguns processos do ciclo de fabricação do combustível nuclear, realizados usualmente à temperaturas elevadas, com longo ciclo de duração, e sem controle de atmosfera, como é o caso, por exemplo, da sinterização de pastilhas de U_3O_8 . Estas pastilhas, desintegradas, podem constituir material componente de combustíveis nucleares em reatores de pesquisa; o preparo de U_3O_8 em pó de características adequadas, pode também ser realizado por calcinação de compostos de urânio, em forno de microondas. O processo convencional de sinterização das pastilhas U_3O_8 é relativamente dispendioso, exigindo temperaturas da ordem de 1350°C , em ciclos de aquecimento-resfriamento de cerca de 24 horas. Os fornos para realização do processo são de dimensões relativamente grandes e construídos com materiais dispendiosos, como elementos resistivos de carboneto de silício e alumina de alta refratariedade, entre outros, que implicam numa elevação considerável dos custos de investimento. Pode-se inferir que o emprego dos processos de sinterização e calcinação por microondas traria significativa redução de custos, na produção de alguns tipos de combustíveis nucleares utilizando U_3O_8 .

O objetivo deste trabalho é estudar, a nível de bancada, os fenômenos envolvidos na sinterização de U_3O_8 em um forno de microondas de pequeno porte, com ênfase na densidade atingida. Foram executadas modificações neste forno visando um melhor controle da temperatura de processo e das energias dispendidas.

II - INTERAÇÃO DAS MICROONDAS COM A MATÉRIA

Microondas são ondas eletromagnéticas de alta frequência, cujo espectro varia de 300 MHz a 300 GHz. Estas ondas, que também obedecem às leis da ótica, dependendo do tipo do meio podem ser transmitidas, absorvidas ou refletidas.

As características da interação das microondas com a matéria estão descritas em detalhes na literatura [1,2, 5].

III - PARTE EXPERIMENTAL

O trabalho experimental envolveu algumas alterações em um forno de microondas comercial da marca Sanyo, modelo EM - 9003B. As paredes laterais da cavidade foram perfuradas, para permitir a passagem de um tubo de quartzo. O diâmetro das perfurações foi de 25 mm, utilizando-se um tubo de quartzo com as seguintes dimensões: 1000 mm de comprimento, 24,3 mm de diâmetro interno e 3,32 mm de espessura. Nessas condições, foi possível aquecer pastilhas de U_3O_8 dentro do tubo, o que permitiria utilizar oxigênio puro na sinterização, ou mesmo controlar a atmosfera do processo. Alternativamente, as pastilhas de U_3O_8 podiam ser colocadas dentro de um cadinho de cerâmica. As pastilhas utilizadas foram compactadas sob pressão de $2,5 \text{ t/cm}^2$, a partir do U_3O_8 obtido pela queima de UO_2 em mufla a 400°C , ao ar, durante 4 horas. Nessas condições é possível processar até algumas centenas de gramas de material, numa única operação.

Todas as experiências foram realizadas na potência máxima do forno, igual a 650 W, medida por procedimento descrito na referência [6]. A duração variou de 16 a 30 minutos. Para a avaliação de temperaturas utilizaram-se termopar de cromel-alumel e pirômetro ótico Cyclops 52-Minolta Land. Observe-se que o campo de microondas interage com o par metálico, implicando a necessidade de desligar o forno para que medidas fidedignas pudessem ser efetuadas. As

temperaturas máximas se situaram no limite inferior de leitura daquele pirômetro ótico, de aproximadamente 400°C. Considerados tais fatos, concluiu-se que as temperaturas se situaram no intervalo de 360° a 500°C, com valores médios de 430°C e desvios estimados de 70°C, para todos os ensaios realizados.

Com a finalidade de melhor associar os resultados obtidos com a energia absorvida pelas amostras envolvidas nas experiências, definiu-se como E_{eff} a energia efetivamente absorvida pela unidade de massa do material testado, apresentada em função da potência do forno, do tempo de processamento e de fatores f_A , f_B , f_C , correspondentes à absorção do material das amostras, dos componentes do forno, bem como às fugas. Como a configuração de isolamento das amostras foi mantida constante para as experiências E_3 , E_4 e E_5 , a elas corresponde o valor f_C . Assim, a energia, efetivamente absorvida pela unidade de massa das amostras pode ser estimada pela fórmula:

$$E_{eff} = 0,65 * \Theta * f / m \text{ [kWh/g]} \quad (1)$$

ou

$$E_{eff} = 2,3 * 10^6 * \Theta * f / m \text{ [J/g]} \quad (2)$$

com Θ = tempo de processamento em horas, f = fator de absorção (adimensional), m = massa em gramas e temperatura média constante de $(430 \pm 70)^\circ\text{C}$.

