

# EMPREGO DA RADIOATIVAÇÃO NA MEDIDA DA EFICIÊNCIA DO MISTURAMENTO DE ARGILAS PARA REFRAATÓRIOS <sup>(1)</sup>

PEDRO E. AUN <sup>(2)</sup>

MARCIUS T. MAGALHÃES <sup>(3)</sup>

## RESUMO

*Os Autores, do quadro técnico do Instituto de Pesquisas Radioativas da Escola de Engenharia da Universidade de Minas Gerais, em Belo Horizonte, apresentam uma aplicação da radioativação no controle de uma operação industrial na fábrica de refratários da Magnesita S/A., em Contagem, MG.*

## 1. INTRODUÇÃO

A finalidade do presente trabalho é apresentar os primeiros resultados da determinação do tempo ótimo de misturamento dos materiais sílico-aluminosos usados no fabrico de tijolos refratários pela Magnesita S/A. Para melhoria das características dos tijolos, é necessária a perfeita homogeneização de seus constituintes antes da moldagem e do cozimento. Por outro lado, um misturamento excessivo conduz a gastos desnecessários de energia e à diminuição da produtividade industrial.

## 2. GENERALIDADES

Os tijolos refratários em questão, são obtidos a partir de cinco constituintes: argilas branca, rosa e paneleira, chamote fino e grosso, como são vulgarmente conhecidos. A composição de cada um desses materiais, obtida por análise espectrográfica ótica, está contida na tabela 1.

---

(1) Contribuição Técnica n.º 518. Apresentada ao XVIII Congresso Anual da ABM; Belo Horizonte, julho de 1963.

(2) Membro da ABM; Engenheiro do Instituto de Pesquisas Radioativas; Belo Horizonte, MG.

(3) Membro da ABM; Engenheiro do Instituto de Pesquisas Radioativas; Belo Horizonte, MG.

TABELA 1 — Análise espectrográfica ótica dos constituintes

elemento material	Al (%)	Ti (%)	Si (%)	Fe (%)	Mg (%)	Ca (%)	Cr (%)	Na (%)
chamote fino	10	10	10	1 a 10	1 a 10	traços	-	-
chamote grosso	10	10	10	1 a 10	1 a 10	traços	-	-
argila branca	10	10	10	-	0,1 a 1	-	0,1 a 1	0,1 a 0,01
argila rosa	10	10	10	1 a 10	1 a 10	-	-	-
argila paneleira	1 a 10	1 a 10	1 a 10	1 a 10	1 a 10	traços	-	-

Análise seg. Z. C. Rabello

Esses materiais são pesados nas proporções definidas para cada tipo de tijolo e colocados juntos em um silo que se abre sobre o misturador. Na produção dos tijolos são empregados dois misturadores, com capacidade de 400 kg cada um. Neste ensaio, devido à maior facilidade de obtenção de amostras, foi usada a *galga*, um misturador aberto constituído de um prato giratório sobre o qual se apoiam duas mós. Pás convenientemente distribuídas lançam o material sob as mós, para se obter a homogeneidade desejada.

O Departamento de Pesquisa Operacional da indústria determinou o tempo de misturamento através dos chamotes por análise granulométrica. Esta análise é imprecisa na determinação do tempo de misturamento através das argilas, por terem elas granulometria aproximadamente igual.

Os métodos químicos, além de trabalhosos, fornecem sempre menores precisões que o método radioativo proposto. Este foi executado sobre uma única argila; o estudo das duas outras será realizado oportunamente.

### 3. MÉTODO GERAL

A obtenção do tempo de misturamento ótimo por métodos radioativos é uma técnica clássica na aplicação industrial de radioisótopos<sup>1, 2</sup>.

O método geral consiste em determinar a distribuição de um material radioativo (ou radioativo) selecionado, em função do tempo, através da operação de misturamento. A radioatividade pode ser introduzida dos seguintes modos:

- a) antes do misturamento, pela adição ao misturador de material previamente ativado;

- b) depois de terminado o misturamento, através da irradiação de amostras retiradas durante a operação.

A escolha do material radioativo ou a ser ativado pode seguir os seguintes critérios:

- I) Se uma das argilas contém um elemento ausente dos componentes restantes, este pode ser usado, desde que preencha certas características nucleares tais como meia vida, radiação emitida e facilidade de ativação.
- II) Em caso contrário, deve-se marcar uma das argilas com elemento inexistente em todas as outras.

