

## **RELAÇÃO ENTRE VARIÁVEIS DE PROCESSO E AS CURVAS DE COMPACTAÇÃO E MICROESTRUTURAS OBTIDAS.**

Santos A. A; Christie, C.M Maruyama N. H.; Genova L. A.  
Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN.  
Av. Prof. Lineu Prestes, 2242, cep 05508-000, São Paulo, Brasil.

### **RESUMO**

*O processo de conformação por prensagem uniaxial é um dos mais utilizados na indústria cerâmica devido ao seu baixo custo e alta produtividade. O entendimento e controle dos diversos fatores que interferem neste processo é crucial pois grande parte dos defeitos encontrados na peça final são originados nesta etapa. Partindo-se de pós processados em spray-dryer, de diferentes composições a base de alumina e contendo diferentes aditivos orgânicos, variou-se parâmetros como distribuição de tamanho, umidade e temperatura de grânulos, avaliando-se as características dos corpos obtidos, por meio de curvas de compactação e microestrutura. Constatou-se que estes parâmetros interferem nas características dos compactados, particularmente na resistência dos grânulos a deformarem e/ou fraturarem.*

Palavras-chave: curvas de compactação, alumina, ligantes, prensagem.

### **INTRODUÇÃO**

A conformação de peças cerâmicas por prensagem uniaxial de material granulado é amplamente utilizada no setor produtivo por proporcionar alta produtividade, automatização e por permitir a confecção de peças com tamanho e geometrias variadas<sup>(1)</sup>. Consiste em se preencher a cavidade de um molde rígido com o material granulado e aplicar uma pressão uniaxial até que o corpo atinja densidade e resistência mecânica adequadas para a sua extração do molde, manuseio e posterior etapa de sinterização. O processo de compactação dos grânulos pode ser dividido em três estágios:

Estágio 1: ocorre o empacotamento e rearranjo dos grânulos, reduzindo o volume de poros intergranulares; esta etapa vai do início do processo (densidade solta) até a pressão de compactação que seja suficiente para dar início à

deformação ou fratura dos grânulos. Esta pressão que separa os estágios 1 e 2 é definida como a ponto de escoamento ( $P_y$ );

Estágio 2: os grânulos são deformados plasticamente e/ou fraturados, ocorrendo a redução contínua do tamanho e volume dos poros intergranulares; neste estágio ocorre a maior parte da compactação dos pós, e o mesmo termina com a completa eliminação destes poros intergranulares, sendo que os poros intragranulares permanecem praticamente inalterados. A pressão correspondente a este ponto de eliminação da porosidade intergranular é definida como ponto de junção ( $P_j$ ). Neste ponto, o grau de compactação do corpo se torna idêntico ao grau de compactação dos grânulos.

Estágio 3: Neste estágio teoricamente não há mais porosidade intergranular. O aumento da densificação é pequeno, ocorrendo com a eliminação da porosidade intragranular, pelo deslizamento, rearranjo e possível fratura das partículas. <sup>(2,3)</sup>

Na figura 1 é apresentado um esquema mostrando grânulos empacotados, indicando a porosidade intergranular e a porosidade intragranular e na figura 2 é apresentado um exemplo de curva de compactação, que relaciona a pressão aplicada com a respectiva densidade a verde do compactado. Nesta figura são indicados os dois importantes pontos citados anteriormente, que delimitam os diferentes estágios da compactação: o ponto de escoamento e a ponto de junção<sup>(3)</sup>.

Durante a compactação pode ser criado um grande número de defeitos que persistirão nas etapas seguintes do processamento, comprometendo o desempenho da peça na sua aplicação final. Portanto é fundamental a compreensão detalhada do processo de compactação, de como atuam e interferem as diferentes variáveis envolvidas, com o intuito de se obter corpos homogêneos e densos, e com o mínimo de defeitos<sup>(4)</sup>. A prensagem é influenciada por diversas características dos grânulos como distribuição de tamanho, resistência à deformação ou à fratura, densidade e empacotamento de partículas e aditivos orgânicos adicionados (ligantes, plastificantes e lubrificantes). Estes aditivos exercem um papel de primeira importância no processo, afetando diretamente as pressões de escoamento e de junção, e com isso a homogeneidade do compactado<sup>(5)</sup>. O lubrificante é responsável pela redução do atrito entre as partículas e entre estas e a parede do molde, de forma que contribui para a redução do gradiente de densidade ao longo da peça, e também reduz o desgaste da matriz metálica. O ligante é responsável pela resistência mecânica da peça a verde, além de também interferir na resistência mecânica dos grânulos, e deslizamento entre as partículas<sup>(6)</sup>. Seu peso molecular e

