

BR.7701055



## MICROESTRUTURAS DE SOLIDIFICAÇÃO DE LIGAS ALUMÍNIO-URÂNIO

Francisco Ambrozio Filho e Renato Rocha Vieira

PUBLICAÇÃO IEA 436  
CMN 58

SETEMBRO/1976

**MICROESTRUTURAS DE SOLIDIFICAÇÃO DE LIGAS ALUMÍNIO-URÂNIO**

**Francisco Ambrozio Filho e Renato Rocha Vieira**

**COORDENADORIA DE METALURGIA NUCLEAR**  
**(CMN)**

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA**  
**SÃO PAULO - BRASIL**

**APROVADO PARA PUBLICAÇÃO EM MAIO/1976**

**SUPERINTENDENTE**

**Prof. Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni**

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA  
Caixa Postal 11.049 (Pinheiros)  
Cidade Universitária "Armando de Salles Oliveira"  
SÃO PAULO - BRASIL**

---

**NOTA:** Este trabalho foi conferido pelo autor depois de composto e sua rejeição está conforme o original, sem qualquer correção ou mudança.

# MICROESTRUTURAS DE SOLIDIFICAÇÃO DE LIGAS ALUMÍNIO-URÂNIO

Francisco Ambrozio Filho\* e Renato Rocha Viana\*\*

## RESUMO

Examinam-se as microestruturas de solidificação de ligas alumínio-urânio, com teores de 4 a 20% U, obtidos por solidificações convencional e unidirecional. Procura-se verificar quais as condições para formação dos cristais primários e do eutético para o sistema Al-UAl<sub>3</sub>, e analisar a influência das variáveis sobre a estrutura obtida.

Estuda-se o efeito da velocidade de resfriamento sobre as estruturas das ligas, principalmente as de composições eutéticas (13% U) e hipereutéticas (acima de 13% U). Analisa-se os efeitos da velocidade de crescimento e do gradiente térmico no líquido.

Mostra-se que as estruturas podem ser analisadas utilizando-se o conceito cinético de região de crescimento conjunto "coupled zone". Sugere-se a localização qualitativa do intervalo de composições e temperaturas no qual se tem crescimento eutético.

## 1 - INTRODUÇÃO

Num sistema eutético o diagrama de equilíbrio prevê que no resfriamento, para ligas de composições não eutéticas, se tenha inicialmente a formação de constituintes primários e posteriormente a solidificação do eutético e para ligas eutéticas se tenha diretamente a formação do eutético. No entanto verifica-se experimentalmente que estas seqüências previstas podem não serem satisfeitas.

Foi verificado que abaixo da temperatura eutética é possível obter-se estrutura totalmente eutética em composições diferentes da eutética. Esta região, no interior da qual há crescimento de eutético, é denominada região de crescimento conjunto (coupled zone)<sup>(3,12)</sup>. A sua existência foi primeiro verificada para materiais orgânicos<sup>(15)</sup> e posteriormente extrapolada para metais<sup>(8,10)</sup> onde é mais difícil se obter tratamentos isotérmicos.

São dois os principais tipos de região de crescimento conjunto, mostrados na figura 1. No primeiro tipo a região de crescimento conjunto não inclui a composição eutética e não ser na temperatura eutética. Esta forma é principalmente notada quando as linhas "liquidus" têm inclinações bastante diferentes em relação à isoterma eutética. No segundo tipo, tem-se incluído a composição eutética para todas as temperaturas e geralmente corresponde a linhas "liquidus" aproximadamente simétricas em relação à composição eutética. Outra consideração que pode ser feita é que no interior da região de crescimento conjunto há formação do eutético e fora dela formam-se proeutéticos.

A explicação para a existência desta região é dada em termos cinéticos, relativos às velocidades de crescimento conjunto das duas fases (coupled growth) e das mesmas, individualmente. No interior dessa região o crescimento conjunto se dá com maior velocidade do que o das fases separadamente.

(\*) Membro da ABM Engenheiro Metalurgista e Mestre em Engenharia Metalúrgica; Coordenador de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica; São Paulo SP

(\*\*) Membro da ABM Engenheiro Metalurgista e Doutor em Engenharia; Professor livre docente da Escola Politécnica da Universidade de São Paulo; Departamento de Engenharia Metalúrgica; São Paulo SP

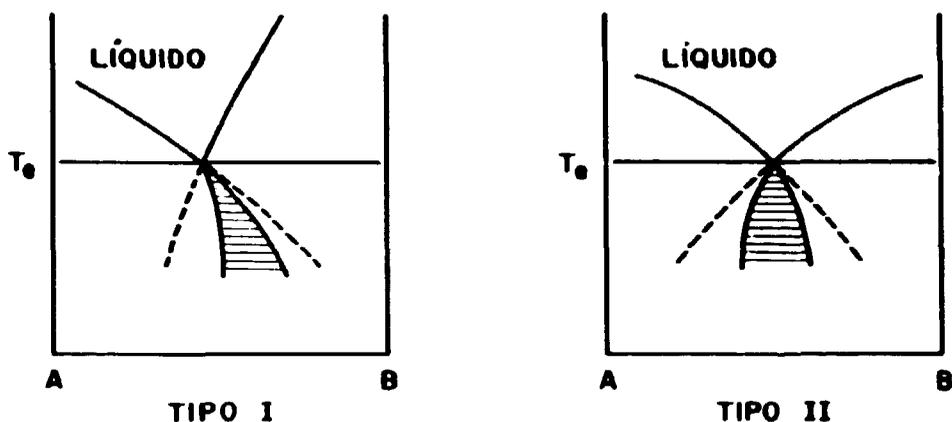


Figura 1 — Tipos de região de crescimento conjunto em sistemas binários.

