



**ESTUDO SOBRE A INSTABILIDADE DIMENSIONAL DO URÂNIO
METÁLICO SUJEITO À ALTERNÂNCIA TÉRMICA**

Erberto Francisco Gentile

DISSERTAÇÃO E TESE - IEA 008

FEVEREIRO/1976

**ESTUDO SOBRE A INSTABILIDADE DIMENSIONAL DO URÂNIO
METÁLICO SUJEITO À ALTERNÂNCIA TÉRMICA**

Erberto Francisco Gentile

Disertação para obtenção do Título de "Mestre em
Engenharia" – Orientador Prof. Dr. Tharciso D.S. Santos.
Apresentada e defendida em 24 de março de 1971,
na Escola Politécnica da Universidade de São Paulo.

APROVADA PARA PUBLICAÇÃO EM JANEIRO/1976.

CONSELHO DELIBERATIVO

MEMBROS

Klaus Reinach — Presidente
Roberto D'Utra Vaz
Helcio Modesto da Costa
Ivano Humbert Marchesi
Admar Cervellini

PARTICIPANTES

Regina Elisabete Azevedo Beretta
Flávio Gori

SUPERINTENDENTE

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 redação está conforme o original, sem qualquer correção ou mudança.

ÍNDICE

	Pág.
CAPÍTULO I	
INTRODUÇÃO	1
I.1 – Importância do Urânio Metálico	1
I.2 – Objetivo do Presente Estudo	2
 CAPÍTULO II	
REVISÃO SOBRE A INSTABILIDADE DIMENSIONAL DO URÂNIO	3
II.1 – Estruturas cristalográficas do urânio	3
II.2 – Instabilidade Dimensional do Urânio	5
II.2.1 – Teorias Sobre a Instabilidade Dimensional	6
II.2.2 – Estudo Sobre o Ciclo de Alternância Térmica	7
II.2.3 – Efeito do Tamanho de Grão	8
II.2.4 – Efeito de Elementos de Liga	9
 CAPÍTULO III	
ENSAIOS REALIZADOS E RESULTADOS	11
III.1 – Materiais e Métodos Utilizados	11
III.1.1 – Preparo do Urânio e Suas Ligas	11
III.1.2 – Tratamentos Térmicos	12
III.1.3 – Alternância Térmica	14
III.1.4 – Observação Microscópica	15
III.2 – Resultados	15
 CAPÍTULO IV	
DISCUSSÃO	16
 CAPÍTULO V	
CONCLUSÕES	18
 CAPÍTULO VI	
PERSPECTIVAS PARA NOVOS ESTUDOS	20
FIGURAS	21
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	31

ESTUDO SOBRE A INSTABILIDADE DIMENSIONAL DO URÂNIO METÁLICO SUJEITO À ALTERNÂNCIA TÉRMICA

Erberto Francisco Gentile

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO

I.1 – IMPORTÂNCIA DO URÂNIO METÁLICO

O urânio metálico, apesar de não ser mais usado como núcleo de elemento combustível nuclear de reatores de potência, encontra uso até hoje no campo dos reatores plutonígenos e nos arranjos subcríticos, utilizados para pesquisa e ensino. Isso se deve ao baixo custo de produção desses elementos para arranjos subcríticos e à facilidade de reprocessamento dos elementos dos reatores plutonígenos para obtenção de plutônio.

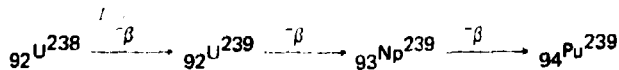
O urânio natural é composto isotopicamente⁽¹⁾ de:

99,28 % U-238

0,71 % U-235

0,005 % U-234

Desses isótopos apenas o U-235 é fissionado pelos nêutrons térmicos, liberando assim grande quantidade de energia. Entretanto, o U-238 apresenta uma importante reação de captura radioativa, seguida de dois decaimentos radioativos, transformando-se em plutônio. Esse processo de transformação pode ser representado pelas seguintes reações nucleares⁽²⁾:



O produto final dessas reações, o plutônio, é um elemento físsil.

O Brasil sendo carente em minério de urânio e apresentando grandes jazidas de minérios de tório⁽³⁾, vê com grande interesse a possibilidade de utilização do plutônio em reatores reprodutores, os quais usam um material fértil, em mistura com o elemento físsil.

O tório é um material fértil, assim como o U-238. Esse material por reação de captura radioativa, seguida de duas desintegrações β sucessivas, dá origem ao U-233, que é físsil. Entretanto, para dar início a produção desse isótopo artificial físsil do urânio, é necessário partir-se de uma mistura de elemento fértil, Th-232, com um elemento físsil, que pode ser o U-235 ou o Pu-239.

O U-235 encontrado no urânio natural, apresenta enormes dificuldades, tanto técnicas como financeiras, para poder-se separá-lo do isótopo não físsil, U-238. Portanto, a opção pelo Pu-239 poderia

facilitar a utilização do tório existente no país. Mesmo porque já existe uma certa experiência internacional na produção de Pu-239⁽⁴⁾, parecendo ser bem mais conveniente do que a separação do U-235 a partir do urânio natural.

Os chamados reatores do ciclo do tório, seriam aqueles que utilizariam como combustível uma mistura do elemento fértil, tório, e um elemento físsil, possivelmente plutônio. Esses reatores são os reatores reprodutores, isto é, são reatores que produzem mais combustível, U-233, do que o consomem, Pu-239.

Em resumo, reatores a base de urânio metálico têm um interesse intrínseco para o Brasil, sendo importante o desenvolvimento de pesquisas de cunho tecnológico no sentido de fabricação de tais tipos de reatores.

1.2 – OBJETIVO DO PRESENTE ESTUDO

A Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica, no sentido de estar presente ao desenvolvimento da tecnologia nuclear nacional, cumpre um extenso programa de pesquisa sobre a obtenção, refino e propriedades do urânio metálico^(5,6,7,8).

A presente dissertação relaciona-se com um dos tópicos desse programa, principalmente com o referente às propriedades físicas do urânio metálico.

O urânio metálico apresenta um fenômeno interessante, decorrente da anisotropia de sua estrutura cristalina, o que obriga a tomar-se uma série de providências antes de usá-lo como núcleo de um elemento combustível nuclear. Esse fenômeno consiste num problema de instabilidade dimensional. Praticamente, é este fato que determina a vida útil do elemento combustível fabricado com urânio metálico, o que influi diretamente no custo do mesmo⁽⁹⁾.

A instabilidade dimensional do urânio metálico pode ser causada por dois fatores independentes, porém, simultâneos.

- ciclagem térmica, oriunda de flutuações de fluxo de nêutrons, interrupções ou posta em marcha do reator, etc.
- dano de radiação, originado exclusivamente da interação entre o fluxo de nêutrons e o material, o urânio metálico.

As diferenças entre esses dois fatores foi muito bem apresentada por HOLDEN⁽¹⁰⁾, que as relatou nos seguintes tópicos:

- a ciclagem térmica atua apenas em material policristalino, enquanto que a radiação opera em monocristais;
- a ciclagem térmica não fragiliza o urânio;
- a porosidade que aparece no urânio tem origem mecânica na ciclagem térmica e no caso de dano de radiação é devida ao coalescimento de bolhas de gás de fissão.
- a instabilidade aumenta com a temperatura na ciclagem térmica e praticamente inexistente para temperaturas abaixo de 350°C. No caso de dano de radiação, o efeito deixa de existir para temperaturas acima de 450°C, tendo-se o máximo entre 100 e 200°C.

Em suma, a ciclagem térmica é um fenômeno microscópico cooperativo, envolvendo um ajuste mecânico, sensível à temperatura, entre as superfícies de dois cristais. A instabilidade devido

a irradiação é um fenômeno submicroscópico envolvendo deformações instantâneas em regiões próximas às fissões.

O presente estudo tem por objetivo, tentar avaliar o problema geral da instabilidade dimensional do urânio metálico, quando submetido a alternância térmica E ainda, tentar fazer um levantamento sobre o interrelacionamento das variáveis que atuam nesse fenômeno

A parte prática da dissertação, pretendeu, apenas, apresentar uma tomada de conhecimento dos problemas relativos ao levantamento de dados, necessários para futuras experiências, relativas à fabricação de elementos combustíveis.

CAPÍTULO II

REVISÃO SOBRE A INSTABILIDADE DIMENSIONAL DO URÂNIO METÁLICO

II.1 – ESTRUTURAS CRISTALOGRÁFICAS DO URÂNIO

O urânio apresenta três formas alotrópicas distintas, estáveis em determinados intervalos de temperatura.

As formas são notadas pelas letras gregas α , β e γ .

A forma alotrópica α tem estrutura ortorrômbica, apresentando os seguintes parâmetros de reticulado, à temperatura ambiente: $a_0 = 2,852 \text{ \AA}$, $b_0 = 5,865 \text{ \AA}$ e $c_0 = 4,945 \text{ \AA}$. valores estes encontrados por JACOB e WARREN⁽¹¹⁾ por difração de raios X, utilizando urânio em pó. O exame das distâncias interatômicas no reticulado, efetuado por JACOB e WARREN⁽¹²⁾, mostrou a existência de dois grupos de medidas: um com distância da ordem de $2,8 \text{ \AA}$ ($2,762 \text{ \AA}$ a $2,852 \text{ \AA}$) e outro com distância de cerca de $3,3 \text{ \AA}$ ($3,261$ a $3,322$). Como as forças interatômicas aumentam rapidamente com a diminuição da distância, JACOB e WARREN⁽¹²⁾, desenvolveram um modelo de camadas para o presente reticulado

O modelo apresentado é composto por planos corrugados paralelos ao plano (010), onde a força entre os átomos é mais intensa, do que a força entre átomos de planos corrugados distintos. Foi encontrado o ângulo de 127° entre os átomos do plano corrugado (Figura 1). Na Figura 2 pode-se observar a disposição dos átomos vizinhos mais próximos. O arranjo mostrado sugere que há vestígios de ligação covalente entre os átomos, devido a natureza anizotrópica do mesmo e a existência de quatro átomos vizinhos. Esses quatro átomos se ligam, nos planos corrugados, como uma estrutura bipiramidal de base triangular, semelhante a compostos covalentes⁽¹³⁾ (Figura 3).