sua temperatura de transição vítrea ( $T_g$ ) afetam significativamente nas características do compactado. O ideal é que a temperatura na qual os grânulos são prensados esteja acima da  $T_g$  do ligante, e assim suas cadeias estejam suficientemente flexíveis e deformáveis para permitir a movimentação entre as partículas, com a consequente deformação e fratura dos grânulos. Cadeias poliméricas rígidas, (abaixo de  $T_g$ ) dificultam este deslocamento das partículas, dificultando a densificação dos grânulos<sup>(7)</sup>.

A temperatura de transição vítrea de um polímero é afetada por diversos fatores: no caso específico do álcool poli-vinílico (PVA), um ligante amplamente utilizado na indústria cerâmica, a  $T_g$  é afetada, entre outros, pelo peso molecular, pela umidade e pela presença de polietileno glicol (PEG), um eficiente plastificante que reduz a  $T_g$  do PVA<sup>(8)</sup>.

Neste trabalho, partindo de composições a base de alumina, granuladas por secagem em spray-dryer, foram obtidas curvas de compactação variando-se os aditivos orgânicos, a resistência mecânica dos grânulos, a umidade e a temperatura.

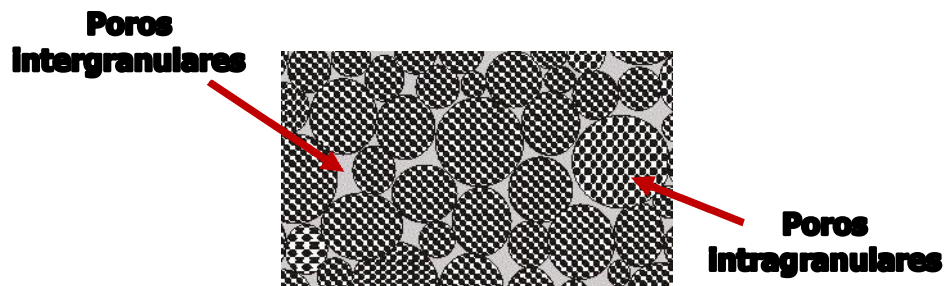


Figura 1 – Esquema de empacotamento de grânulos indicando os poros intergranulares e os intragranulares.

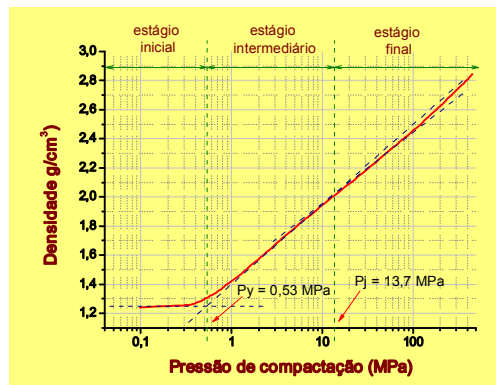


Figura 2 – curva de compactação de um pó cerâmico granulado, indicando os três estágios da compactação e as pressões que delimitam estes estágios, a de escoamento ( $P_y$ ) e a de junção ( $P_j$ ).

## **MATERIAIS E MÉTODOS**

Neste estudo foram utilizados 4 pós cerâmicos comerciais, secos em spray-dryer, a base de alumina, sendo dois destes pós, A8 e A15, de formulação idêntica, tanto no que se refere às matérias-primas (composição contendo 92% em massa de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\rho = 3,90 \text{ g/cm}^3$ ), quanto aos aditivos orgânicos (1,0% em peso de PVA e 2,0% em peso de PEG-6.000), mas com distribuição de tamanhos e densidade de grânulos diferentes; os outros dois pós, AZ1 e AZ2, com mesma formulação de matérias-primas (composição contendo 92% em massa de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\rho = 4,00 \text{ g/cm}^3$ ), mas diferentes composições de aditivos orgânicos (porcentagem em peso, AZ1: 1,5% PEG 6.000 + 2% PEG 20.000 e AZ2: 2% PVA + 1,5% PEG 6.000 + 0,5% PEG 20.000). Com isso pode-se avaliar o efeito das características físicas dos grânulos (distribuição de tamanhos, densidade, empacotamento, resistência ao esmagamento), assim como dos aditivos orgânicos, no comportamento destes materiais durante a compactação. Estes pós foram caracterizados quanto à fluidez e densidade solta (Hall Flowmeter AcuPowder International, LLC, segundo a norma ASTM B 213-3 e B-873-01), e distribuição de tamanho de grânulos (por retenção em peneiras).