Para se determinar a distribuição do material marcado, mede-se o número de contagens de cada amostra, que, com o aumento do tempo de misturamento, deve tender para um valor constante. No caso (a), a contagem das amostras pode ser feita em câmara de ionização, Geiger-Müller ou mesmo em espectrômetro gama; no caso (b), só em espectrômetro gama, que pode selecionar dentre todas as atividades obtidas por irradiação da amostra, a do material marcador.

#### 4. ESCOLHA DO MÉTODO

Para se determinar a distribuição do material marcado, mede-se o número de contagens de cada amostra, que, com o aumento do tempo de misturamento, deve tender para um valor constante. No caso (a), a contagem das amostras pode ser feita em câmara de ionização, Geiger-Müller ou mesmo em espectrômetro gama; no caso (b), só em espectrômetro gama, que pode selecionar dentre todas as atividades obtidas por irradiação da amostra, a do material marcador.

#### 4. ESCOLHA DO MÉTODO

Em trabalhos com material radioativo estão fixados níveis máximos permissíveis para sua concentração no ar.<sup>3</sup> Como durante os primeiros minutos de misturamento há grande produção de pó e sendo de toda conveniência evitar a ingestão de material radioativo, mesmo em doses abaixo das permissíveis, eliminou-se o método (a).

Embora a análise espectrográfica acusasse que somente a argila branca contém Cr-50, passível de ser usado como traçador a posteriori, pela análise por ativação verificou-se que, de fato, os outros componentes do tijolo também o contém, embora em quantidades menores. Por êste processo, que permite detecção de quantidades de Cr da ordem de 0,2 microgramas<sup>4</sup>, verificou-se que a argila rosa e os chamotes têm a mesma composição química qualitativa. O mesmo fato se verificou para o par argila branca-argila paneleira. Dêste modo eliminou-se o método (I), restando por exclusão o uso combinado dos processos (b) e (II).

## 5. MARCAÇÃO DA ARGILA

Levando em consideração a facilidade de ativação, a meia vida conveniente, o baixo custo, a presença de um único isótopo natural e a boa eficiência do cristal cintilador para a energia de sua radiação, marcou-se a argila com Mn-55, na forma de sulfato de manganês ( $\text{SO}_4\text{Mn}\cdot\text{H}_2\text{O}$ ). Êste material ativa-se facilmente no reator IPR-R1, dando o isótopo Mn-56, que apresenta como radiação mais importante, um raio gama de 0,84 Mev, tendo meia vida de 2,56 horas.

É necessário que o traçador acompanhe a argila marcada, a fim de que o tempo de misturamento determinado seja o da argila e não o do traçador. Para que o Mn se fixasse perfeitamente à argila, a marcação se fez por adsorção<sup>5,6</sup>. Colocou-se em um misturador de laboratório, 500 g de sulfato de manganês em solução aquosa de pH = 6 com 5.000 g de argila rosa. O material, depois de agitado durante duas horas, foi lavado três vezes com água (para se retirar o sulfato de manganês não adsorvido) e sêco em estufa a 110°C.

Irradiando uma amostra desta argila rosa marcada, outra de argila rosa pura e outra de argila rosa pura mais 9 mg de sulfato de manganês, determinou-se que 1 g de argila rosa marcada continha 22 mg de Mn-55. Esta quantidade permite a fácil detecção do manganês por ativação, mesmo após a dissolução nos 400 kg de material.

## 6. EXECUÇÃO DO TRABALHO

a) Os 5 kg de argila marcada foram cuidadosamente misturados com os 25 kg de argila rosa pura necessários para completar a quantidade usada na fabricação do tijolo. Em seguida foram lançados ao misturador juntamente com as outras argilas e chamotes, e iniciado o misturamento.

b) Foi retirado um total de 40 amostras de dois pontos diametralmente opostos do misturador, cada uma com cêrca de 250 g, em intervalos de tempo variando de 0,5 a 1 minuto durante o tempo total de 12 minutos, êste último maior que o atualmente usado.

c) Cada amostra foi sêca e homogeneizada. De cada uma foram preparadas aproximadamente 3 g para irradiação no reator IPR-R1, a uma potência de 1 quilowatt por 15 minutos. Foram tomadas as precauções necessárias para que tôdas as amostras fôsem submetidas às mesmas condições de irradiação (mesmo fluxo neutrônico). Isto foi conseguido fazendo girar a mesa-suporte das amostras, no interior do reator, durante todo o período de irradiação. A atividade esperada foi da ordem de 5 microcuries por amostra.