Os resultados das 5 experiências realizadas (E_1 a E_5) são apresentados nas tabelas 1 e 2 seguintes.

TABELA 1 - Características Iniciais e Finais de Pastilhas de U_3O_8 Sinterizadas em Forno de Microondas (os valores** são as médias para cada grupo de pastilhas).

Exper	Tempo [minuto]	Observ.	m_v [grama]	m_s [grama]	D_v [g/cm^3]	D_s [g/cm^3]	$D_v\%$ [%]	$D_s\%$ [%]
E ₁	30	Em cad. alumina 4 past.	1,93	1,82	4,00	5,04	48,2	60,7
E ₂	30	Em cad. alumina 4 past *	1,99	1,95	4,00	5,16	48,2	62,2
E ₃	16	Em tubo quartzo 3 past.	1,99	1,96	3,99	4,39	48,0	52,9
E ₄	30	Em tubo quartzo 4 past.	1,99	1,95	4,03	4,61	48,6	55,5
E ₅	30	Em tubo quartzo 3 past.	1,99	1,95	4,01	4,67	48,3	56,3

*pastilhas envolvidas em manta de FIBERFRAX

** $D_v, D_s, D_v\%, D_s\%$ → valores médios das densidades antes (D_v) e após a sinterização (D_s); as percentagens tem como referência o valor máximo da densidade do $U_3O_8 = 8,30 \text{ g}/\text{cm}^3$ [7].

TABELA 2 - Energias Envolvidas nas Experiências de Sinterização, por Grama de Amostra, Multiplicadas pelos Fatores de Absorção f_A , f_B e f_C .

Experiências	Fator de absorção [adimensional]	Energia*Fator de absorção[J/g]
E ₁	f_A	$160 \cdot 10^3 \cdot f_A$
E ₂	f_B	$150 \cdot 10^3 \cdot f_B$
E ₃	f_C	$110 \cdot 10^3 \cdot f_C$
E ₄	f_C	$150 \cdot 10^3 \cdot f_C$
E ₅	f_C	$200 \cdot 10^3 \cdot f_C$

A Figura 1 mostra o relacionamento de E_{eff}/f com as densidades médias percentuais obtidas nas várias experiências.

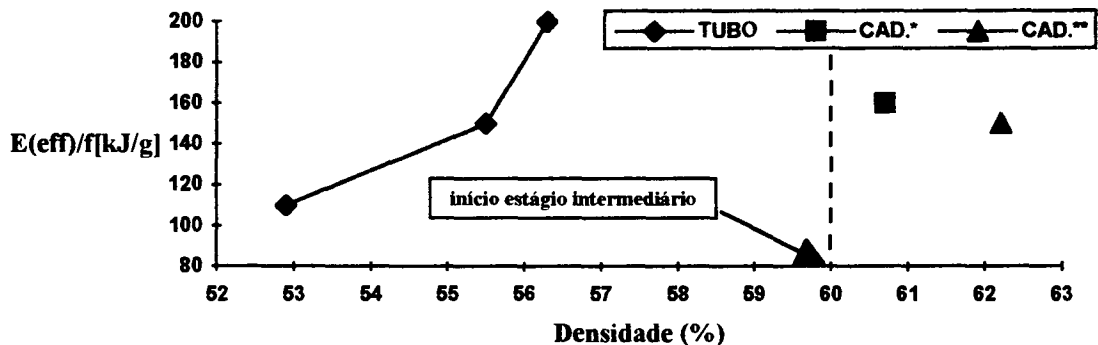


Figura 1 - Energia Efetiva / Fator de Absorção / Massa da Amostra para as Configurações do Forno vs. Densidades Finais. Observação - TUBO → Pastilhas Envolvidas por Manta de FIBERFRAX, em Mufla Cilíndrica de Quartzo; CAD.* → Cadinho com Pastilhas sem Isolamento de FIBERFRAX; CAD.** → Cadinho com Pastilhas com Isolamento de FIBERFRAX.