Este conceito tem-se mostrado bastante útil para explicar a formação de eutético em composições diferentes da composição eutética. Também pode ser aplicado no caso do aparecimento de halo, que é o envolvimento da fase proeutética pela outra, e frequentemente encontrado em ligas de composições diferentes da eutética<sup>(9)</sup>. Considere uma região de crescimento conjunto do tipo I, da figura 1, e uma liga de composição não eutética. No resfriamento com a formação inicial da fase primária, a composição do líquido seguirá a linha liquidus até abaixo da temperatura eutética, à medida que cai a temperatura. Quando nucleasse a fase secundária, se a temperatura e composição estivessem fora da região de crescimento conjunto, a fase secundária cresceria formando um halo até que a composição do líquido atingisse a região de crescimento conjunto, onde haveria o crescimento conjunto. Foi também utilizado para explicar o aparecimento de dendritas de austenita em ferros fundidos de composições eutéticas e hipereutéticas<sup>(16)</sup>.

Uma outra interpretação da formação de halos pode ser fornecida pela teoria de não reciprocidade de nucleação em um sistema eutético<sup>(20)</sup>, onde verificaram que quando uma das fases nucleava a outra com pequeno super-resfriamento, esta somente nuclearia a primeira com grande super-resfriamento. O halo sempre apareceria quando a fase primária começasse a cristalização acima da temperatura de nucleação da segunda fase. Na solidificação de uma liga rica na fase que é nucleante, o eutético nuclear-se-ia, facilmente, a partir da fase primária. Se a liga for rica na fase não nucleante, a nucleação da segunda fase será mais difícil e dar-se-á com maior super-resfriamento. Foi considerado que para haver crescimento eutético haveria necessidade do líquido ter a composição eutética. Em ambos os casos deveria haver a formação de um halo ao redor da partícula primária, correspondente ao retorno da composição líquida até o eutético, sendo no entanto maior a espessura do halo para menor inclinação da linha liquidus e maior super-resfriamento para nucleação da segunda fase. Em casos extremos, onde a segunda fase só nucleasse com grande super-resfriamento, não haveria o crescimento conjunto, formando-se o eutético divorciado<sup>(4)</sup>.

Aliando-se os dois conceitos expostos, parece que a formação de extensos halos, ou mesmo, de eutéticos divorciados, que é um caso extremo de formação de halo, é favorecida quando a fase primária não é nucleante da secundária e a região de crescimento conjunto é assimétrica e localizada junto ao prolongamento da linha "liquidus" correspondente ao campo de formação da outra fase.

Mostrou-se também que, em solidificação unidirecional, se obtém estruturas eutéticas, com ligas de composições diferentes da eutética<sup>(17)</sup>. Mostraram que, para tanto, é necessário se ter alto gradiente térmico no líquido ( $G$ ) e uma baixa velocidade de crescimento ( $R$ ). Estas condições provocam a supressão do super-resfriamento constitucional em relação à fase em excesso. Verificaram, ainda, que

para cada composição existe um valor crítico de G/R acima do qual é possível o crescimento eutético. Os resultados experimentais foram obtidos no sistema Pb-Sn

Posteriormente, Jackson<sup>(13)</sup> utilizando o mesmo sistema aplicou o conceito cinético da região de crescimento conjunto, considerando o efeito do gradiente de temperaturas, existente na transformação, sobre as velocidades de crescimento relativas das dendritas de Sn e do eutético. Houve um razoável acordo entre o seu modelo e os resultados experimentais obtidos por Mollard e Flemings<sup>(17)</sup>.

Também foram realizados trabalhos de determinação da extensão da região de crescimento conjunto para solidificação unidirecional no sistema Al-Si<sup>(19)</sup>. Outros sistemas apresentaram estruturas dendríticas para composições eutéticas, quando solidificados com baixo gradiente térmico no líquido<sup>(14)</sup>, ou altas velocidades de crescimento<sup>(11)</sup>.

O caso de Bi-Sn é interessante, pois, é dos poucos sistemas onde foram realizadas a determinação da extensão da região de crescimento conjunto<sup>(10)</sup> e experiências de solidificação unidirecional<sup>(14)</sup>. Verificou-se nessas experiências a presença de dendrita de Sn, mesmo em ligas ligeiramente ricas em Bi com relação ao eutético. Da mesma forma a liga Al-Si onde para ambas experiências<sup>(8,19)</sup> obteve-se dendritas de Al para ligas ricas em Si em relação ao eutético. A correlação entre essas experiências de natureza diferente não é simples, mas mostram qualitativamente o mesmo fato.

No presente trabalho, procura-se verificar as microestruturas obtidas no sistema eutético Al-UAl<sub>4</sub>, observando-se as estruturas obtidas em lingotes convencionais e por solidificação unidirecional. Faz-se uma análise qualitativa dos fatores importantes, comparando as estruturas obtidas pelos dois métodos. Outro trabalho apresentado pelos autores trata especificamente sobre a morfologia do eutético Al-UAl<sub>4</sub> (1).

O diagrama de equilíbrio das ligas alumínio-urânio é apresentado na figura 2<sup>(18)</sup>. O ponto eutético tem 13% U e temperatura de fusão 640°C, sendo o eutético constituído de  $\alpha$ , solução sólida de urânio em alumínio e o composto intermetálico UAl<sub>4</sub>. A estrutura cristalina de  $\alpha$  é cúbica de faces centradas e do UAl<sub>4</sub> ortorrômbico.

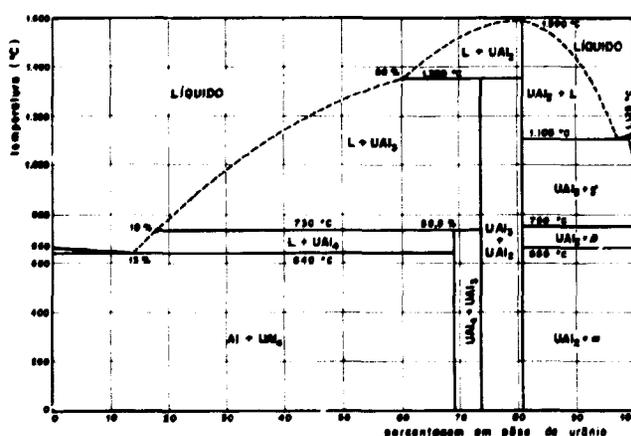


Figura 2 — Diagrama de equilíbrio alumínio-urânio

A fase  $\alpha$  é observada com morfologia dendrítica e o UAl<sub>4</sub> em forma de agulhas ou losangos, quando presentes como fases proeutéticas<sup>(2,7)</sup>.