d) Ao mesmo tempo foram irradiadas amostras da mistura prèviamente homogeneizada em laboratório sem a marcação de Mn. A utilidade disto será vista a seguir.

e) As amostras radioativas foram contadas em um cintilador com cristal de NaI (T1) e  $1\frac{3}{4}$ " por 2", tipo poço, com analisador. Levou-se em consideração nesta contagem dois efeitos importantes: o encobrimento parcial do pico do Mn-56 por picos de outros elementos (fig. 1) e o decaimento do Mn-56.

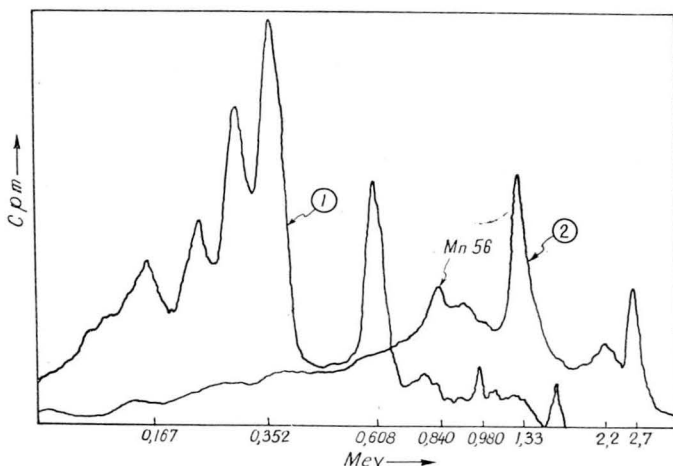


Fig. 1 — Obtenção do tempo de misturamento ótimo por métodos radioativos. Amostra N.º 11; sete meias-vidas após ativação. Picos: 0,840 — Mn 56; 1,33 — 2,2 e 2,7 — Na 24. Curva N.º 1 — calibração; Curva N.º 2 — argila em ensaio.

O primeiro efeito foi resolvido medindo-se, logo após a contagem de uma amostra, a amostra mencionada em (d) e subtraindo-se os resultados obtidos. A fim de melhorar a estatística esperou-se algum tempo antes de se iniciar estas contagens, para que o pico do Mn-56 se tornasse mais importante que o encobrimento. De posse das contagens devidas só ao Mn-56, do instante da contagem e da meia vida, reduz-se os valores encontrados a um tempo inicial.

f) Com as contagens assim obtidas traçou-se duas curvas (figs. 2 e 3), correspondentes a cada um dos locais de retirada de amostra, levando-se em abscissa o tempo de misturamento e em ordenada o número de contagens.

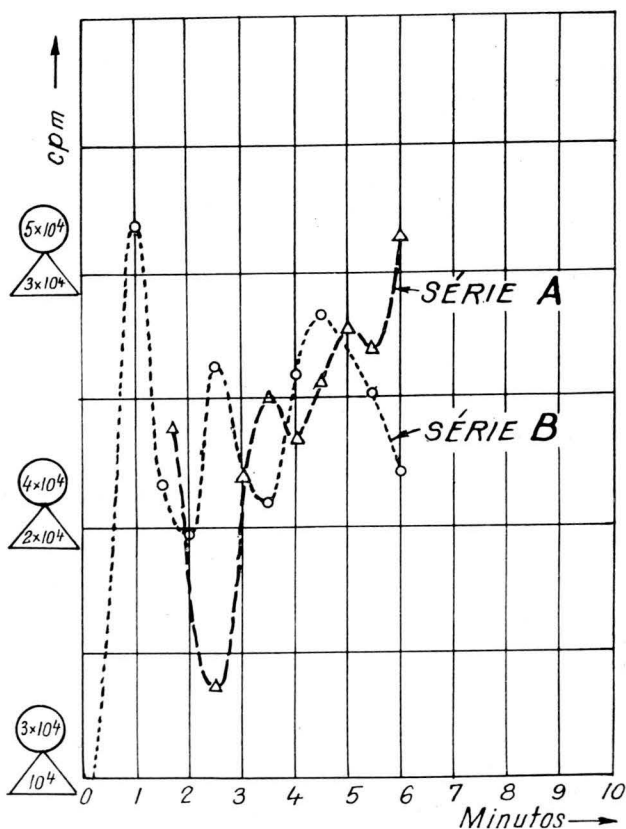


Fig. B — Curva traçada com as contagens (c.p.m.) obtidas. Verificou-se que o misturamento ao fim dos primeiros 6 minutos era ainda insuficiente.