Foram compactados utilizando-se matriz de diâmetro 12 mm, confeccionadas em metal duro, aplicando-se uma fina camada de ácido esteárico como lubrificante das paredes internas e punções, de forma a se reduzir o efeito do atrito. A compactação se deu em máquina de ensaio universal Instron 4400 R, controlada por software específico, a uma velocidade deslocamento constante do punção, de 2 mm/minuto, com pressão de compactação máxima de até 400 MPa.

Antes da compactação os pós foram mantidos por 24 horas em ambiente com umidade relativa controlada, em três diferentes níveis: 10% (controle por sílica gel), 64% (controle por solução saturada de de nitrato de amônio) e 85% (controle por solução saturada cloreto de potássio). Os pós contendo diferentes teores de umidade foram compactados a diferentes temperaturas. Para tanto o sistema de prensagem já montado (matriz contendo o pó em sua cavidade) foi mantido em temperatura constante por no mínimo 2 horas, até atingir o equilíbrio. Foram compactados a 5 °C (sistema mantido em refrigerador), 25 °C (temperatura ambiente) e 45 °C (sistema mantido em estufa).

Os dados obtidos com os ensaios de compactação permitiram a construção de curvas contínuas relacionando a compactação dos pós (a variação da densidade ou

da porosidade) com a pressão aplicada. A partir destas curvas de compactação pode-se avaliar os diferentes fenômenos que ocorrem durante a compactação, e o efeito das diferentes variáveis estudadas no processo.

Foram realizadas ainda compactações sob pressões intermediárias, com as superfícies de fraturas destes compactados observadas em microscópio eletrônico de varredura, avaliando-se desta forma a evolução microestrutural dos compactados.

## RESULTADOS E DISCUSSÃO

Na tabela 1 são apresentadas as características dos pós estudados quanto à fluidez e densidade solta, e na figura 3 são apresentadas as curvas de distribuição de tamanho dos grânulos, obtidas por retenção em peneiras. Os valores apresentados são a média de ao menos três experimentos. Observa-se que em relação aos pós A8 e A15, o primeiro apresenta maior densidade solta, indicando que seus grânulos são mais densos, já que o outro fator que contribuiria para esta maior densidade solta, o maior empacotamento pela distribuição tamanho de grânulos, favoreceria o pó A15 cuja distribuição é mais aberta. Para confirmar isso, foi realizado ensaio com o pó A8 de distribuição de tamanho de grânulos similar a A15 (por meio da mistura de frações granulométricas retidas em peneira), sendo que esta mudança na distribuição de tamanho de grânulos não interferiu no resultado tanto de fluidez quanto de densidade solta; assim confirma-se que os grânulos de A8 são mais densos, e que a diferença de distribuição de tamanho de grânulos entre estes dois pós não é significativa para interferir na fluidez e na densidade solta.

*Tabela 1: Fluidez e densidade solta dos pós estudados, sob as seguintes condições: após repouso em umidade relativa a 64% e temperatura de 25 °C.*

<b>Amostra</b>	<b>A8</b>	<b>A15</b>	<b>AZ1</b>	<b>AZ2</b>
<b>Fluidez (minutos)</b>	<b>1:03:2</b>	<b>1:10:0</b>	<b>01:06:</b>	<b>01:05:</b>
	<b>0</b>	<b>0</b>	<b>4</b>	<b>9</b>
<b>Densidade solta (% de <math>\rho</math>)</b>	<b>29,2</b>	<b>27,9</b>	<b>29,3</b>	<b>28,8</b>

Os grânulos de AZ1 e AZ2 apresentaram, inesperadamente, fluidez e densidade solta bastante similares. Pela figura 4, micrografias dos grânulos obtidas por estereoscópio, constata-se que AZ2 possui um grande número de pequenos grânulos aderidos à superfície dos grânulos maiores. Estes pequenos grânulos, os

chamados satélites, a maior fração de finos de AZ2 (figura 3), dificultam a fluidez e o empacotamento dos pós, o que não foi observado nos ensaios realizados.