O efeito desse vestígio de ligação covalente entre os átomos de urânio é refletido na sua relativamente baixa condutividade térmica.

Apesar dessa estrutura de reticulado própria, a forma alotrópica do urânio α é considerada como sendo ortorrômbica, como já foi dito, porém com os átomos não coincidentes com os vértices do reticulado⁽¹⁴⁾. A Figura 4 exemplifica bem a situação, observa-se que houve um deslocamento dos planos basais nas direções $\langle 010 \rangle$.

A. N. HOLDEN⁽¹⁵⁾ calculou o "diâmetro" dos interstícios para a condição de quatro átomos vizinhos e encontrou para o maior cerca de 50% do valor do diâmetro de átomo de urânio e para o menor, quase 40% do diâmetro do átomo de urânio. A importância desse fato está na facilidade em que vários produtos da reação de fissão ocupam essas posições.

A fase α apresenta um interessante comportamento quando submetida a um aumento de temperatura. Talvez devido a sua anisotropia intrínseca, enquanto os parâmetros a e c sofrem uma expansão linear, o parâmetro b apresenta uma retração. Na Figura 5⁽¹⁶⁾, pode-se observar a variação dos coeficientes de expansão térmica com a temperatura nas três direções cristalográficas: $\langle 010 \rangle$ correspondente ao b .

A forma alotrópica β não tinha sido estudada em detalhe até aproximadamente o ano de 1950. Isto, talvez, devido às grandes dificuldades existentes em se trabalhar com o urânio a temperaturas da ordem de 700°C , pois a grande quantidade de óxido formado na superfície do mesmo mascarava os resultados.

Entretanto, TUCKER⁽¹⁷⁾ conseguiu obter um monocristal de urânio β , utilizando uma adição de Cr (1,4 at. %). Após diversos estudos TUCKER apresentou a célula unitária de urânio- β como tendo 30 átomos de urânio, descrevendo-a como uma estrutura de camadas, em que as não perfeitamente planas ocorrem a 1/4 e 3/4 da altura total da célula unitária, enquanto que as camadas planas ficam nas bases da célula e a meia altura da mesma. Chamando a camada A a esse arranjo de átomos, e de B e C às outras camadas não perfeitamente planas, a ordem de empilhamento dessas camadas seria a seguinte: ABACABACA....

Os átomos das camadas do tipo B e C coincidem, fazendo-se apenas uma rotação seguida de uma translação.

As distâncias entre duas camadas de átomos do tipo A é de 2,79 Å, assim como entre B e C⁽¹⁸⁾. A Figura 6 mostra o aspecto de tal estrutura.

A forma alotrópica β do urânio apresenta maior simetria do que a forma α ⁽¹⁹⁾, o que vem corroborar com a idéia sobre a estrutura da fase β .

A fase γ do urânio tem a estrutura menos complexa que as duas outras, pois é cúbica de corpo centrado, com parâmetro $a_0 = 3,474$ Å à temperatura ambiente e $a_0 = 3,487$ Å para 800°C , resultados esses obtidos por WILSON e RUNDLE⁽²⁰⁾. Entretanto, HOLDEN⁽²¹⁾ cita o pesquisador THEWLIS, como tendo encontrado um valor do parâmetro a_0 a 800°C , muito mais razoável que o de WILSON e RUNDLE, ou seja $a_0 = 3,538$ Å, além de ser um trabalho bem mais recente, efetuado em 1951.

A fase γ , por apresentar uma estrutura mais comum aos metais, tem um comportamento plástico superior ao da fase α .

Quanto aos intervalos de temperaturas em que as estruturas do urânio apresentam maior estabilidade, pode-se dizer que ainda não se chegou a um único valor e que estudos estão sendo feitos para apurar-se valores mais exatos e reprodutíveis no tempo e no espaço.

Conforme o método empregado para a obtenção desses valores limites, tem-se resultados diferentes. Por exemplo, tome-se os aceitos internacionalmente de BAUMRUCKER e CHISWIK⁽²²⁾, os quais empregando uma velocidade de resfriamento da ordem de 1 a $2^\circ\text{C}/\text{min}$ chegaram aos seguintes resultados:

- fase γ , estável desde ponto de fusão até $766,5^\circ\text{C}$
- fase β , estável entre $766,5^\circ\text{C}$ a $656,7^\circ\text{C}$
- fase α estável abaixo de $656,7^\circ\text{C}$

Porém, utilizando o aquecimento para medir as temperaturas de transição entre as fases foram encontrados os seguintes valores:

- temperatura de transição $\alpha \rightarrow \beta$: $665,6^\circ\text{C}$

– temperatura de transição $\beta \rightarrow \gamma$: 771,1°C

O mesmo foi feito para determinação do ponto de fusão do urânio, sendo encontrados os valores de 1129,8°C durante o aquecimento e 1129,6°C no resfriamento⁽²³⁾. Entretanto, o de 1131,4°C, no aquecimento e 1133,1°C no resfriamento, foram encontrados por outro pesquisador⁽²⁴⁾ utilizando uma série de lingotes de urânio de alta pureza.

Os resultados mais corretos provavelmente são os obtidos durante o aquecimento, pois, é fácil, nas velocidades usuais de resfriamento, obter-se o super resfriamento da amostra retardando assim a transformação de fase. Ressalta-se, ainda, que o urânio utilizado por BAUMRUCKER e CHISWIK apresenta um teor de impurezas da ordem de 50 a 100 ppm, enquanto que o de BLUMENTHAL apresentava impurezas da ordem de 25 a 50 ppm.

Em conclusão, pode-se dizer que apenas a fase γ apresenta uma certa isotropia de propriedades e que as fases α e β , devido as suas estruturas cristalinas pouco simétricas, não apresentam propriedades físicas dependentes das direções cristalinas consideradas.

A própria instabilidade dimensional do urânio parece ser uma decorrência direta dessa assimetria do reticulado cristalino.

II.2 – INSTABILIDADE DIMENSIONAL DO URÂNIO

O urânio metálico pode sofrer deformações, quando submetido a repetidos ciclos de aquecimento e resfriamento, dentro do intervalo de temperaturas de estabilidade da sua fase alotrópica α .

As deformações, acima mencionadas, podem ocorrer de diversas formas, tais como: exagerado alongamento e enrugamento superficial.

A grandeza dessas deformações irá depender de variáveis, tanto de fabricação desse urânio, como também dos ciclos aos quais o mesmo é submetido. Nesse caso, está implícito a dependência direta com o número de ciclos realizados.

Dentre as variáveis de fabricação pode-se ressaltar: tamanho de grão, textura de orientação preferencial e adição de elemento de liga. Quanto às variáveis do ciclo tem-se: temperatura, intervalo de temperatura, tempo à temperatura e velocidade de variação de temperatura⁽²⁵⁾.

Se, por exemplo, uma amostra de urânio for deformada, a baixa temperatura, por um processo mecânico qualquer, o suficiente para ter uma textura de orientação predominante $\langle 010 \rangle$, ter-se-á como resultado uma marcante tendência ao crescimento rápido na direção de deformação. No caso de deformações a temperaturas elevadas, a textura predominante será $\langle 110 \rangle$, observando-se aí uma queda acentuada no ritmo de crescimento⁽²⁶⁾. Entretanto, nota-se que para uma amostra tratada no intervalo de temperaturas de estabilidade da fase β , ter-se-á um ritmo de crescimento mínimo.

Para se poder quantificar essas velocidades de crescimento sob alternância térmica foi apresentada uma expressão⁽²⁷⁾, função do número de ciclos:

$$G_t = \frac{1}{L} \frac{dL}{dN} = \frac{1}{N} \ln \frac{L_N}{L_0}$$

onde:

N = número de ciclos de alternância térmica

L_0 = comprimento original da amostras,

L_N = comprimento da amostra após N ciclos.

Em gráfico cartesiano onde coloca-se em ordenadas N e $\ln(L_N/L_0)$, G_1 é coeficiente angular da reta resultante.

II.2.1 – Teorias Sobre a Instabilidade Dimensional

Para ser explicado esse fenômeno foram apresentadas diversas teorias, que subsistem a' hoje⁽²⁸⁾. Expor-se-ão algumas delas, dando ênfase às mais importantes. Podem ser citadas as seguintes teorias:

– teoria de FISHER – Baseada numa anisotropia de difusão de lacunas. Alta concentração de lacunas produzidas termicamente a elevadas temperaturas, as quais podem difundir-se mais rapidamente numa direção cristalográfica do que em outra, que esteja em temperatura mais baixas. Assim, uma contínua ciclagem térmica ocasionará uma variação nas dimensões da amostra de urânio.

– teoria de SEIGLE e OPINSKY – É um modelo semelhante ao anterior, baseado numa anisotropia de difusão de lacunas, existe preferência de difusão na direção $\langle 100 \rangle$, porém a teoria está mais voltada para crescimento sob radiação do que sob alternância térmica.