Em solidificação unidirecional ou no estado bruto de fusão, as morfologias eutéticas apresentaram tendência para crescimento em espiral em forma de losango<sup>(1)</sup>

## 2 – MÉTODOS EXPERIMENTAIS

As ligas foram preparadas em cadinhos de grafita, utilizando forno de alta frequência H. W. G. (1000 KHz) e de potência máxima 25 KW. Na sua preparação utilizou-se urânio metálico produzido na Coordenadoria de Metalurgia Nuclear<sup>(5,6)</sup> e alumínio comercialmente puro 99,5%. O método utilizado foi de dissolução de urânio metálico no alumínio líquido. Foram efetuadas cargas para se obter diversas composições de urânio, no intervalo de 4 a 20% U.

Após a fusão e homogeneização da liga, efetuava-se o vazamento em lingoteiras cilíndricas de grafita, de aproximadamente 1 cm de diâmetro, pré-aquecidas a 200°C. Examinava-se as microestruturas desses lingotes, que posteriormente seriam utilizados em solidificação unidirecional.

Obteve-se, também, lingotes vazados sobre uma placa refrigerada, do qual foram observadas as microestruturas em diversas seções correspondentes às diferentes velocidades de resfriamento.

Posteriormente era efetuada solidificação unidirecional, em um sistema projetada para velocidades de crescimento no intervalo de 4 a 30 cm/h. Após o carregamento do lingote no dispositivo de solidificação unidirecional, fusão e homogeneização da temperatura do conjunto, iniciava-se a movimentação do sistema. As temperaturas utilizadas no forno foram sempre superiores a 800°C. Foram realizados ensaios com velocidade de crescimento uniformes e com mudança brusca de velocidades após certa distância percorrida com velocidade constante. Eram efetuados exames macroscópicos nos lingotes obtidos, para observação da textura do material, quando eram retirados corpos de prova para observação microestrutural.

Para o exame macroscópico utilizou-se ataque em solução aquosa de NaOH a 10%. Para observação microscópica utilizou-se a técnica de polimento mecânico manual e ataque químico em solução de ácido fluorídrico a 1% e também polimento eletrolítico, após ter sido efetuado polimento mecânico em pasta de diamante até 6  $\mu$ . O eletrolito utilizado tinha a seguinte composição volumétrica: ácido perclórico 20%, álcool etílico 70%, etileno glicol 10% e as características do aparelho durante o polimento foram as seguintes – diferença de potencial catodo-anodo 30-40 V e catodo de aço inoxidável.

## 3 – RESULTADOS

### Solidificação em Lingoteiras

Para o estudo das ligas hipoeutéticas foram obtidas ligas contendo 4%, 8% e 11% de U. A não ser pela quantidade de fase proeutética  $\alpha$ , que diminuía com o aumento da quantidade de urânio presente, as características gerais da microestrutura foram as mesmas. A figura 3 mostra a microestrutura típica para esta série de experiências.

As ligas de composição eutéticas (13% U) apresentaram microestruturas semelhantes a obtidas para as ligas hipoeutéticas.

Na faixa de composições hipereutéticas procurou-se obter várias ligas com até 20% U, aproximadamente. Observou-se que as ligas ligeiramente hipereutéticas mostraram a mesma microestrutura da figura 3. Somente para composições de liga da ordem de 18% U, obteve-se nas microestruturas a fase proeutética  $UAl_4$ . Nestes lingotes obteve-se diferentes microestruturas em várias regiões observadas. Na região próxima à superfície do lingote verificou-se grande quantidade de dendritas de  $\alpha$ , sendo raro encontrar-se a fase proeutética  $UAl_4$ . Ao se distanciar da superfície do lingote começa a

aparecer uma estrutura com colônias eutéticas. A figura 4 apresenta esta característica microestrutural. Portanto, a região mais próxima da superfície apresentou estrutura essencialmente dendrítica, enquanto que na central observou-se grandes áreas de colônias eutéticas.



**Figura 3** - Microestrutura característica das ligas Al-U hipoeutéticas, apresentando  $\alpha$  dendrítico e o eutético interdendrítico Liga Al-11% U Polimento eletrolítico. Aumento: 500 X. Ampliação: 2,5 X



**Figura 4** - Região junto à superfície do lingote, mostrando a variação de estrutura dendrítica para a de colônias eutéticas. A região escura, delinea a superfície do lingote. Liga Al-19% U. Polimento eletrolítico. Aumento: 50 X

A figura 5 mostra uma região onde o constituinte eutético ocupa quase toda a área da micrografia, com uma pequena região dendrítica entre as colônias eutéticas. Este fato pode ser melhor observado na figura 6, onde se verifica a fina estrutura das dendritas entre as colônias eutéticas.



**Figura 5** – Região central do lingote mostrando o aspecto das colônias eutéticas, com pequena área dendrítica entre as colônias. Liga Al 19% U. Ataque: HF a 1%. Aumento: 50 X.



**Figura 6** – Detalhe da região dendrítica entre as colônias eutéticas. Liga Al 19% U. Ataque: HF a 1%. Aumento: 200 X. Ampliação: 2,5 X.

Observa-se ainda o crescimento radial da colônia eutética, a partir de um centro, onde numa secção plana podem ser encontradas dendritas de  $\alpha$ , ou então, a fase proeutética  $UAl_4$ , envolvida por  $\alpha$ . Utilizando-se a técnica de polimento sucessivo, verificou-se que as colônias continham no seu interior uma partícula de  $UAl_4$ , mas nem todas as partículas observadas constituíam centros das colônias. A figura 7 mostra uma colônia contendo no seu interior a fase  $UAl_4$  envolvida por dendrita de  $\alpha$ . O constituinte eutético apresenta-se com crescimento radial a partir deste conjunto, mostrando nitidamente os contornos de colônias que foram desenvolvidos durante a solidificação.