As micrografias dos pós indicam que todos têm, em maior ou menor grau, a presença significativa de grânulos com defeitos do tipo “donuts”, o que pode acarretar em aumento nos defeitos de compactação.

Na figura 5-a tem-se um exemplo de curvas obtidas com o ensaio de compactação na máquina Instron, onde se relaciona a pressão de compactação aplicada com a correspondente densidade a verde. Estas curvas foram construídas considerando-se a deformação elástica do sistema (máquina de ensaio e punções da matriz) que foi obtida por meio de ensaio de compactação com a matriz vazia, ou seja, com punção contra punção.

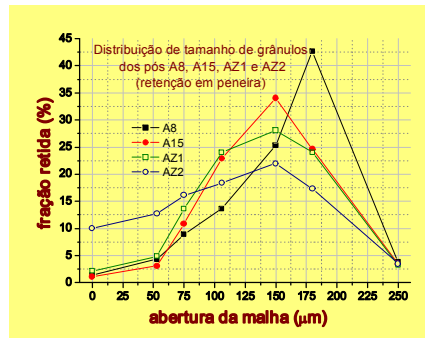


Figura 3- Distribuição do tamanho de grânulos em peneiras dos pós utilizados neste estudo.

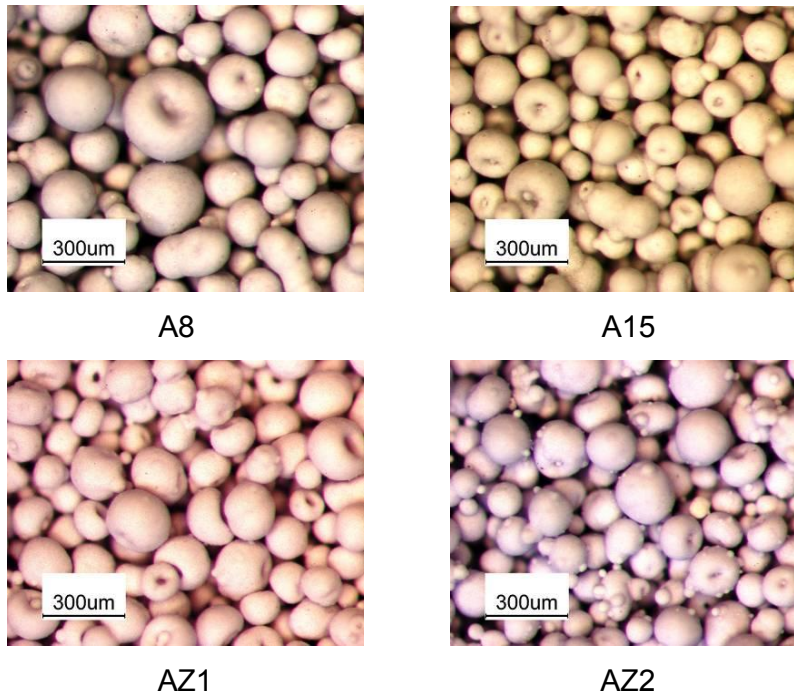


Figura 4- Micrografias dos grânulos estudados, observados por estereoscópio.

Curvas de compactação fornecem de uma forma simples, os valores de densidade solta dos pós e o ponto de escoamento ( $P_y$ ). Já o ponto de junção ( $P_j$ ) será discutida em trabalho futuro. No exemplo da figura 5 é possível constatar que a composição A8 apresenta, nas condições empregadas neste ensaio (umidade relativa de 64% e temperatura de 25 °C), maior densidade solta (grânulos mais densos) e menor  $P_y$  que A15, o que será discutido em detalhes mais adiante. Na figura 5-b tem-se um detalhe da curva anterior, indicando como são determinados os valores  $P_y$  dos grânulos. Foram obtidas curvas de compactação para os quatro pós estudados, e em todas as condições de umidade e temperatura descritas anteriormente.