– teoria de BETTMAN, BROWN e FRANKEL – Eles sugeriram que um relativo movimento ao longo do contorno de grão não é essencial ao crescimento sob ciclagem térmica, embora seja necessária a presença de dois grãos orientados diferencialmente. O grão mais fraco ocasiona a fluência ("creep") no mais resistente do par a temperaturas elevadas, enquanto que o grão mais fraco deforma-se plasticamente no resfriamento.

– teoria de FRANKEL e BROWN – Sugerem que os grãos de orientação $\{100\}$ são dúteis quando tracionados e não dúteis quando comprimidos. São alongados no aquecimento e comprimidos mas não completamente no resfriamento. Esse mecanismo pode apresentar um crescimento sob ciclagem térmica, se as hipóteses estiverem corretas. Por esse mecanismo ocorrem grandes variações na orientação dos grãos. Se, ao contrário, tivermos pequenas variações de orientação e o crescimento continuar indefinidamente, essa teoria torna-se inadequada.

– teoria de BURKE e TURKALO⁽²⁹⁾ – Essa teoria é também chamada a da "catraca térmica" ("thermal ratchet"). O mecanismo proposto, apresenta dois tipos competitivos de deformações:

- escorregamento no reticulado a baixas temperaturas
- escoamento viscoso de contorno de grão a elevadas temperaturas.

Esses dois tipos de deformações operam sobre um par de cristais anisotrópicos unidos no contorno de grão e as tensões responsáveis pela distorção têm sua origem na diferença entre os coeficientes de expansão dos dois grãos em relação a direção paralela a do contorno de grão. Esta diferença de expansão durante o aquecimento e resfriamento produzirá uma tensão de tração num grão e de compressão no outro. Essas tensões serão decompostas em diferentes tensões de cisalhamento nos planos de escorregamento e nas direções de escorregamento dos dois grãos que formam o par de cristais. O grão no qual fica aplicada a componente maior da tensão de cisalhamento será denominado de grão mais fraco.

BURKE e TURKALO chamaram de T_c a temperatura em que parece haver a fúção do contorno de grão. Acima desta temperatura, a tensão desenvolvida, pela diferença de expansão entre os dois grãos, é relaxada por um escoamento viscoso tão rápido como ela se desenvolve. Abaixo desta temperatura, a diferença de expansão entre os grãos é acomodada por um escoamento plástico no grão mais fraco entre os dois.

Considere-se agora um par de grãos, onde o mais fraco apresenta o maior coeficiente de expansão a uma temperatura logo acima de T_c . No resfriamento uma tensão de tração é desenvolvida no grão mais fraco e após o resfriamento de um intervalo ΔT de temperatura, a tensão torna-se tão alta que inicia-se um escoamento plástico no grão mais fraco, de maneira a manter-se constante a tensão de tração. Se o resfriamento continuar até uma temperatura ($T_c - 2\Delta T$) e logo após houver o reaquecimento, a tensão de tração no grão mais fraco gradualmente atingirá zero a ($T_c - \Delta T$). No aquecimento posterior até T_c , são desenvolvidas tensões de compressão que são relaxadas a T_c por escoamento de contorno de grão. Agora o grão mais fraco está mais longo que o outro. A tensão e a temperatura estão justamente nos valores originais, portanto, a repetição desse ciclo causará um alongamento constante do grão mais fraco.

Como conclusão, pode-se dizer que o grão mais fraco será sempre distorcido; será encurtado se o coeficiente de expansão for maior e será encurtado se o coeficiente de expansão for menor que o grão mais forte.

No caso do urânio policristalino, pode-se admitir como um agregado de partes de cristais. A deformação total será resultado de soma algébrica das deformações de cada par de cristais.

Essa teoria, proposta por BURKE e TURKALO, parece ser bastante lógica e é a que tem respondido melhor às questões levantadas no fenômeno de instabilidade dimensional do urânio sob alternância térmica. Embora, até hoje, não exista uma definição quanto a teoria que fosse a melhor. Por isso, coexistem todas essas teorias apresentadas, apesar de que a última citada conta com uma corrente maior de pesquisadores que a apoiam.

II.2.2 – Estudo Sobre o Ciclo da Alternância Térmica

A magnitude da instabilidade dimensional do urânio quando submetido a alternâncias de temperaturas dependerá, como já foi citado, das próprias variáveis ligadas ao ciclo de alternância térmica.

MAYFIELD⁽³⁰⁾ apresentou uma análise bastante minuciosa a respeito das variáveis de ciclagem. Ressaltou como importantes: velocidades de aquecimento e resfriamento, temperatura máxima e mínima do ciclo, intervalo de temperaturas e tempo a temperaturas.

Quanto às velocidades de aquecimento e resfriamento ele encontrou o seguinte:

- máximo crescimento foi obtido usando rápido resfriamento e aquecimento lento;
- o mínimo crescimento resultou quando foi usado um resfriamento lento e um rápido aquecimento;
- o crescimento apresentou-se moderado para o caso em que tanto o aquecimento como o resfriamento tiveram uma mesma velocidade.

No que se refere à temperatura máxima do ciclo observou aquele pesquisador que o aumento desta temperatura acarretava no aumento da velocidade de crescimento das amostras de urânio. Observou, ainda, que fixando-se a temperatura máxima e aumentando-se a temperatura mínima do ciclo, havia um decréscimo da velocidade de crescimento, isto é, diminuindo-se o intervalo de temperatura do ciclo térmico, diminuía-se o coeficiente de crescimento G_t , MAYFIELD encontrou um relacionamento praticamente linear entre o intervalo de temperatura do ciclo e o coeficiente G_t , sendo essas duas variáveis diretamente proporcionais, para cada temperatura máxima de ciclo.

Uma outra variável importante, tratada por esse pesquisador, é o tempo à temperatura máxima. Experiências efetuadas por ele, mostraram que quanto maior for a temperatura máxima do ciclo, menor deve ser o tempo necessário para se obter uma constância no coeficiente de crescimento do urânio

metálico. Outro fato, interessante, encontrado é que não seria apenas uma única relação matemática que existiria entre o coeficiente de crescimento G_t e a temperatura máxima do ciclo. Colocando-se em gráfico o $\log G_t$ em função de $1/T$, onde T é a temperatura máxima do ciclo tomada em $^{\circ}\text{K}$, observa-se um ponto de inflexão, que corresponde a 425°C (Figura 7)

BURKE⁽³¹⁾ e outros calcularam as energias de ativação para cada uma das partes da curva encontrada e obtiveram, 16 kcal/átomo grama para o intervalo de temperaturas abaixo de 425°C e 7 kcal/átomo-grama, para o intervalo de temperaturas superior.

É interessante notar que se o fenômeno de crescimento sob alternância térmica for resultante em parte de escoamento de contorno de grão, então, é um fenômeno que depende de tempo e temperatura primordialmente. E essa dependência pode ser constatada, principalmente, nos resultados obtidos das experiências de MAYFIELD sobre a influência do tempo a temperaturas máximas de ciclo no coeficiente de crescimento do urânio. Essas experiências mostraram que somente após 10 a 15 minutos a essas temperaturas é que se obtinha uma constância de G_t .

A inflexão da curva apresentada na Figura 7 está em concordância com estudos feitos por MUEHLEKAMP⁽³²⁾ e outros a respeito de atrito interno entre grãos e com estudos de recristalização efetuados por HAYES⁽³³⁾. Tudo leva a crer que abaixo de 425°C o escoamento do controle de grão é restringido, resultando menor crescimento. Mesmo longos tempos a temperaturas menores que 425°C resultam numa pequena variação das propriedades de instabilidade. Entretanto, a menor energia de ativação necessária para o processo no ramo inferior da curva (Figura 7), mostra que o fenômeno predominante tem caráter mecânico e não de difusão.

Quanto às variáveis de fabricação das peças de urânio, será feita uma análise mais detida levando-se em conta a importância das mesmas, durante a produção dessas peças, no bom desempenho futuro desse urânio.

II.2.3 – Efeito do Tamanho de Grão

Diversos trabalhos, apresentados internacionalmente, fazem uma análise a respeito do tamanho de grão do urânio, processado de diversas maneiras, sobre o efeito de ciclagem térmica. Deve-se ressaltar, entretanto, que esta variável está sempre ligada a outras, como por exemplo: orientação preferencial da estrutura e o grau desta orientação.

CHISWIK⁽³⁴⁾ apresentou uma série de experiências em que ele estudava, para uma dada orientação preferencial e um dado grau de deformação mecânica, a influência do tamanho de grão sobre a instabilidade dimensional do urânio quando submetido a um ciclo de alternâncias de aquecimentos e resfriamentos. Concluiu que o crescimento da barra de urânio é função direta da orientação da estrutura e que a grandeza desse crescimento está intimamente ligada ao grau de orientação preferencial e ao tamanho de grão. Observou, ainda, que os maiores aumentos davam-se para os menores tamanhos de grão e para as estruturas grandemente orientadas.

Ainda durante suas experiências, CHISWIK⁽³⁵⁾ notou que as amostras de urânio pouco reduzidas mecanicamente, de tamanho de grão inicial grande e submetidas a um tratamento térmico na fase β , podiam apresentar até uma concentração, no caso de 100 ciclos de aquecimentos e resfriamentos, no máximo

Outros pesquisadores⁽³⁶⁾ encontram uma certa dependência entre o tamanho de grão inicial de urânio e o coeficiente de crescimento sob alternância térmica. Para maiores grãos a influência era bem mais acentuada que para os pequenos, isto é, o coeficiente de crescimento era bem maior.