O eutético apresentou o crescimento das plaquetas de  $UAl_4$  em duas direcções preferenciais, mostrando a tendência para o desenvolvimento da estrutura espiral em forma de losango. A figura 8 mostra esta característica do eutético, com algumas espirais completamente desenvolvidas.

Para composições pouco maiores do que as já estudadas, verificou-se na microestrutura grande quantidade da fase proeutética  $UAl_4$  (20% U). Havia uma diferença entre a região externa e a central do lingote. Na externa, obteve-se um aspecto estrutural semelhante ao obtido na região central da liga anteriormente descrita. Na região central a quantidade de  $UAl_4$  primário observado era grande. A figura 9 apresenta a micrografia característica nesta região, onde se observa a morfologia em losango característica do  $UAl_4$ , envolvida por halo da fase  $\alpha$ .



**Figura 7** – Colônia outética apresentando partícula de  $UAl_4$  no seu centro. Observa-se também dendritas de  $\alpha$  envolvendo o  $UAl_4$ . Liga Al-19% U. Ataque HF a 1%. Aumento: 200 X. Ampliação: 2,5 X.



**Figura 8** – Aspecto da morfologia eutética quando observadas num corte transversal. Liga Al-19% U. Ataque HF a 1%. Aumento: 500 X. Ampliação: 5 X.



**Figura 9** – Microestrutura da região central do lingote, evidenciando a morfologia do  $UAl_4$ , a presença da fase  $\alpha$  dendrítica e o halo envolvendo o  $UAl_4$ . Liga Al-20% U. Ataque HF a 1%. Aumento: 800 X.

Em outros lingotes de composições próximas a esta encontrou-se uma estrutura eutética irregular, notadamente junto à superfície dos mesmos. As figuras de 10 a 12 apresentam essas estruturas. Nestas micrografias pode-se observar a continuidade do  $UAl_4$ . Não se encontrou nestas regiões a fase  $UAl_4$ , com a morfologia em losango totalmente desenvolvida, o que também pode ser observado nestas figuras.



Figura 10 — Morfologia eutética irregular. Liga Al 19,5% U Ataque HF a 1% Aumento: 200 X Ampliação: 2,5 X



Figura 11 — Detalhe de regiões apresentadas na figura 10, mostrando a continuidade do  $UAl_4$ . Liga Al 19,5% U Ataque HF a 1% Aumento 500 X Ampliação: 2,5 X



Figura 12 — Partícula de  $UAl_4$ , continua com o eutético e características semelhantes às da figura anterior. Liga Al 19,5% U Ataque HF a 1% Aumento: 500 X Ampliação: 2,5 X

Nas composições estudadas não foi constatada a presença da fase  $UAl_3$ .

Após a obtenção destes resultados, foram realizadas as experiências de vazamento, sobre placa refrigerada, para verificação qualitativa, da influência da velocidade de resfriamento, sobre a estrutura, notadamente para liga com aproximadamente 17% U. Feito o exame macrográfico de uma secção longitudinal dess. lingote, observou-se três zonas, inferior, média e superior, das quais foram tirados corpos de prova. Notou-se nas duas primeiras, direcionalidade de crescimento vertical, no sentido da base refrigerada para o topo do lingote. A terceira zona não mostrou esta direcionalidade de crescimento, indicando certa influência da retirada de calor pelas paredes da lingoteira. As análises químicas obtidas nas três regiões observadas apresentaram teores médios de 17,5% U, 18,0% U e 18,9% U, respectivamente.

A figura 13 mostra a estrutura dendrítica da região inferior. A região intermediária apresentou uma estrutura semelhante, sendo que as dendritas eram mais grosseiras e a quantidade relativa de eutético verificada era maior que na região inferior. Observou-se algumas colônias eutéticas. A figura 14 apresenta uma microestrutura da região intermediária onde é mostrada uma partícula de  $UAl_4$  proeutética, dando origem a uma colônia eutética, criando uma perturbação no crescimento dendrítico orientado.

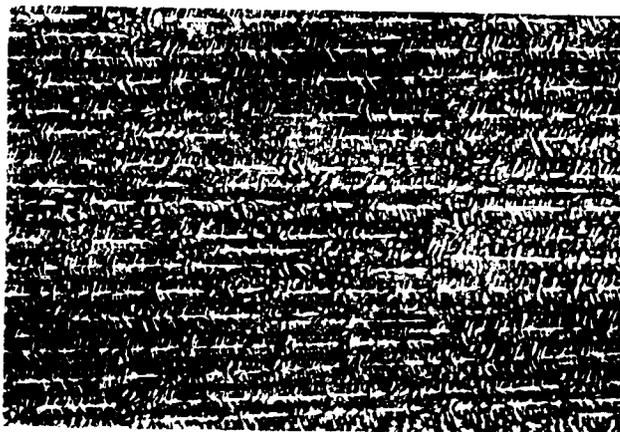


Figura 13 – Região inferior do lingote obtido por vazamento sobre placa refrigerada. Dendritas de  $\alpha$  orientadas com eutético interdendrítico que aparece escuro. Liga Al-17,5% U. Polimento eletrolítico. Aumento: 50 X Ampliação: 3 X



Figura 14 – Região intermediária do lingote obtido por vazamento sobre placa refrigerada. Dendritas de  $\alpha$  mais grosseiras que as da figura 13. Note-se uma partícula de  $UAl_4$  nucleada à frente da interface de crescimento. Liga Al-18% U. Polimento eletrolítico. Aumento: 50 X. Ampliação: 3 X

Na região superior do lingote, obteve-se uma estrutura semelhante àquela apresentada na figura 5, sendo na parte inferior desta região as colônias orientadas como as da figura 14

### Solidificação Unidirecional

Numa primeira série de experiências, procurou-se observar as microestruturas que seriam obtidas para diferentes composições com diversas velocidades de crescimento possíveis no dispositivo de solidificação unidirecional. Numa outra série, aumentou-se instantaneamente a velocidade do sistema para verificar a influência, desta brusca variação, na microestrutura obtida.