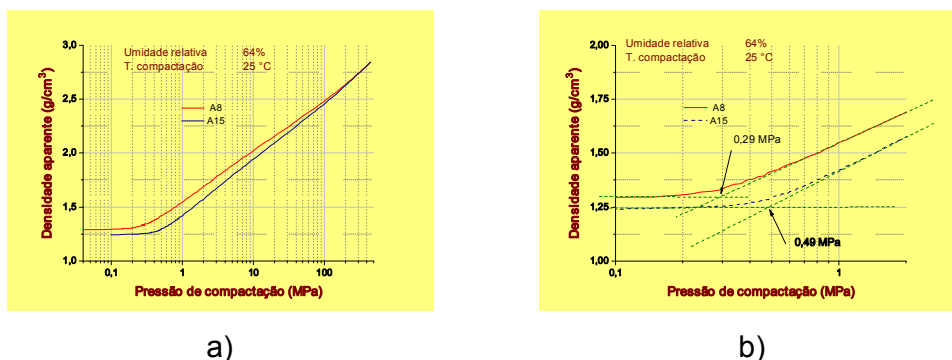


Figura 5 - a) Curva de compactação para os pós A8 e A15, mantidos em ambiente com umidade relativa de 64% e temperatura de compactação de 25°C. Em b) é mostrado detalhe da curva indicando a forma como se estima o valor de  $P_y$ .

A partir das curvas de compactação obtidas pode-se avaliar o efeito dos parâmetros estudados na densificação dos diferentes pós e na resistência à deformação ou à fratura dos grânulos. A figura 6 apresenta como estes parâmetros afetam a resistência dos grânulos, a partir dos valores de  $P_y$  encontrados. A primeira constatação é que a resistência dos grânulos, independente da sua densidade ou do ligante utilizado, é afetada tanto pela umidade adsorvida quanto pela temperatura. Para todas as condições empregadas nestes ensaios, quanto maior a temperatura ou a umidade relativa, menor o valor de  $P_y$  encontrado e, portanto, menor a resistência mecânica dos grânulos.

Comparando-se os pós A8 e A15, tem-se que os grânulos deste último apresentam  $P_y$  levemente superior que os de A8, particularmente nas condições mais adversas de compactação (baixa umidade e baixa temperatura). Para as condições opostas estes valores tendem a ser idênticos.

A figura 7 mostra a evolução da densidade relativa com a pressão de compactação para as condições extremas de temperatura e umidade utilizadas

neste estudo (temperatura de 5 °C com umidade relativa de 10%, e temperatura de 45 °C com umidade relativa de 85%). Constata-se que os pós A8 e A15 atingem valores de densidade muito semelhantes na condição de temperatura e umidade mais baixas. Já na outra condição, os dois pós densificaram mais, como era esperado, com A8 atingindo densidade ligeiramente superior a A15. Pelos grânulos de A8 serem mais densos, esperava-se o inverso, ou seja que A15 atingisse maior densidade a verde. Possivelmente a diferença de densidade de grânulos não seja suficientemente significativa para se sobrepôr a outros fatores que afetam o comportamento dos grânulos sob compactação, sendo necessárias outras investigações, como por exemplo, quanto às características da porosidade destes grânulos. De todo modo as curvas indicam que ambos os pós têm comportamento influenciado pelas condições de compactação, atingindo maiores densidades quando compactados em temperaturas e/ou umidades maiores, ou seja, em condições nas quais o ligante se encontra acima de sua  $T_g$ .