Esta dependência, segundo esses pesquisadores, pode ser interpretada em termos de uma marcante variação de textura que ocorre durante a ciclagem térmica, como um resultado direto da

mesma. A primeira deformação que acontece parece ser um processo de formação de subgrãos, em que cada grão resulta em diversos outros com orientações cristalográficas de pequeno ângulo de desvio entre si. Esse processo é mais pronunciado e mais prontamente detectado em urânio de tamanho de grão inicial grande.

Em adição a esse feito de crescimento unidirecional, existe o do aumento de rugosidade superficial. Este fato é bem ressaltado para o caso de urânio de granulação grosseira. O fato em si, pode ser comprovado ao reter-se a amostra de urânio no intervalo de temperaturas onde a fase β é estável, por um intervalo de tempo bastante longo, suficiente para se ter o crescimento dos grãos de β . Com isso obtém-se uma orientação ao acaso para os diversos grãos, garantindo assim o não crescimento unidirecional.

Pode-se resumir, finalmente, o assunto acima tratado com a conclusão a que CHISWIK⁽³⁷⁾ chegou na discussão de um dos seus trabalhos: "O tamanho de grão das amostras de urânio submetidas à ciclagem térmica é uma variável muito importante sob dois aspectos:

- 1) em barras de urânio altamente deformadas no intervalo de temperaturas de estabilidade da fase α , o crescimento na direção longitudinal ou direção de laminação será maior quanto menor o tamanho de grão;
- 2) em barras tratadas termicamente no intervalo de temperaturas de estabilidade da fase β , resultando numa textura de relativa orientação ao acaso, ter-se-á um crescimento pequeno na direção longitudinal, porém obter-se-á uma superfície rugosa nas barras, devido ao crescimento de grão durante o tratamento térmico efetuado.

11.2.4 – Efeito de Elementos de Liga

Neste ítem procurar-se-á verificar a influência tanto de adições de pequenas porcentagens de elementos de liga que não se dissolvem no urânio bem como a influência de grandes porcentagens. Esses elementos ou estarão precipitados na forma de compostos intermetálicos ou na sua forma elementar, como solubilizados no urânio.

Examina-se primeiramente o efeito do carbono, uma vez que este elemento é uma impureza normalmente encontrada no urânio, resultante das operações de redução e refusão para refino

SHOBER⁽³⁸⁾ e outros analisando o efeito do carbono sobre o urânio, observaram que devido a sua baixa solubilidade no urânio α (cerca de 0,007 % C no máximo) qualquer efeito de aumento de resistência mecânica, este se dá em toda sua plenitude. Porém os resultados, observados na prática, do efeito do carbono sobre a estabilidade dimensional do urânio advêm de vários graus de precipitação. Esses pesquisadores observaram que o aumento do teor de carbono diminuía a instabilidade dimensional do urânio quando ciclado termicamente. Sendo que acima de 0,4% tem-se urânios muito estáveis. Ao observarem a microestrutura desse urânio, notaram que não havia tendência de precipitação dos carbonetos em contorno de grão e que os mesmos estavam bem distribuídos nas secções examinadas. Os carbonetos começavam a se agrupar, na liga para teores próximos a 0,22 % C, enquanto que para teores acima de 0,34 % C, até 0,57 % C, havia o coalescimento desses carbonetos. Esses dois fatos, agrupamento e coalescimento, poderiam contribuir para um decréscimo da estabilidade do urânio, entretanto, SHOBER e seus colaboradores argumentaram que sendo a maioria do precipitado intra-cristalino haveria um aumento na estabilidade dimensional do urânio; com um decréscimo da efetividade da adição do carbono.

O estudo efetuado por esses pesquisadores mostra, em resumo que o alto grau de estabilidade alcançado pelo urânio, com adição de 0,34% C, é resultado de uma combinação de dois fatores:

- tamanho das partículas de carboneto

- distribuição desses carbonetos na matriz de urânio metálico.

COLOMBIE⁽³⁹⁾ e outros estudando a influência de carbono que está sempre presente como impureza no urânio metálico quando obtido pelas técnicas correntes, estando solubilizado no urânio líquido e praticamente insolubilizado na fase sólida⁽⁴⁰⁾, observaram-se os seguintes efeitos:

- para teores de carbono hipoeutético, menores que 500 ppm, o carboneto deverá precipitar-se em uma matriz parcial ou totalmente solidificada, resultando, assim, numa ação pouco ou quase eficiente.
- para teores hipereutéticos, os carbonetos precipitam antes que haja a solidificação da matriz resultando assim em germens heterogêneos de solidificação, resultando numa estrutura solidificada de grão fino.
- para teores altos de carbono, começa haver precipitação de carbonetos a temperaturas elevadas, resultando num coalescimento rápido desses precipitados. Em consequência, essas partículas vão tornar-se mais volumosas porém menos numerosas, o que resultará numa diminuição de eficiência do papel de germes de solidificação.

Concluindo, COLOMBIE e seus colaboradores observaram que a presença do carbono em solução no líquido diminuirá a velocidade de crescimento do sólido, ou melhor, dos grãos metálicos, modificando talvez as propriedades de interface. A esta ação crescente com o teor de carbono se superpõe a ação de germinação heterogênea para concentrações da ordem de 1000 ppm.. A importância desse último fato estando ligada, naturalmente, a dispersão destas inclusões.

Outros elementos utilizados como adições no urânio são, geralmente: Mo, Si, Al, Ti, V, Nb, Zr, Cr, Fe, etc. Esses elementos, adicionados até cerca de 0,6%, têm por finalidade modificar a cinética de decomposição das fases β , e γ , como também produzir uma textura de orientação ao acaso e grão fino.

CHISWIK e colaboradores⁽⁴¹⁾ estudaram uma série de amostras de urânio que apresentavam diversas adições de elementos de liga. Observaram que as mesmas não influem sobre as texturas das amostras, ocasionando sobre aquelas amostras que haviam sofrido transformação mecânica nenhum efeito sobre o crescimento sob ciclagem térmica. Nesse intervalo de composições não há alteração de estrutura cristalina, mantendo-se, pois, a temperatura ambiente a fase α . E as alterações de comportamento apresentadas, provavelmente, são devidas a variações da temperatura durante a transformação mecânica, tamanho de grão, etc.

Esses pesquisadores chegaram à conclusão de que as adições dos elementos de liga apresentaram-se efetivas na diminuição do enrugamento superficial. Porém, para se atingir o máximo desse benefício, essas amostras de urânio com adições de liga devem ser tratadas termicamente com o objetivo de refino de grão. CHISWIK e outros⁽⁴²⁾ observaram que a melhor condição de tratamento variava com o elemento adicionado, concentração, relações de equilíbrio de fases e o modo pelo qual afeta a cinética de transformação das fases β ou γ .

ZEGLER e CHISWIK⁽⁴³⁾ utilizando amostras com adições de V e Ti tratados a 710 -- 725°C e resfriados rapidamente apresentaram aparência pouco rugosa, enquanto que as amostras com Mo tiveram que ser tratadas a 850°C para se ter certa estabilização, a qual é aumentada com o aumento do teor de Mo.

Deve-se ressaltar, que no caso dessas adições, a estabilidade dimensional do urânio está ligada diretamente ao tamanho de grão da fase α , sendo tanto menor quanto maior for o tamanho de grão.

Verificar-se-á, agora, como se comportaria o urânio metálico com elementos de liga, em teores suficientes para se estabilizar completamente ou parcialmente a fase γ , às temperaturas do ciclo térmico.

Pode-se notar a primeira vista, que a existência de uma fase γ , cúbica e que apresenta uma certa isotropia de propriedades poderia acabar com a instabilidade encontrada. Por isso, as pesquisas realizadas até hoje encaminharam-se na direção de elementos de liga estabilizadores da fase γ . Dentre esses elementos contam-se: Mo, Nb, Ru, Rh, Zr, etc.

Deve-se ressaltar, que no caso das ligas de alto teor de elemento de liga (cerca de 20^a/o) existe o problema de economia de nêutrons. Pois, esses elementos de secção de choque de valores médios exigiriam um aumento de enriquecimento no isótopo físsil.

Na prática, tenta-se estabilizar a fase γ através de um elemento de liga e uma adição. Por exemplo, no caso de utilizar-se uma liga U-Mo procura-se fazer adições de Cr, Nb, Re, Zr, etc.⁽⁴⁴⁾.

CABANE e DONZE⁽⁴⁵⁾ estudaram as ligas U-Mo a fundo, assim como diversas adições, chegando a conclusão de que cada uma dessas adições têm um valor ótimo para o máximo de estabilização de γ . E, ainda, observaram que tanto o Mo como as adições atuam na cinética de transformação das fases, diminuindo acentuadamente a velocidade de transformação. Apresentaram, ainda, um critério geral de estabilização para as ligas acima citadas, o qual relaciona a estabilização da fase γ com a diminuição do parâmetro de reticulado cúbico dessa fase. Assim, quanto menor o parâmetro maior é o intervalo de estabilização de γ .

CAPÍTULO III

ENSAIOS REALIZADOS E RESULTADOS

III.1 – MATERIAIS E MÉTODOS UTILIZADOS

III.1.1 – Preparo de Urânio e Suas Ligas

Para os ensaios realizados foi utilizado urânio produzido na Divisão de Metalurgia Nuclear a partir de um sal, UF₄, nuclearmente puro de origem canadense. O processo utilizado é o da redução de UF₄ por magnésio metálico efetuada em recipiente fechado hermeticamente⁽⁴⁶⁾. O produto dessa reação é um urânio que contém magnésio como impureza, uma vez que o mesmo é colocado em excesso sobre o estequiométrico.