Para liga de composição hipoeutética, obteve-se dendritas grosseiras da fase  $\alpha$ , orientadas na direção de crescimento, com o eutético circundando-as. A figura 15 mostra a secção transversal de um lingote com 11% U. No eutético o  $UAl_4$  apresenta a mesma tendência para o crescimento em duas direções preferenciais.



Figura 15 — Secção transversal do lingote de liga com composição hipoeutética  $R = 4$  cm/h. Liga Al 11% U. Polimento eletrolítico. Aumento: 100 X. Ampliação: 2,5 X.

Um aumento instantâneo na velocidade do sistema provocou um refino das dendritas da fase  $\alpha$  e do eutético, obtendo-se aspecto semelhante ao da figura 13.

Nas ligas cuja composição era a eutética o constituinte eutético era sempre acompanhado de dendritas de  $\alpha$ , mesmo que em pequena quantidade, tanto para baixas como para altas velocidades de crescimento. Durante as experiências, foi mudado também, a temperatura do forno do sistema de solidificação unidirecional, modificando, portanto, o gradiente térmico no líquido. Não se constatou diferença nos resultados obtidos, em toda série de experiências, com esta variação introduzida.

Nas ligas hipereutéticas a microestrutura obtida dependia da composição da liga e da velocidade de crescimento utilizadas. Verificou-se que para composições pouco maiores que a eutética e baixas velocidades de crescimento, obtinha-se estrutura eutética. Para maiores teores de urânio obtinha-se estrutura eutética com alta velocidade de crescimento, enquanto que com baixas velocidades verificou-se a presença de  $UAl_4$  proeutético. Não foi, no entanto, efetuada nenhuma determinação quantitativa destas evidências.

As figuras de 16 a 18 mostram qualitativamente esta verificação, com a figura 16 mostrando uma microestrutura eutética para liga Al-13,8% U e  $R = 4$  cm/h, a figura 17 também uma microestrutura eutética, porém para liga Al 15,5% U e  $R = 27$  cm/h enquanto que a figura 18 apresenta uma microestrutura com proeutético  $UAl_4$  para uma liga Al 16% U e  $R = 4$  cm/h.



**Figura 16** – Estrutura eutética em secção transversal, evidenciando o arranjo entre as fases. R = 4 cm/h. Liga Al-13,8% U. Polimento eletrolítico. Aumento: 500 X. Ampliação: 2,5 X.



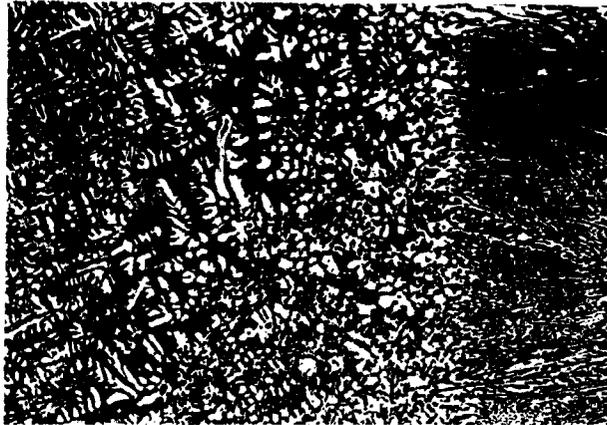
**Figura 17** – Secção transversal de estrutura eutética em solidificação unidirecional. R = 27 cm/h. Liga Al-15,5% U. Polimento eletrolítico. Aumento: 500 X. Ampliação: 2,5 X.



**Figura 18** – Secção transversal de liga hipereutética solidificada unidirecionalmente, com partículas de UA<sub>14</sub> proeutético com morfologia característica. R = 4 cm/h. Al-16% U. Polimento eletrolítico. Aumento: 100 X. Ampliação: 2,5 X

Nestas figuras o eutético evidencia a sua forma de crescimento em duas direções preferenciais, enquanto que o  $UAl_4$  proeutético se mostra com sua morfologia característica de losango inacabado.

Para liga com estrutura eutética, uma mudança brusca de velocidade acarretou uma variação de estrutura conforme mostrado na figura 19. Pode-se verificar que se passou de uma estrutura eutética para uma estrutura dendrítica, com uma separação bastante nítida entre elas.



**Figura 19** – Variação de estrutura eutética-dendrítica, ao se aumentar bruscamente a velocidade de crescimento em solidificação unidirecional. Velocidade anterior à mudança:  $R = 6 \text{ cm/h}$  Liga Al-14% U. Polimento eletrolítico. Aumento: 50 X. Ampliação: 2,5 X.

A mesma experiência, para liga com estrutura contendo  $UAl_4$  proeutético resultou o que pode ser observado na figura 20. Vê-se de um lado da micrografia uma estrutura eutética com partículas da fase proeutética  $UAl_4$ , e no extremo oposto, uma estrutura dendrítica. Na transição entre as duas regiões existe uma faixa com eutético mais fino e uma partícula de  $UAl_4$  que se formou à frente da interface geral de crescimento.



**Figura 20** – Mudança de estrutura para liga hipereutética ao ser aumentada a velocidade de crescimento em solidificação unidirecional. Velocidade anterior à mudança:  $R = 4 \text{ cm/h}$  Liga Al-16% U. Ataque HF a 1%. Aumento: 30 X.

#### 4 – DISCUSSÃO

As ligas de composições hipoeutéticas apresentaram sempre os constituintes que eram esperados a partir do diagrama de equilíbrio, ou seja, a fase primária  $\alpha$  e o eutético  $UAl_4$  e  $\alpha$ . Isto ocorreu tanto para altas velocidades de resfriamento, no caso do lingotamento convencional (figura 3) como para os lingotes de solidificação Unidirecional (figura 15), onde as condições foram mais controladas.