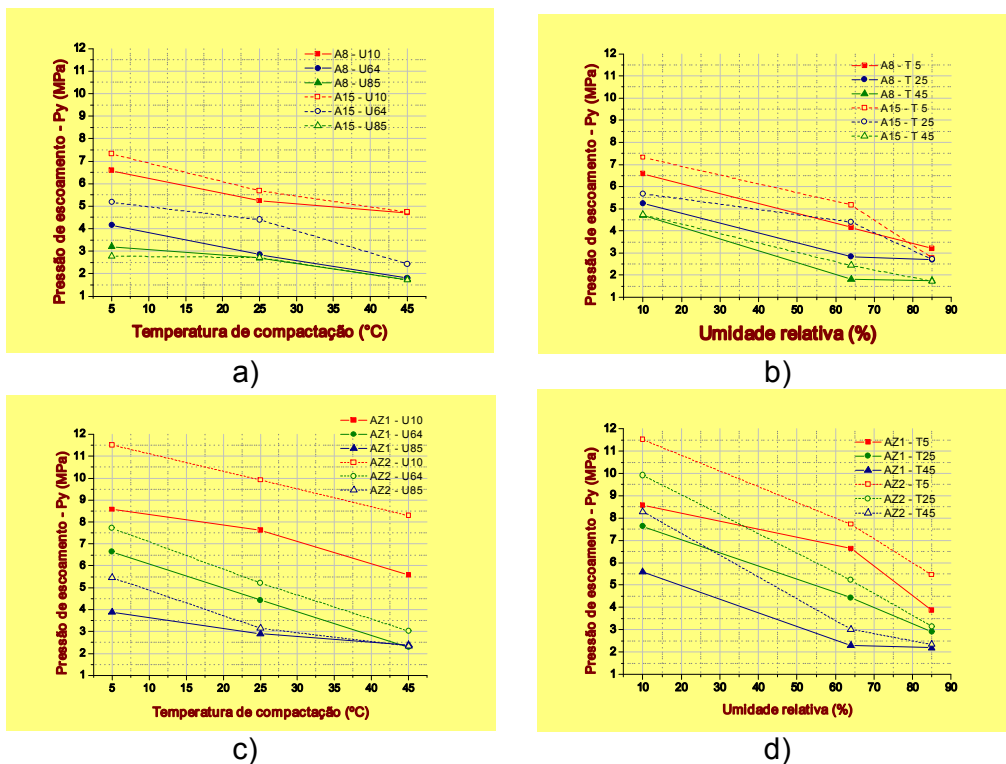


Figura 6- Efeito da temperatura de compactação (a) e da umidade relativa (b) na pressão de escoamento das composições A8 e A15, (c) e (d) respectivamente para os pós AZ1 e AZ2.

Comparando-se os pós AZ1 e AZ2 observa-se que os grânulos de AZ2 apresentam maior valor de  $P_y$ , sugerindo maior resistência à deformação ou fratura. Isto se dá por AZ1 apresentar como aditivo orgânico, apenas o PEG, um

plastificante que não oferece resistência à movimentação das partículas. Quanto ao desenvolvimento da densidade com a pressão, figura 7, estes pós apresentam comportamento similar aos pós A8 e A15, ou seja, de um modo geral não se observa diferenças significativas entre os mesmos no que refere à densidade e pressão aplicada. No entanto, na condição de menor umidade, baixa temperatura, e baixas pressões de compactação, AZ1 apresenta uma tendência à maior densidade, o que é coerente com a presença de PEG nos grânulos.

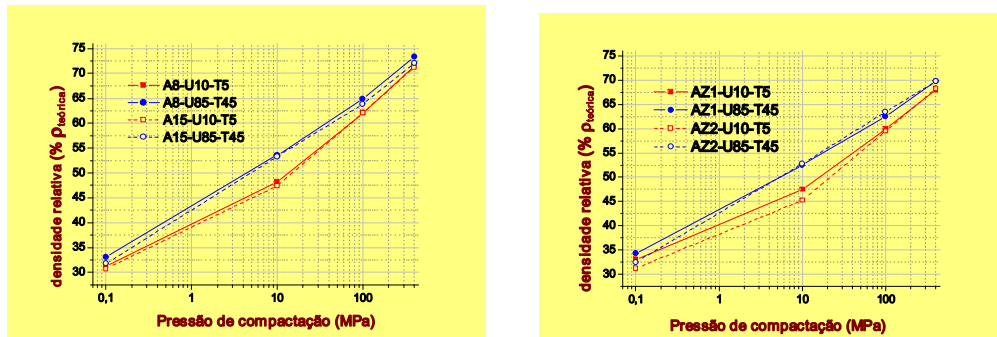


Figura 7 – Densidade versus pressão de compactação, nas condições de umidade e temperatura extremas empregadas, para os pós estudados: a) A8 e A15 e b) AZ1 e AZ2.

Corpos de prova foram compactados em diferentes pressões, sob condições intermediárias de temperatura e umidade (umidade relativa de 64%, a 25 °C), tendo suas superfícies de fratura observadas por microscopia eletrônica de varredura. Desta forma pode-se acompanhar a deformação e fratura dos grânulos, avaliando-se a deformação ou fratura dos grânulos com o aumento da pressão de compactação. Na figura 8 são mostradas estas superfícies de fratura para os quatro pós estudados, após compactação a 5, 7,5 e 10 MPa. Por essas micrografias é possível observar o empacotamento, a deformação plástica e a fratura dos grânulos. As micrografias sugerem que os grânulos de A8, mais densos, tendem preferencialmente a fraturar sob pressão, ao passo que os grânulos de A15 experimentam maior deformação plástica antes da fratura. Este comportamento, apesar de coerente com a maior densidade dos grânulos necessita ser melhor analisado, e relacionado com as curvas de densidade versus pressão.