Com o objetivo de se retirar esse excesso de magnésio e lingotar o urânio na forma desejada, este foi refundido a vácuo⁽⁴⁷⁾. Esta operação foi realizada no forno a vácuo Wild-Barfield de 25 kW, com aquecimento por resistência elétrica de tungstênio. Durante a fusão, o vácuo de operação era da ordem de 0,5 μ Hg.

Para a primeira fase de fusões usou-se cadinhos de alumina recristalizada. Pode-se dizer que, inesperadamente, houve uma reação entre cadinho e urânio, resultando num produto de alto ponto de fusão que recobriu o banho, impedindo o vazamento do urânio e, portanto, a evolução total de magnésio.

Para ser contornado esse problema, passou-se a utilizar cadinhos de grafita, confeccionados no Instituto de Energia Atômica a partir de eletrodos de grafita de 7,5 cm de diâmetro. Ora, o urânio apresenta uma certa reatividade com relação à grafita, exigindo que fosse feita uma camada protetora no cadinho. Isso foi conseguido fazendo-se uma fusão prévia de urânio, a qual provocava uma camada de carboneto de urânio junto a superfície da grafita do cadinho diminuindo o teor de carbono, dessa superfície para o centro do cadinho. Esse expediente diminuiu a contaminação de carboneto no urânio posteriormente fundido.

Entretanto, para se impedir essa contaminação, foi efetuada uma série de fusões sob criolita fundida. Esse processo foi desenvolvido pelo Dr. T. D. SOUZA SANTOS, obtendo-se lingotes de urânio sem carbono.

Essa série de fusões foi efetuada em cadinhos de grafita em que o fundo do mesmo era a lingoteira. Primeiramente, fazia-se a fusão da criolita e depois carregava-se pedaços de urânio bruto. Esse urânio fundindo-se, preenchia as lingoteiras que estavam no fundo do cadinho, obrigando a saída da criolita do interior das mesmas. Para esse processo utilizou-se o forno de indução HWG de alta frequência, trabalhando-se com uma frequência de 1 Mhz e cerca de 10 kW de potência durante a fusão. Devido a alta taxa de transferência de potência, conseguia-se ciclos de fusão e lingotamento da ordem de 20 min.

O urânio obtido por esse processo não apresentou contaminação de carbono, apesar do recipiente ser feito de grafita, talvez devido a grande molhabilidade que a criolita apresenta em relação a grafita. Portanto, o urânio foi, praticamente, fundido num cadinho líquido de criolita.

Para as experiências desenvolvidas foram fabricadas mais duas ligas de urânio, uma com carbono e outra com molibdênio.

A liga com carbono foi feita pelo simples processo de refusão do urânio em cadinho de grafita, obrigando-se, propositalmente, que o urânio no estado líquido ficasse em contacto com a grafita durante um período de 30 min. Com isso obteve-se um teor de carbono residual no urânio da ordem de 0,3 – 0,4%. Deve-se ressaltar que a avaliação do teor de carbono na liga foi feita apenas por método metalográfico, levando-se em conta micrografias apresentadas em literatura internacional^(48,49) (Figura 8).

No caso da liga urânio-molibdênio, utilizou-se um cadinho de grafita onde já havia sido fundido urânio, tendo-se, portanto, a camada protetora já citada. Nesse caso fabricou-se uma liga de teor nominal de 5% Mo. Entretanto, pode-se dizer que nem todo molibdênio entrou em solução no urânio, uma vez que existe uma grande tendência de formação de MoC, com o carbono presente no urânio (Figura 9).

Essas duas ligas de urânio, com carbono e com molibdênio, foram fabricadas a vácuo, no forno Wild-Barfield, já descrito.

Os corpos de prova de urânio e de suas ligas para o ensaio de clivagem térmica foram fabricados ou por lingotamento direto, caso do urânio fundido sob criolita, ou usinado a partir de lingotes vazados a vácuo, caso das ligas de urânio. Esses corpos de prova eram cilindros com comprimentos da ordem de 50 mm e diâmetros de 5 a 7 mm. A variação do diâmetro deveu-se à grande dificuldade de se usinar o urânio, ou liga de urânio, a pequenos diâmetros, pois estes não aguentaram aos esforços mecânicos durante a usinagem.

Para que fossem ressaltados os resultados da ciclagem térmica, os corpos de prova foram lixados até a lixa 600 granas após os tratamentos térmicos, que serão citados a frente. Obteve-se assim um acabamento superficial suficientemente bom para poder-se visualizar melhor os efeitos da ciclagem térmica sobre a superfície dessas amostras.

III.1.2 – Tratamentos Térmicos

Os tratamentos térmicos foram realizados em banho de sal fundido. O sal usado para esse fim foi uma mistura eutética de Li_2CO_3 e K_2CO_3 (ponto eutético = 44% Li_2CO_3 e 56% K_2CO_3 ; 494°C)⁽⁵⁰⁾. Usou-se como recipiente para fusão cadinhos de grafita.

O objetivo principal dos tratamentos térmicos foi de estudar diferentes tamanhos de grão, diferentes fases presentes, assim como o efeito de uma textura orientada ao acaso quando o urânio é submetido a uma alternância térmica.

Abaixo, será analisado cada tipo de tratamento utilizado na parte prática da dissertação.

Tratamento térmico na região da fase α – Esse tratamento foi efetuado no sentido de se obter tamanho de grão grande. Deve-se ressaltar que a energia necessária ao crescimento de grão no urânio não é proveniente de uma prévia deformação que ele tenha sofrido. Essa energia é resultante do decréscimo de energia do sistema que acompanha o decréscimo de área do contorno de grão⁽⁵¹⁾.

Para evitar-se o efeito de dispersão de uma segunda fase existente no urânio, procurou-se efetuar o tratamento térmico na região de temperaturas mais elevadas do intervalo em que a fase α é estável. Pois, com isso obtém-se o coalescimento dessa segunda fase, diminuindo assim o seu efeito de tratamento de migração do contorno de grão.

O tratamento foi efetuado em banho de sal a 600°C, temperatura na qual se manteve por 1 hora. O resfriamento foi feito ao ar.

Tratamento térmico na região da fase β – Esse tratamento térmico corresponde a um aquecimento até uma temperatura da região de estabilidade da fase β . O corpo de prova é mantido a essa temperatura durante um certo intervalo de tempo, necessário, a homogeneização da nova estrutura. Posteriormente, o material é resfriado rapidamente em água.

O objetivo desse tipo de tratamento é fazer com que a textura do urânio não apresente orientação preferencial.

O presente tratamento foi efetuado aquecendo-se o material até 750°C em banho de sal, mantendo-se nesta temperatura por um período de 20 min. O resfriamento se fez em água.

Essa temperatura foi escolhida com o objetivo de se ter crescimento de grão de β e assim evitar a retenção de orientação preferencial⁽⁵²⁾.

Tratamento térmico na região da fase γ – Este tratamento consistiu no aquecimento da amostra até a temperatura de 850°C e posterior resfriamento em água. O corpo de prova foi mantido por 20 min. a temperatura acima designada.

Para esse tratamento foram selecionados dois corpos de prova, um de liga U-Mo e outro de urânio sem elemento de liga.

No caso da liga U-5%Mo, o tratamento foi efetuado com o sentido de se homogeneizar a estrutura na fase alotrópica γ . O resfriamento rápido faz com que haja uma transformação do tipo martensítica aparecendo uma fase notada por α'_b , que apresenta uma estrutura ortorrômbica distorcida^(53,54). Essa liga, estando nesse estado, terá sua estrutura transformada em $\alpha + \gamma$ (na forma de perlita fina) ao primeiro aquecimento que a mesma sofrer na ciclagem térmica, dentro do intervalo de temperaturas da fase γ .

Para o urânio isento de elemento de liga não existe a transformação $\gamma \rightarrow \alpha$ ⁽⁵⁰⁾, porém o objetivo foi tentar comparar o efeito desse tratamento com aquele na fase β . Com isso poder ter certeza que não houve retenção de estrutura orientada de α .

Tratamento de ciclagem entre as fases α e β – A transformação alotrópica que um metal sofre abre a possibilidade de se obter uma estrutura de grão fino do mesmo. Pois, essa transformação pode ser vista como um processo de recristalização⁽⁵⁵⁾.

Com isso, o processo de nucleação e crescimento envolvido numa transformação alotrópica é muito importante na determinação do tamanho de grão.

Quanto ao urânio metálico, devido a transformação $\beta \rightarrow \alpha$ ser do tipo martensítica, no caso de resfriamento em água, o efeito acima mencionado, de refino de grão, não é muito pronunciado.

Daí, ter-se a necessidade de repetir-se o ciclo de tratamento algumas vezes. No presente caso o ciclo foi repetido por três vezes.

O ciclo acima citado foi efetuado da seguinte maneira: aquecimento até 750°C em banho de sal, manutenção da amostra a essa temperatura por 20 minutos e resfriamento em água.

III.1.3 – Alternância Térmica

O ensaio de alternância térmica foi efetuado em aparelho fabricado na Divisão de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica

Este aparelho consiste num tubo de aço inoxidável, de 14 mm de diâmetro e 80 cm de comprimento, por onde se introduzia um par termo-elétrico, de cromel-alumel, para medir-se a temperatura reinante no interior da câmara, onde estavam as amostras de urânio, que deveriam ser sujeitas à alternância térmica. Essa câmara era um tubo cilíndrico de 34 mm de diâmetro por 16 mm de altura, a qual ligava-se à extremidade inferior do tubo acima mencionado. A extremidade superior foi adaptada no sentido de se segurar o aparelho a mão facilmente e poder, então, fazer os ciclos de alternância térmica. À câmara estava ligado, na sua parte inferior, um outro tubo de aço inoxidável de 6 mm de diâmetro pelo qual era admitido o argônio; com o objetivo de evitar a oxidação do urânio e suas ligas. O argônio sai pelo mesmo tubo em que passa o termo-par (Figura 10).