Nas ligas eutéticas e hipereutéticas, foi verificada também a presença de  $\alpha$  dendrítica. O fato de ligas, com estas composições (figuras 4 e 13), originarem a fase  $\alpha$  em detrimento do  $UAl_4$  proeutético, sugere que a formação de  $\alpha$  é favorecida cineticamente. A fase  $\alpha$  nucleia inicialmente, crescendo dendriticamente. Quando o  $UAl_4$  nucleia, as duas fases crescem para formar o eutético.

Nas ligas hipereutéticas houve a formação de partículas de  $UAl_4$  no líquido, a frente da interface geral de crescimento (figuras 7 e 14). Tanto estas partículas, como as obtidas com maiores teores de urânio (figura 9) apresentaram-se envolvidas pela fase  $\alpha$ . Com a nucleação e crescimento do  $UAl_4$ , o líquido envolvente se enriquece em alumínio, criando condições para formação de  $\alpha$ . Após a nucleação de  $\alpha$ , existe a condição termodinâmica para haver o crescimento simultâneo das duas fases. Assim, o fator que explica a formação do halo de  $\alpha$  envolvendo o  $UAl_4$  é cinético e relacionado com as intensidades relativas de nucleação e crescimento das fases componentes do eutético. Uma explicação da formação do halo, seria basear-se em dificuldades de nucleação de forma que  $\alpha$  fôsse de difícil nucleação e o  $UAl_4$  não nucleante de  $\alpha$ <sup>(20)</sup>. No entanto, o fato de se ter obtido fase  $\alpha$  em detrimento do  $UAl_4$  com ligas eutéticas e hipereutéticas sugere que a fase  $\alpha$  tem fácil nucleação, não requerendo para tanto grandes super-resfriamentos podendo nuclear junto a partícula de  $UAl_4$ .

A formação do halo deve, portanto, ser explicada pelas velocidades de crescimento. Após a nucleação de  $\alpha$ , havendo maior velocidade de crescimento que o  $UAl_4$ ,  $\alpha$  cresceu dendriticamente envolvendo o  $UAl_4$  até que o líquido atinja composição e super-resfriamento que favoreçam a formação do eutético.

O conceito de região de crescimento conjunto<sup>(3,9,12)</sup> fornece, qualitativamente, um meio para explicar estas ocorrências. Para que ocorram estes fatos de acordo com este conceito, a região deve ser localizada, aproximadamente, como mostrado na figura 21a. O sistema Al- $UAl_4$  apresenta características para que a região de crescimento conjunto seja como indicado, pois tem uma fase intermetálica no sistema e as linhas "liquidus" com inclinações bastante diferentes<sup>(3,10)</sup>.

Pode-se ter as seguintes seqüências de cristalizações aplicadas aos resultados obtidos em solidificação convencional. Nas ligas que apresentam  $\alpha$  primário (figuras 3, 7 e 13), pode-se indicar a seqüência como na figura 21b por AB. Este caso é para liga de composição eutética, mas a seqüência é semelhante para hipo e hipereutéticas. Forma-se inicialmente as dendritas de  $\alpha$  (A), cujo crescimento provoca o aumento da concentração de urânio no líquido, até que  $UAl_4$  nucleie (B). Quando isto acontece, estando no interior da região de crescimento conjunto, as duas fases crescem simultaneamente.

Quando se tem a formação do  $UAl_4$  proeutético, ou ele é envolvido por um halo de  $\alpha$  (figuras 7, 9 e 14) para depois formar o eutético ou a partícula de  $UAl_4$  mantém continuidade com a mesma fase do eutético (figuras 10 e 12). No primeiro caso a seqüência pode ser indicada por ABC na figura 21c. Após a formação do proeutético (A), a composição do líquido adjacente a este segue próximo a linha "liquidus", até que haja nucleação de  $\alpha$  (B). A composição do líquido está fora da região de crescimento conjunto, e assim, a fase  $\alpha$  cresce formando um halo que envolve o  $UAl_4$  até que a composição do líquido penetre no interior da região, formando o eutético (C). O segundo caso ocorre para maiores teores de urânio; com velocidade de resfriamento alta. A seqüência seguida pode ser a indicada na figura 21d. A nucleação de  $UAl_4$  se dá com maior super-resfriamento (A), e o líquido adjacente fica rico em alumínio. Quando ocorre a nucleação de  $\alpha$  (B), a composição estando no interior da região, pode formar-se o eutético.