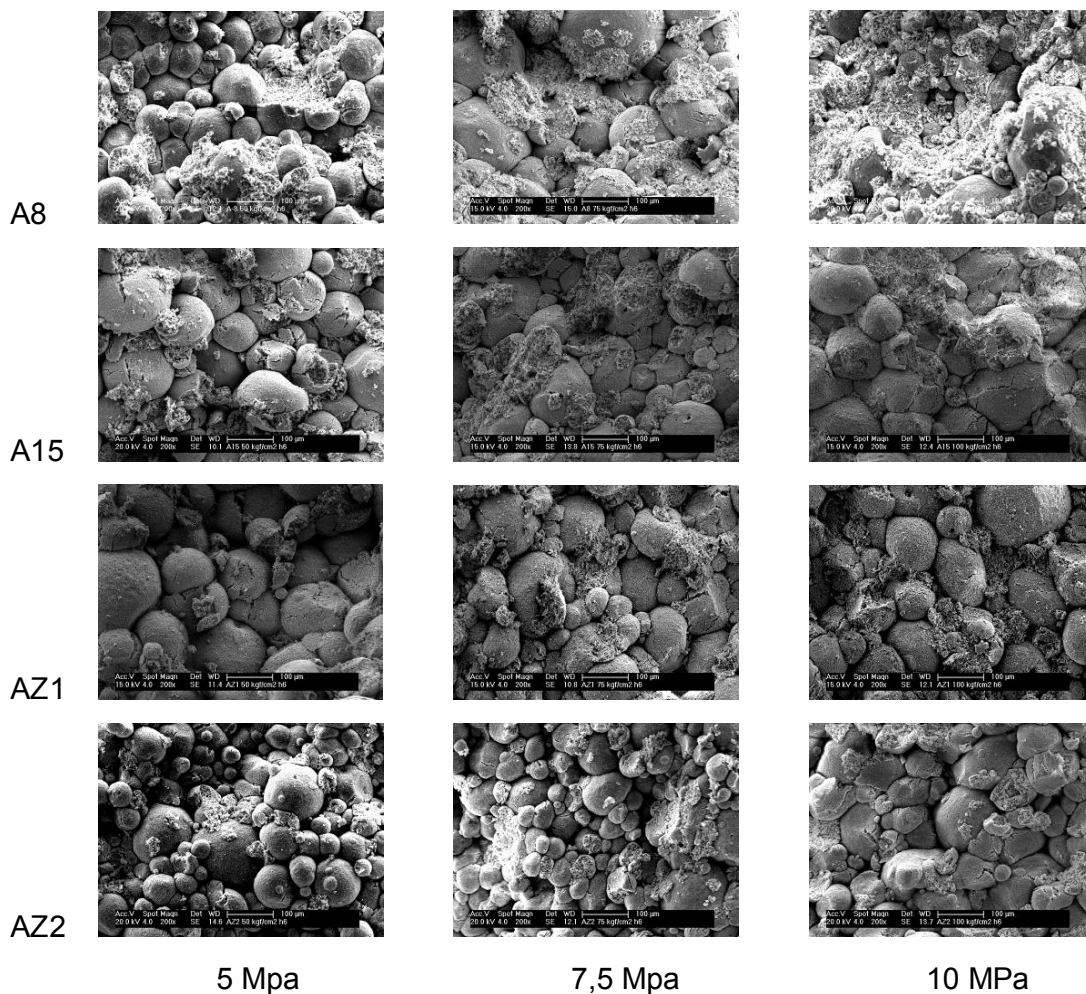


Figura 8 – Micrografias obtidas por MEV de superfícies de fraturas dos pós estudados, compactados a 5, 7,5 e 10 MPa.

Para as três pressões de compactação apresentadas, os grânulos de AZ1 e AZ2 se encontram mais intactos que os grânulos A8 e A15, indicando uma maior dificuldade de serem fraturado. Comparando-se AZ1 e AZ2, cuja diferença é a composição de ligantes, as micrografias sugerem, para as condições e pressões empregadas, que os grânulos de AZ1 deformam e fraturam mais que os de AZ2. As curvas de compactação indicam que nesta faixa de pressão, AZ1 densifica mais que AZ2, prevalecendo a plasticidade do PEG em AZ1. Certamente AZ1, apesar de mais denso, deverá apresentar menor resistência mecânica a verde que AZ2, o que deverá ser averiguado nos estudos posteriores.

## CONCLUSÕES

Os ensaios de compactação em máquinas de ensaio universal permitiram uma avaliação detalhada do comportamento dos pós cerâmicos granulados em spray-dryer durante a compactação. As curvas de compactação obtidas fornecem de uma

forma simples, informações importantes relacionadas ao comportamento dos grânulos.