Esse aparelho era, alternativamente, colocado num banho de chumbo líquido e resfriado bruscamente em água corrente. Com o fito de evitar-se explosão, ao retornar-se da água para o banho de chumbo líquido, mergulhava-se o aparelho em um banho de óleo, o qual queimava-se ao entrar em contacto com o chumbo liquefeito.

O ciclo de alternância térmica apresenta as seguintes características:

- temperatura máxima do ciclo = 600°C ± 10°C
- temperatura mínima do ciclo = 100°C ± 5°C
- velocidade de aquecimento = 110°C/min ± 10°C/min
- velocidade de resfriamento = 120°C/min ± 5°C/min
- tempo à temperatura máxima = 3 min

O aparelho de ciclagem mantinha uma vazão de argônio no seu interior da ordem de 1 l/min. A saída do argônio era feita num recipiente de água, garantindo uma sobre-pressão de 30 cm H₂O.

Para o ensaio de alternância térmica foram preparados corpos de prova, denotados com as letras do alfabeto, com as seguintes características:

- A – urânio refundido sob criolita e tratado termicamente a 600°C por 1 hora para crescimento de grão α
- B – urânio fundido a vácuo proveniente do Argonne National Laboratory, Illinois, EE UU. Tratado termicamente com ciclagem térmica entre α e β (três ciclos).
- C – urânio refundido sob criolita sofrendo o mesmo tratamento que B.
- D e E – liga U-C e urânio refundido sob criolita, respectivamente que sofreram tratamento em β .

F e G – liga U-Mo e refundido sob criolita, respectivamente, que sofreram tratamento em γ .

H, I e J – liga U-C refundido sob criolita e proveniente de Argonne, brutos de fusão, respectivamente.

III.1.4 – Observação Microscópica

Para a observação microscópica do urânio e suas ligas preparou-se as amostras de duas maneiras, conforme o objetivo da operação⁽⁵⁷⁾:

- para observar as inclusões ou dispersão de uma segunda fase, fêz-se apenas um polimento mecânico. Primeiramente um lixamento a úmido com lixas de carboneto de silício: 180, 320, 400 e 600 granas. Posteriormente, passou-se a um polimento com pasta de diamante de 6μ e, logo após, um polimento de alumina-gama ($0,1\mu$) no aparelho Synttron de polimento vibratório.
- para observação de tamanho de grão, fêz-se o polimento mecânico até a pasta de diamante 6μ , após isto fêz-se um polimento eletrolítico usando-se como eletrólito uma solução com a seguinte composição volumétrica⁽⁵⁸⁾:
 - ácido perclórico 20%
 - álcool etílico 70%
 - etileno glicol 10%

As características operacionais do aparelho de polimento eletrolítico Zeiss-Jena, durante o polimento foram as seguintes:

- diferença de potencial catodo-anodo: 30 – 40 V
- duração do processo: 3 seg
- catodo usado: aço inoxidável

O polimento eletrolítico é feito no sentido de retirar a camada superficial da amostra, na qual houve deformação durante o polimento mecânico.

A micro-textura foi revelada ou por oxidação ao ar ou por oxidação anódica, utilizando-se o mesmo eletrólito de polimento e com uma diferença de potencial da ordem de 20 V.

III.3.2 – RESULTADOS

Os resultados tabelados (pág. 16) correspondem a 300 ciclos de alternância térmica entre as temperaturas de 100°C a 600°C .

Pode-se observar os corpos submetidos à alternância nas Figuras 11 e 12.

A Figura 13 apresenta a microestrutura de urânio fundido sob banho de criolita e submetido a 300 ciclos de alternância térmica. Observa-se uma segunda fase que está como rede contínua em contorno de grão.

Na Figura 14 e 15 pode-se observar a textura de urânio bruto de fusão e com refino de grão, respectivamente.

corpo prova	aumento de diâmetro (%)	observações
A	3,3	enrugamento grosseiro
B	2,0	certa rugosidade uniforme
C	—	pouca rugosidade
D	3,4	deformado
E	0,7	pouca rugosidade
F	—	superfície inalterada
G	—	superfície pouco alterada
H	7,0	deformado, enrugamento grosseiro
I	2,5	pouco enrugamento uniforme
J	3,7	enrugamento grosseiro

CAPÍTULO IV

DISCUSSÃO

Como foi apresentado na introdução da presente dissertação, o estudo teve por objetivo precípuo uma avaliação do problema geral da instabilidade dimensional do urânio metálico.

Procurou-se determinar a influência de determinadas variáveis sobre o comportamento do urânio quando submetido a alternância térmica. Porém, primeiramente, fêz-se um apanhado sobre as teorias apresentadas para explicação do fenômeno. Pode-se notar que tanto a teoria de FISHER como a de SEIGLE e OPINSKY, que se baseiam em difusão de lacunas em direções preferenciais, apesar de explicarem o crescimento, não explicam todos os fatos do fenômeno. No caso da Figura 7, em que se tem uma curva com dois ramos, sendo que o ramo superior tem uma energia de ativação maior do que o inferior, sugere que o fato predominante no mecanismo não depende de difusão e sim de efeito mecânico.

A teoria de BETTMAN, BROWN e FRANKEL recai na apresentada por FRANKEL e BROWN. Esta última é válida enquanto houver uma certa variação de orientação entre os grãos, mesmo após um certo número de ciclos, em que já houve um processo de acomodação. Portanto, para um número muito grande de ciclos dever-se-ia diminuir o crescimento e até parar, o que na realidade não acontece, pois o crescimento se dá indefinidamente.

A teoria da catraca-térmica proposta por BURKE e TURKALO é a que apresenta maior número de pesquisadores que a apoiam. Parece ser a teoria que mais consegue englobar os fatos experimentais relacionados na literatura internacional. HOLDEN⁽⁵⁹⁾ analisando essa teoria observa que o fenômeno apresenta muita semelhança com a natureza dos subgrãos originados por fluência ("creep"). Nota, ele, ainda, que o fenômeno de fluência está envolvido no crescimento sob alternância térmica, em adição ao efeito de catraca-térmica do contorno de grão. Esse efeito de catraca-térmica é consequência direta da falta de planicidade do contorno de grão, produzindo um efeito de trava, o que retarda o escoamento do mesmo.

Entretanto, pode-se inferir facilmente de todos os estudos feitos que a instabilidade dimensional do urânio está ligada diretamente à sua estrutura cristalina e à sua anisotropia.

No que se refere à influência das variáveis no urânio ciclado podem-se notar que os dois fatores principais seriam: a orientação preferencial do urânio, resultante de uma deformação mecânica, e o tamanho de grão do mesmo.

No presente estudo não foi possível estudar-se, praticamente, a influência de uma textura orientada preferencialmente na instabilidade dimensional do urânio, portanto, procurou-se relacionar as variáveis ligadas ao tamanho de grão. Com esse objetivo tratou-se de levantar dados existentes internacionalmente relativos ao efeito de elemento de liga, pois os mesmos agiam na estabilidade do urânio de duas maneiras:

- alterando a cinética de solidificação, criando maior quantidades de núcleos de solidificação.
- estabilizando outras fases alotrópicas, as quais apresentariam maior isotropia de propriedades.

Dentre os elementos de liga mais estudados destaca-se o carbono, pois este encontra-se presente em quase todo o urânio fabricado pelo método de redução do UF_4 por Mg metálico.

Pode-se observar, inclusive nos resultados experimentais que devido ao coalescimento dos carbonetos de urânio o efeito de núcleos de solidificação heterogênea é praticamente desprezível. Esse fato deveu-se, talvez por estar o teor de carbono nas amostras analisadas, superior a 0,3%, conforme já foi observado anteriormente⁽⁶⁰⁾.

Outro elemento estudado foi o molibdênio, que atua de duas formas sobre a instabilidade do urânio. Primeiramente, atua na estabilização da fase γ , ou seja atua sobre a cinética da transformação alotrópica γ para β , praticamente inibindo-a. Com isso passa a existir a transformação $\gamma \rightarrow \alpha$, a qual é inexistente para urânio puro. Ora, sendo γ uma fase cúbica de corpo centrado, apresenta características isotrópicas, acabando, portanto, com o problema da instabilidade.

A segunda forma pela qual o molibdênio atua sobre a instabilidade do urânio é pelo efeito de dispersão de uma segunda fase no urânio criando, analogamente ao carbono, centros de nucleação heterogênea. Essa segunda fase nada mais é do que carboneto de molibdênio, pois, existindo carbono no urânio metálico há uma certa preferência de formação de carboneto em detrimento da do carboneto de urânio.

Encontrou-se diversos trabalhos internacionais, que estudavam a estabilização dessa fase γ com a adição de um terceiro elemento de liga. O mecanismo pelo qual se dá essa estabilização está relacionado com a diminuição do parâmetro do reticulado da fase γ . Com isso chega-se a aumentar muito o intervalo de estabilização de γ .

Entretanto, apesar de que, do ponto de vista da estabilização dimensional do urânio, a adição de molibdênio mostrar-se muito eficiente, deve-se lembrar que do ponto de vista neutrônico existe o empecilho referente à secção de choque dos elementos de liga. Pois, para reatores plutonígenos ou arranjos subcríticos, os fluxos de nêutrons são relativamente pequenos e qualquer perda extra, que não às intrínsecas ao projeto do reator, ocasiona decréscimo de rendimento do aparelho, incompatível com a sua utilização.

O tamanho de grão do urânio está diretamente ligado ao enrugamento superficial do mesmo, quando este não foi deformado mecânicamente.