Cada curva deve tender para valores dentro de pequenas variações, restritas às flutuações intrínsecas à medida e ao coeficiente de misturamento desejado.

### 7. RESULTADOS

Havendo menos de 40 posições disponíveis na mesa giratória do reator IPR-R1, e sendo maior o número de amostras a irradiar, dividiu-se a experiência em duas partes.

Em um primeiro teste (fig. 2), verificou-se que o misturamento ao fim dos 6 primeiros minutos era ainda insuficiente. No segundo teste (fig. 3), irradiaram-se as amostras entre o

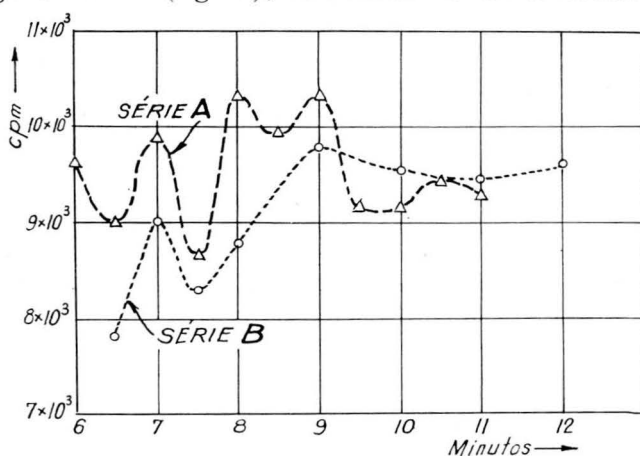


Fig. 3 — Segunda curva traçada com as contagens obtidas. Indica que a partir de 10 minutos tem-se bom misturamento. O coeficiente de misturamento  $K$  é da ordem de 95%.

6.º e o 12.º minutos após o início do processo. A curva da figura 3 indica que, a partir de 10 minutos, tem-se bom misturamento. Definindo coeficiente de misturamento  $K$  como

$$K = 1 - \frac{\Delta A}{\bar{A}},$$

sendo  $\Delta A$  o desvio em contagens sobre o valor médio  $\bar{A}$ , o misturamento aos 10 minutos será da ordem de 95%.

Deve ressaltar-se que este resultado é válido para a argila rosa. Diversos fatores podem determinar tempos diferentes para os outros materiais. Novos testes, análogos ao descrito, serão conduzidos para verificar esta hipótese.

## AGRADECIMENTOS

Agradecemos:

ao Eng. Paulo M. Bittencourt e a seus auxiliares da Magnesita S/A., as facilidades oferecidas para a feitura deste trabalho;

aos colegas do reator a presteza com que executaram as irradiações das amostras e à Divisão de Química Geral pela sua preparação, bem como pelo levantamento dos espectros gama dos materiais empregados;

aos colegas do grupo de Aplicação de Radioisótopos, as sugestões e auxílio inestimáveis prestados neste trabalho.

## BIBLIOGRAFIA

1. ERWALL, L. G.; K. LJUNGGREN — *Recent Uses of Radioisotopes in Technological Research and Control in Sweden*. Segunda Conferência de Genebra em Usos Pacíficos da Energia Atômica, 19, (3), 1968.
2. LUOTO, U. A.; E. G. ROTKUCH — *Tracer Techniques in the Finnish Industry*, 19, (28). Vide ref. (1).
3. U. S. A. E. C. — *Radioisotopes in Science and Industry*. Apêndice 5 — jan. 1960.
4. LEDDICOTTE, G. W. — *Nucleonics*, 14, (5), 46 — maio 56.
5. EICHOLZ, G. G.; W. N. ROBERTS — *The Adsorption of Tracers on Mineral Particles*, 19, (240) — vide ref. (1).
6. BOVARD, P.; G. MONNOT — *Elimination des Déchets Radio-actifs — Débit Solide et Adsorption des Radio-éléments*. Bulletin Cebedeau, n.º 48, 1960/II.