O comportamento mecânico dos grânulos e a densificação dos pós foram afetados tanto pela umidade adsorvida quanto pela temperatura de compactação. Para todas as condições empregadas, quanto maior a temperatura ou a umidade relativa, menor o valor de  $P_y$  encontrado e, portanto menor a resistência mecânica dos grânulos. A maior temperatura e umidade também promoveram maior densidade a verde em todos os pós estudados, particularmente em pressões de compactação intermediárias (entre 10 e 100 MPa), as mais utilizadas na produção de peças pela indústria. Isto demonstra que a temperatura de transição vítrea dos orgânicos empregados tem papel preponderante na compactação, influenciando na densidade a verde dos compactados.

Os grânulos mais densos de A8, em comparação a A15, nas condições estudadas não interferiram na densificação do material, apresentando inclusive, menor valor de  $P_y$ , o que não era de se esperar.

Os grânulos de AZ1 apresentaram menor valor de  $P_y$  que AZ2, indicando a menor resistência devido ao uso de PEG como ligante. Esta menor resistência dos grânulos de AZ1 proporcionaram, nas condições de compactação mais drásticas (menor umidade e baixa temperatura) maior densificação do compactado para as pressões iniciais, até 100 MPa, quando então esta diferença de densidade deixou de existir.

## **BIBLIOGRAFIA**

(1) Amorós, J.L.A.

A operação de prensagem: considerações técnicas e sua aplicação industrial. Parte I: O preenchimento das cavidades do molde. Cerâmica Industrial, v 5, n.5, p. 23-28. Setembro/Outubro, 2000.

(2) Amorós, J.L.A.

A operação de prensagem: considerações técnicas e sua aplicação industrial. Parte II: A compactação. Cerâmica industrial., v 5, n.6, p.14-20. Novembro/dezembro, 2000.

(3) Mort, P.R; Sabia, R; Niesz, D.E; Riman, E.

Automated generation and analysis of powder compaction diagrams. Powder technology. v 79, p.111-119. (1994)

(4) Amorós, J.L.A; Cantavella, V; Jarque, J.C; Felú, C.

Green strength testing of pressed compacts: an analysis of the different methods. Journal of the European Ceramic Society., v 28, p.701-710. (2008)

(5) Amorós, J.L.

A operação de prensagem: Considerações técnicas e sua aplicação industrial. Parte III: variáveis do processo de compactação. Cerâmica industrial, v 6, n.1, p.15-23., 2001.

(6) Uppalapati, M.; Green, J.D.

Effect of external lubricant on mechanical properties of dry-pressed Green bodies. J. Am. Ceram. Soc., v 88, n.6, p.1397-1402. (2005).

(7) Balasubramanian, S.; Shanefield, D.J.; Niesz, D.E.

Effect of externally applied plasticizer on compaction behavior of spray-dried powders. J. Am. Ceram. Soc., v 85, n.4, p. 749-754. (2002)

(8) Reed. J.S. Plasticizers, foaming and antifoaming agents, lubricants, and preservatives. In: Reed. J.S.

Principles of Ceramics Processing – second edition. Winley inter-science, 1995. p. 201-211.

(9) Medeiros, A.C.S.

Preparo e uso de soluções Salinas saturadas para a caracterização fisiológica de sementes florestais. In: Circula técnica 125, Colombo, PR, 2006. Disponível em: [www.cnpf.embrapa.br/publica/circtec/edicoes/circ-tec125.pdf](http://www.cnpf.embrapa.br/publica/circtec/edicoes/circ-tec125.pdf). Acesso em: 16 de maio de 2011.

## **RELATIONSHIP BETWEEN VARIABLES OF PROCESS AND COMPACTION CURVES AND MICROSTRUCTURE RESULTS.**

### **ABSTRACT**

The process of pressing in uniaxial direction that's most useful in ceramic industry because low cost and high production. The understand and control of many factors involved in process of pressing is crucial because wide defects in parts starts in this stage. Start with spray-dryer powder of different compositions with alumina and some different organics additives, change parameters like distribution of size, humidity, temperature of granules, analyze the characteristics of part obtained, by the compaction curves and microstructure. It was found that parameters interfere in characteristics of compacts, mainly in granule strength at deform or fracture.

Key-words: compaction-curves, alumina, binders, pressing.