Deve-se ressaltar que, apresentando o urânio uma deformação alotrópica a relativamente baixa temperatura, houve a intenção de aproveitar-se do fato para provocar-se um refino de grão. Entretanto,

pelo fato dessa transformação não se dar por nucleação e crescimento, houve pouca efetividade na operação. Inclusive pelo fato de se deixar o corpo numa temperatura elevada por certo tempo, pode-se até aumentar o tamanho de grão do material.

O tratamento efetuado na fase β , além de possibilitar um refino de grão, que poderia ser conseguido talvez num resfriamento controlado, consegue deixar a estrutura no urânio metálico orientada ao acaso. Isso se houver possibilidade de que o contorno de grão de β varra toda a estrutura de α remanescente. Com isso consegue-se mesmo numa transformação do tipo martensítica não ter a mesma orientação anterior ao tratamento.

Nesse particular, o tratamento efetuado na região γ , fornece resultados melhores uma vez que não há possibilidade, no urânio sem liga, de passar-se diretamente de γ para α .

Quanto ao ciclo escolhido para ensaiar os corpos de prova, teve-se sempre em mente a obtenção do máximo de efeito da alternância com um mínimo de ciclos. Talvez a velocidade de resfriamento conseguida não fosse a ideal, pois ficou quase igual a de aquecimento, porém não foi possível, dentre os meios experimentais disponíveis, melhorá-la. Porém, conseguiu-se um intervalo de temperatura do ciclo bem elevado, utilizando-se praticamente a maior temperatura possível. A temperatura inferior foi conservada em 100°C para não se aumentar muito o tempo de cada ciclo.

A Figura 7, como já foi observado, apresenta uma inflexão à temperatura bem próximo a 425°C . HOLDEN⁽⁶¹⁾ correlaciona essa mudança de inclinação da curva com um comportamento fortemente anelástico e baixa viscosidade do contorno de grão acima de 400°C .

Como referência aos resultados macroscópicos observados e apresentados pode-se dizer que tanto os corpos de prova confeccionados com urânio americano como também o da liga U-Mo, deram como resultado o esperado. No caso do urânio americano pode-se observar que aquele, tratado para refinar o grão, mostrou-se menos susceptível à instabilidade dimensional. Observa-se que o refino de grão não foi tão efetivo e o motivo é realmente o já comentado. Para a liga U-Mo não se obteve qualquer alteração tanto de aspecto superficial, quanto dimensional. Isso devido a presença da fase γ .

Entretanto, com referência à liga U-C, pode-se dizer que os resultados não foram os esperados, uma vez que uma segunda fase dispersa deveria diminuir a instabilidade dimensional.

No que se refere aos corpos de prova refundidos sob banho de criolita fundida, pode-se observar que ficou completamente insensível aos diversos tratamentos efetuados. Exceto, o corpo de prova submetido a crescimento de grão de α . Estes resultados são razoáveis ao se observar a microestrutura desses corpos de prova grão. Ora, como o fenômeno da instabilidade dimensional tem seu mecanismo preso a escoamento de contorno de grão, essa segunda fase, sendo dútil, e assim disposta, impediu o desenvolvimento do crescimento, ou enrugamento superficial.

Essa segunda fase parece ser magnésio que estava disperso no urânio e com o fenômeno de formação de subgrãos pela alternância térmica facilitou a migração de mesmo para os contornos de grão (Figura 13). Isso é facilitado pela quase insolubilidade total do magnésio no urânio.

É preciso observar que todos os corpos de prova ao saírem da câmara da máquina de ciclagem apresentavam uma certa oxidação superficial devido talvez a uma certa unidade do argônio e possivelmente algum vazamento da câmara devido a trincas que apareceram na solda durante a ciclagem.

CAPÍTULO V

CONCLUSÕES

A presente dissertação teve como objetivo principal o estudo do problema geral da instabilidade dimensional do urânio metálico quando submetido a ciclos de alternância térmica.

Com isso, tentou-se avaliar as interrelações existentes entre as diversas variáveis, apresentadas em literatura internacional.

Da revisão efetuada, pode-se resumir o estudo nas seguintes conclusões:

- 1) A instabilidade dimensional do Urânio metálico é um fenômeno proveniente da grande anisotropia apresentada pela estrutura cristalina do urânio.
- 2) O fenômeno é muito aumentado, quando o metal sofre uma transformação mecânica, resultando numa textura de grande orientação preferencial.
- 3) Os diversos argumentos apresentados na explicação dos fenômenos decorrentes da instabilidade levam a crer que o processo depende, em grande parte, de um mecanismo de caráter mecânico, sendo pequena a possibilidade dele depender da difusão de lacunas.
- 4) As variáveis, tamanho de grão e elemento de liga, tem grande importância nos estudos desenvolvidos no sentido de estabilizar o urânio dimensionalmente.
- 5) As variáveis relativas ao ciclo térmico mostraram-se importantes nos trabalhos consultados, tendo-se que destacar: temperaturas, máxima e mínima, do ciclo; velocidades de aquecimento e resfriamento e tempo a temperatura máxima do ciclo.

A parte experimental efetuada, com o objetivo de avaliar qualitativamente a influência das diversas variáveis discutidas no trabalho, permitiu concluir o seguinte:

- 6) O número de ciclos de alternância térmica escolhido apresentou-se suficiente para poder-se avaliar a influência das variáveis estudadas.
- 7) A diferença de temperatura, máxima e mínima do ciclo térmico, utilizada foi suficiente para que ocorresse crescimento sob alternância térmica, apesar das velocidades de aquecimento e resfriamento serem da mesma ordem de grandeza.
- 8) O urânio, proveniente do Argonne National Laboratory, que sofreu um tratamento de refino de grão através de ciclagem entre as fases α e β , apresentou um enrugamento superficial bem menor do que aquele sem tratamento algum. Esse efeito foi apenas devido ao refino de grão, desde que era pequeno o nível de inclusões nesse urânio.
- 9) A liga urânio-molibdênio mostrou-se a mais estável de todas as usadas. Este efeito está de acordo com a literatura internacional que atribue à presença da fase γ , estabilizada pelo molibdênio.
- 10) O urânio contendo acima de 0,4% de carbono apresentou uma grande instabilidade dimensional. Esse resultado foi devido ao coalescimento dos carbonetos de urânio, anulando assim um possível efeito de tratamento por dispersão de uma segunda fase.
- 11) O urânio, fundido sob banho de criolita, que sofreu tratamento de crescimento de grão apresentou enrugamento superficial, como era de se esperar.
- 12) Amostras do mesmo urânio, do caso anterior, que apresentaram rede contínua de uma segunda fase em contorno de grão, não apresentaram enrugamento. Este resultado sugere que o mecanismo de crescimento sob alternância térmica é dependente da interação entre os grãos.

CAPÍTULO VI

PERSPECTIVAS PARA NOVOS ESTUDOS

Durante o desenvolvimento das experiências, efetuadas com o objetivo de fabricar os corpos de prova para a alternância térmica, o autor observou uma série de pontos que talvez pudessem ser melhor aclarados por pesquisas posteriores. Como sugestão pode-se citar:

- a) Estudo aprofundado sobre as características de refino de grão através de um tratamento térmico de ciclagem ao redor da temperatura de transformação alotrópica α e β do urânio, uma vez que a transformação $\beta \rightarrow \alpha$ é do tipo martensítico.
- b) Estudo sobre o efeito de uma fase, dútil ou dura, dispersa em contorno de grão de urânio sobre o mecanismo de crescimento sob alternância térmica. Procurar com isso analisar mais profundamente os mecanismos propostos.
- c) Estudo sobre a retirada de magnésio do urânio, no estado sólido, e sob vácuo, após o mesmo ter sofrido o ensaio de alternância térmica. Isto devido ao fato de que o magnésio disperso no urânio, encaminha-se para contorno de grão durante a ciclagem, sendo, portanto, facilitada a sua difusão através do urânio.

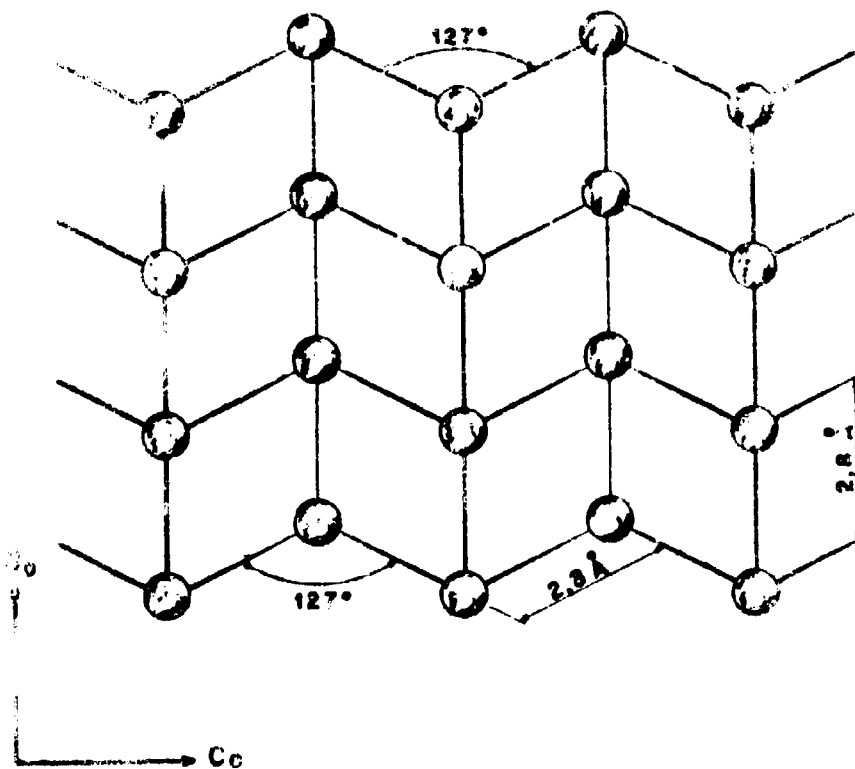


Figura 1 — Modelo do plano corrugado da estrutura cristalográfica do urânio-alfa (ref. 12)