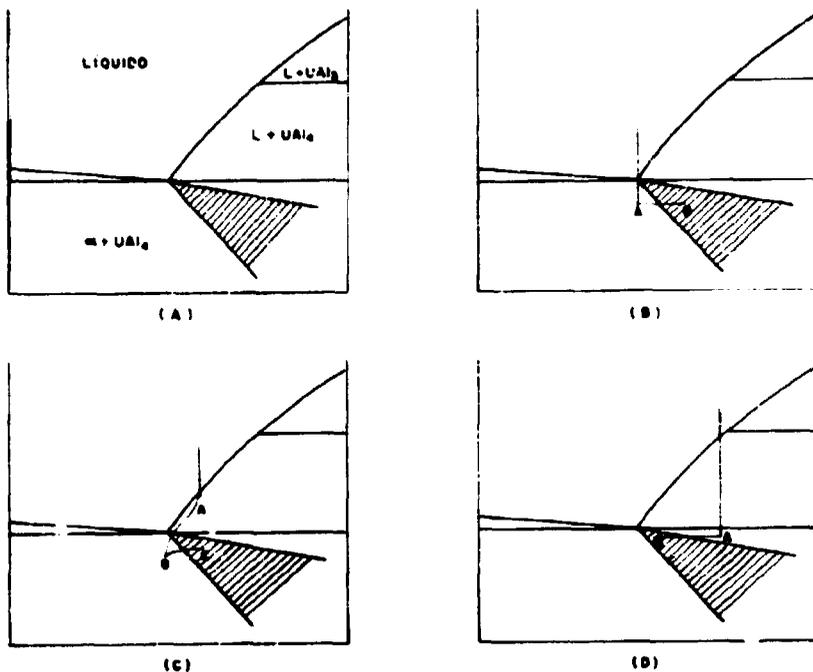


Figura 21 - a) Representação esquemática da região de crescimento conjunto no diagrama de equilíbrio Al-U; b) Sequência de cristalização no resfriamento para uma liga eutética. Em A formam-se dendritas de  $\alpha$  e força o líquido para a região de crescimento conjunto. Em B nucleia o UAl<sub>4</sub> e forma-se o eutético; c) Sequência de cristalização para liga hipereutética com nucleação de UAl<sub>4</sub> com pequeno super-resfriamento. Em A nucleia UAl<sub>4</sub>, em B nucleia  $\alpha$  que cresce dendriticamente e em C forma-se eutético; d) Sequência de cristalização para liga hipereutética com nucleação de UAl<sub>4</sub> com alto super-resfriamento. Em A nucleia e cresce UAl<sub>4</sub>, em B nucleia  $\alpha$ , estando no interior da região de crescimento conjunto forma-se eutético.

A verificação de dendritas da fase  $\alpha$  entre as colônias eutéticas (figura 6) também pode ser analisado através do conceito de região de crescimento conjunto, de maneira análoga ao efetuado por Hogan e Lakeland<sup>(16)</sup>. Propuseram uma variação de composição com o crescimento eutético, de forma que se desse uma oscilação de dentro para fora da região de crescimento conjunto, explicando o aparecimento de dendritas isoladas no interior da matriz eutética. Para a liga Al-U a sequência de cristalização seria a mesma mostrada na figura 21c, sendo que após a posição C indicada, com o crescimento da colônia eutética haveria uma segregação na interface da mesma, com variação de composição à frente da colônia até que isto provocasse a saída do interior da região de crescimento conjunto. A segregação favoreceria o aparecimento de  $\alpha$ , cessando o crescimento da colônia eutética, com formação de eutético interdendrítico.

Além da hipótese anterior, também pode ser que as dendritas de  $\alpha$  tenham se originado a partir do centro da colônia. Contribui para tal hipótese, ter-se encontrado dendritas de  $\alpha$  atravessando a colônia eutética (figura 7). Além disso, pode ser que as dendritas de  $\alpha$  sejam originárias de uma outra colônia. Nesses dois fatos possíveis, deve-se considerar o efeito causado pela secção de corte.

As experiências de solidificação unidirecional podem ser analisadas da mesma forma. Os resultados obtidos (figuras 15 a 18) são bastante semelhantes àqueles encontrados para a liga Al-Si onde

Steen e Hellawell<sup>(19)</sup> determinaram a extensão da região de crescimento conjunto em função da velocidade de crescimento e do super-resfriamento. A região de crescimento conjunto apresentada para a liga Al-Si é próxima daquela esquematizada para Al-U na figura 21a.

Não foi observado efeito da variação dos gradientes térmicos, utilizados nas experiências, sobre as estruturas resultantes. No crescimento há um avanço da fase  $\alpha$ . Quanto maior o gradiente térmico, mais restrito seria este avanço. Se o avanço for muito pequeno não haverá a formação de dendritas. Entretanto, foram encontradas dendritas mais eutético mostrando que não houve mudança de mecanismo dentro dos gradientes térmicos utilizados.

Resultados experimentais obtidos nos sistemas Bi-Sn e Bi-Pb<sup>(14)</sup> confirmam a influência do gradiente térmico no líquido. Com alto gradiente térmico no líquido, houve supressão da formação de dendritas, enquanto que, com baixos gradientes térmicos, havia formação de dendritas de Sn e Pb<sub>2</sub>Bi mesmo em ligas ricas em Bi em relação à composição eutética.

Assim, para se obter estrutura sem dendritas de  $\alpha$  na composição eutética, o gradiente térmico deve ser maior do que os utilizados, sendo que neste caso a extensão da região de crescimento conjunto seria alterada em relação à anterior.

A mesma interpretação pode ser dada para as experiências nas quais se aumentou bruscamente a velocidade de crescimento para ligas que tinham estruturas eutéticas e hipereutéticas (figuras 19 e 20). Ao se aumentar bruscamente a velocidade de solidificação, aumenta-se o super-resfriamento provocando a formação de dendritas de  $\alpha$ , o que deve estar ligado à maior velocidade de crescimento para estas.

Um fenômeno semelhante a este foi verificado para os ferros fundidos cinzentos<sup>(11)</sup>, onde com um aumento de velocidade a estrutura passou de eutética a dendrítica. A justificativa foi dada relacionando uma determinada fase em avanço com o super-resfriamento. Assim, para baixos super-resfriamentos a fase em avanço seria a grafita, com formação do eutético, enquanto que para altos super-resfriamentos a velocidade de crescimento da austenita é maior, tornando-se fase em avanço, com crescimento à frente da interface de forma dendrítica.

Pode-se dizer que os conceitos de região de crescimento conjunto<sup>(12)</sup> e o apresentado acima<sup>(11)</sup> são análogos pois ambos se utilizam de formulações cinéticas para analisar variação de estrutura. Pelos dois conceitos apresentados, um maior super-resfriamento provocaria uma maior velocidade para o constituinte  $\alpha$ .

Desta forma verifica-se que, embora o conceito de crescimento conjunto tenha sido desenvolvido para transformações isotérmicas, ele pode ser utilizado para analisar os resultados obtidos nas experiências realizadas.

Quanto à morfologia eutética verificou-se a tendência para o crescimento em espiral em forma de losango (figuras 8, 16 e 17), o que deve estar relacionado com a anisotropia de crescimento da fase UAl<sub>4</sub><sup>(1)</sup>.