Conforme era de se esperar, nota-se que as maiores energias, efetivamente absorvidas, correspondem às maiores densidades, para as experiências E₃, E₄ e E₅, nas quais o fator de absorção é constante. Já os valores correspondentes a E₁ e E₂ dão maiores densidades para E₂, em que as perdas foram menores devido ao fato de as pastilhas terem um envolvimento adicional de FIBERFRAX. Cumpre, todavia, observar que essas conclusões devem ter caráter preliminar e semi-quantitativo, dado ao fato de terem sido realizadas 5 experiências, número pequeno que impediu maior rigor na avaliação estatística dos dados. As experiências E₁ e E₂ resultaram em densidades finais superiores a 60%; de acordo com Coble [8] a sinterização nesse caso atingiu o estágio intermediário do processo, enquanto as demais se mantiveram no estágio inicial. Como as temperaturas alcançadas não superaram 500°C, isso era de se esperar; os valores relativamente altos das densidades finais seriam surpreendentes, não fosse o fato da sinterização ter-se desenvolvido em condições anisotérmicas, bastante favoráveis [9].

IV - CONCLUSÕES

1 - Foi possível atingir o estágio intermediário de sinterização. A massa relativamente pequena das amostras, em cada ensaio, não permitiu que se atingisse a temperatura necessária ao estágio final do processo.

2 - A transferência de energia para as amostras é fortemente influenciada pela configuração de isolamento das amostras.

3 - As modificações efetuadas na configuração de isolamento permitem perfeitamente operar com quantidades maiores de U_3O_8 .

4 - Os resultados obtidos, indicam ser possível processar óxidos de urânio em quantidades de até algumas centenas de gramas, em pequenos fornos de microondas, ao ar, ou mesmo em atmosferas controladas. Por conseguinte, o equipamento e o procedimento adotados, tem considerável potencial de aplicação em escala semi-industrial.

V - AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem à Fundação Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES) e ao Dr. Professor Luiz Filipe C.P. de Lima pelo apoio que deram ao desenvolvimento deste trabalho, em suas fases iniciais.

VI - REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

[1] SUTTON, H. WILLARD. Microwave processing of ceramic materials. American Ceramic Society Bulletin, v.68, n.2, p.376-386, 1989.

[2] NEAS, E. O., COLLINS, M. J. Microwave heating theoretical concepts and equipment design. In: Kingston, H.M., Jassie, L.B., eds. Introduction to microwave sample preparation. Washington, DC., American Chemical Society, 1988. p.7-32.

[3] DAS, S., CURLEE, T. R. Microwave sintering of ceramics: can we save energy?. American Ceramic Society Bulletin, v.66, n.7, p.1093-1094, 1987.

[4] FREITAS, C. T. Processamento de cerâmicas avançadas utilizando tratamentos térmicos por microondas. In: SECRETARIA ESTADUAL DO RIO DE JANEIRO - SECTEC/RJ. Cerâmicas Avançadas: anais do 2º Encontro Estadual sobre Novos Materiais, realizado no Rio de Janeiro, 2-4 agosto, 1989. Rio de Janeiro, 1989. p.219-233.

[5] KOIZUMI, M., OHTSUKA, K., ISAGAWA, H., AKIAMA, H., TODOKORO, A. Development of a process for the co-conversion of Pu-U nitrate mixed solution to mixed-oxide powder using a microwave heating method. Nuclear Technology, v.61, p.55-70, abril 1983.

[6] Manual de serviço do forno de microondas da Sanyo, modelo EM-9003B.

[7] WEAST, R.C., ASTLE, M.J., BEYER, W.H. CRC Handbook of chemistry and physics 64.ed. Boca Raton, Flórida: CRC Press, 1973. p.B-153.

[8] COBLE, R. L. Sintering crystalline solids: I. Intermediate and final stage diffusion models. Journal of Applied Physics, v.32, n.5, p.787-792, 1961.

[9] KUCZYNSKI, G.C. Towards the understanding of the process of sintering. In: Kuczynski, G.C., Uskokovic, D.P., Palmour III, H., Ristic, M.M., eds. Sintering'85. New York, N.Y., Plenum Press, 1986. p.3-16.