## 5 – CONCLUSÕES

- 1) As ligas alumínio-urânio hipoeutéticas apresentaram a sequência de transformações indicadas no diagrama de equilíbrio, ou seja, a cristalização inicial do proeutético  $\alpha$  e a posterior formação do eutético interdendrítico.
- 2) As ligas de composição eutética apresentaram microestruturas típicas das ligas hipoeutéticas.

- 3) As ligas hipereutéticas apresentaram seqüências de cristalizações dependentes da composição e da condição de solidificação.
- 4) As ligas hipereutéticas solidificadas com altas velocidades de resfriamento (solidificação convencional) mostraram microestruturas semelhantes àquelas obtidas para as ligas hipoeutéticas, com até 17% U, aproximadamente. Com teores de urânio acima destes valores obteve-se  $UAl_4$ , proeutético. Este apresentou-se na maioria das vezes envolvido por um halo da fase  $\alpha$ .
- 5) Para baixas velocidades de resfriamento (solidificação unidirecional) observou-se estrutura totalmente eutética para composições de até 15% U; para composições de teores acima de 15%, verificou-se a presença de proeutético  $UAl_4$  na microestrutura.
- 6) A teoria das velocidades relativas de crescimento das fases componentes do eutético (conceito de região de crescimento conjunto) pode ser aplicada para explicar as seqüências de cristalizações observadas.
- 7) A região em que se forma apenas o eutético, deve estar localizada, qualitativamente, junto ao prolongamento da linha "liquidus" do campo das fases  $\alpha$  + líquido no diagrama de equilíbrio Al-U.

## ABSTRACT

This paper deals with the solidification microstructures of aluminum uranium alloys in the range of 4 to 20% uranium. The solidification was obtained both in ingot molds and under controlled directional solidification.

The conditions for the presence of primary crystals and eutectic are discussed and an analysis of the influence of variables (growth rate and thermal gradient in the liquid) on the alloy structure is made. The effect of cooling rate on the alloy structures has been determined.

It is found that the resulting structure can be derived from the kinetics concept as required by the coupled zone theory. Suggestions on the qualitative intervals of composition and temperatures with eutectic growth are presented.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. AMBROZIO FILHO, F & VIEIRA, R. R. Morfologia do eutético alumínio-urânio. *Metalurgia*, São Paulo, 31:73-80, 1975.
2. BRAMFITT, B. L. & LEIGHTON JUNIOR, H. P. A metallographic study of solidification and segregation in cast aluminum uranium alloys. *Metallography*, New York, 1:165-93, 1968.
3. CHADWICK, G. A. Controlled eutectic growth. In: THE IRON AND STEEL INSTITUTE, London. *The solidification of metals: proceedings held at Brighton, from 4-7 December, 1967*. London, 1968 (ISI publication, 110) p.138-48.
4. COLLINS, W. T. & MONDOLFO, L. F. Divorced eutectics. *Trans. Metall. Soc. A. I. M. E.*, New York, 233:1671-6, 1965.
5. FREITAS, C. T. Redução de tetrafluoreto de urânio por magnésio: estudo experimental da influência de algumas variáveis. *Metalurgia*, São Paulo, 24:131-8, 1968.
6. FREITAS, C. T. et alii. Fusão e lingotagem de urânio sob vácuo em forno elétrico de laboratório. *Metalurgia*, São Paulo, 24:137-280, 1968.

7. GENTILE, E. F. Metalografia de ligas alumínio-urânio. *Metalurgia*, São Paulo, 24:187-92, 1968
8. GIGLIOTI JUNIOR, M. F. X & COLLIGAN, G. A. The effects of sodium on the growth velocity and growth morphology of silicon in Al-Si alloys. *Metals Trans*, New York, 3:933-40, 1972
9. \_\_\_\_\_ et alii Halo formation in eutectic alloy systems. *Metals Trans*, New York, 1:891-7, 1970.
10. \_\_\_\_\_ et alii A temperature composition of coupled eutectic growth in the Sn-Bi system. *Metals Trans*, New York, 1:1038-41, 1970
11. HILLERT, M. & SUBBA RAO, V. V. Grey and white solidification of cast iron. In: THE IRON AND STEEL INSTITUTE, London *The solidification of metals: proceedings held at Brighton, from 4-7 December, 1967*. London, 1968. (ISI publication, 110). p 204-12.
12. HOGAN, L. M. et alii. Eutectic grains. *Adv Mater. Res.*, New York, 5:83-216, 1971.
13. JACKSON, K. A. The dendrite eutectic transition in Sn-Pb alloys. *Trans metall. Soc. A. I. M. E.*, New York, 242:1275-9, 1968.
14. KERR, H. W. & WINEGARD, W. C. Structures of Bi-Sn, Bi-Pb, and Bi-Te eutectics. *Can Metall. q.*, Montreal, 6:55-65, 1967
15. KOFLER, A. Concerning anomalous precipitation in undercooled binary melts, and especially the so-called halo structure. *Z Metallk* Berlin, 41:221-6, 1950.
16. LAKELAND, K. D. & HOGAN, L. M. The coupled zone concept applied to solidification of cast iron. In: THE IRON AND STEEL INSTITUTE, London. *The solidification of metals: proceedings held at Brighton from 4-7 December, 1967*. London, 1968. (ISI publication, 110). p 213-23
17. MOLLARD, F. R. & FLEMING, M. C. Growth of composites from the melt. *Trans metall Soc. A. I. M. E.*, New York, 239:1526-46, 1967
18. ROUGH, F. A. & BAUER, A. A. *Constitution of uranium and thorium alloys*. Columbus, Ohio, Battelle Memorial Institute, June 1958 (BMI-1300)
19. STEEN, H. A. H. & HELLAWELL, A. Structure and properties of aluminum silicon eutectic alloys. *Acta metall*, Toronto, 20:363-70, 1972.
20. SUNDQUIST, B. E. et alii The structure of eutectics. *J Inst. Metals*, London, 91:204-8, 1961.