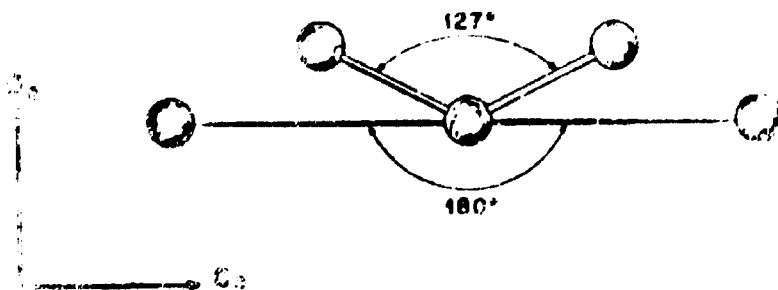


Figura 2 — Disposição dos átomos vizinhos mais próximos nos planos corrugados do urânio-alfa (ref. 12)

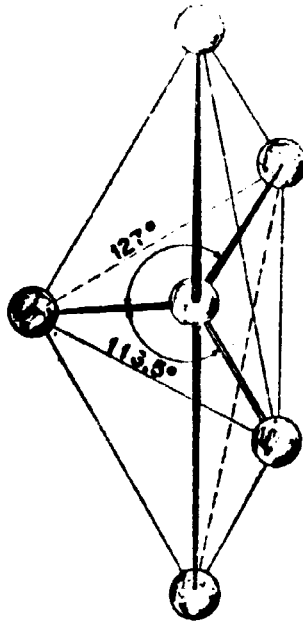


Figura 3 – Modelo do arranjo atômico que sugere ligação covalente entre os átomos de urânio-alfa (ref. 13).

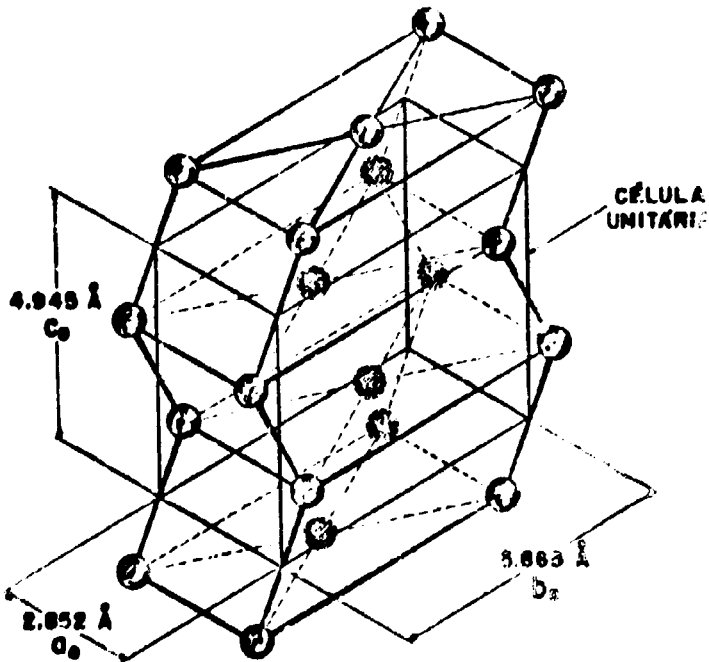


Figura 4 – Estrutura cristalina do urânio-alfa (ref. 14)

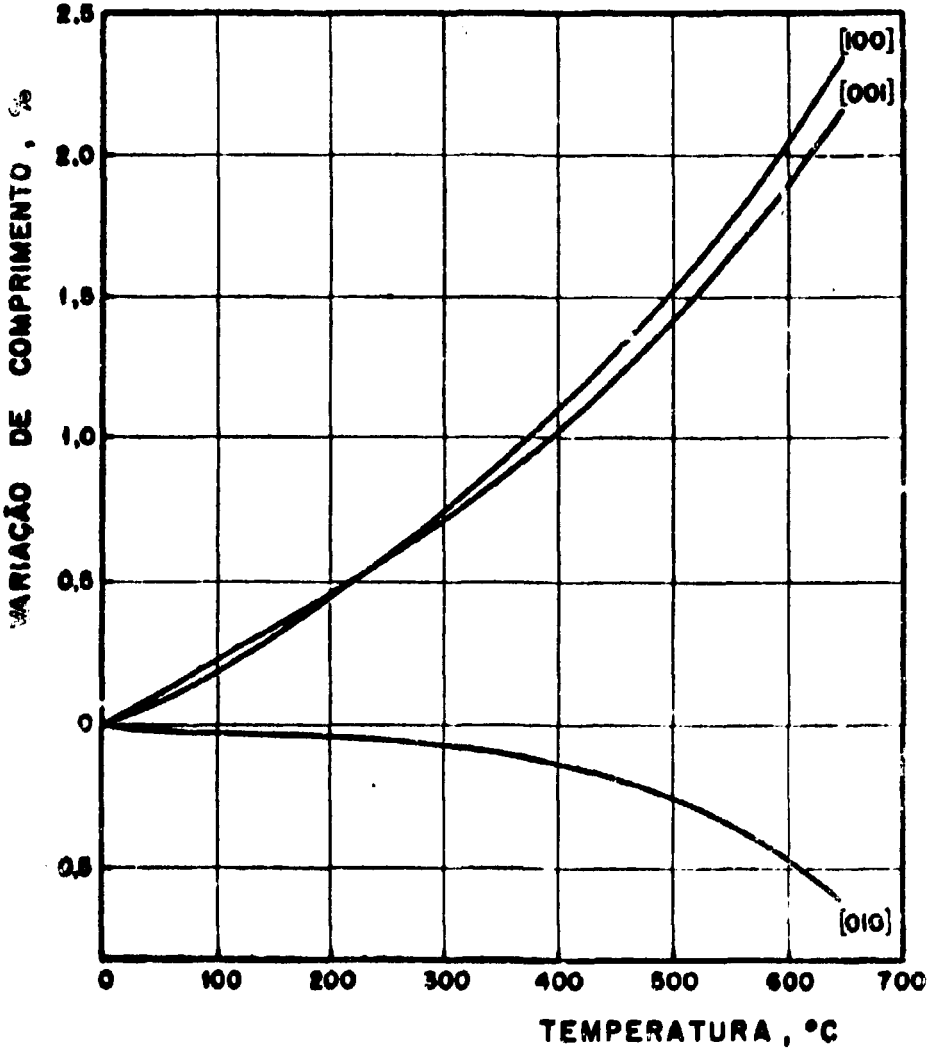


Figura 5 – Variação percentual do reticulado do urânio-alfa, nas principais direções cristalográficas, em função da temperatura (ref. 16).

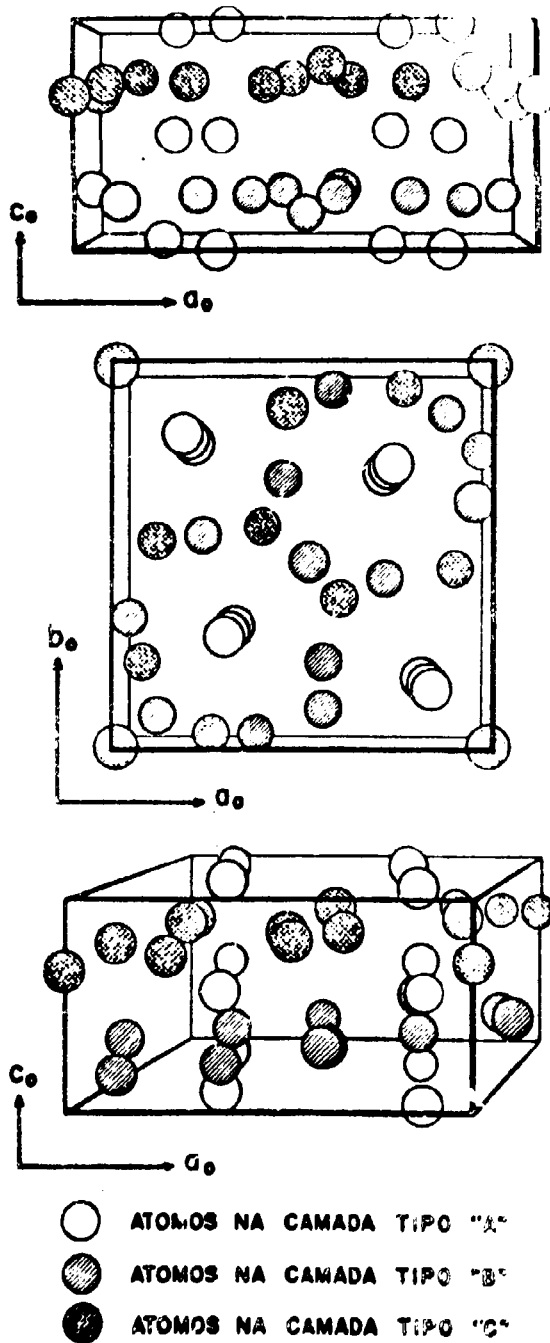


Figura 6 - Estrutura cristalográfica do urânio-beta (ref. 18).

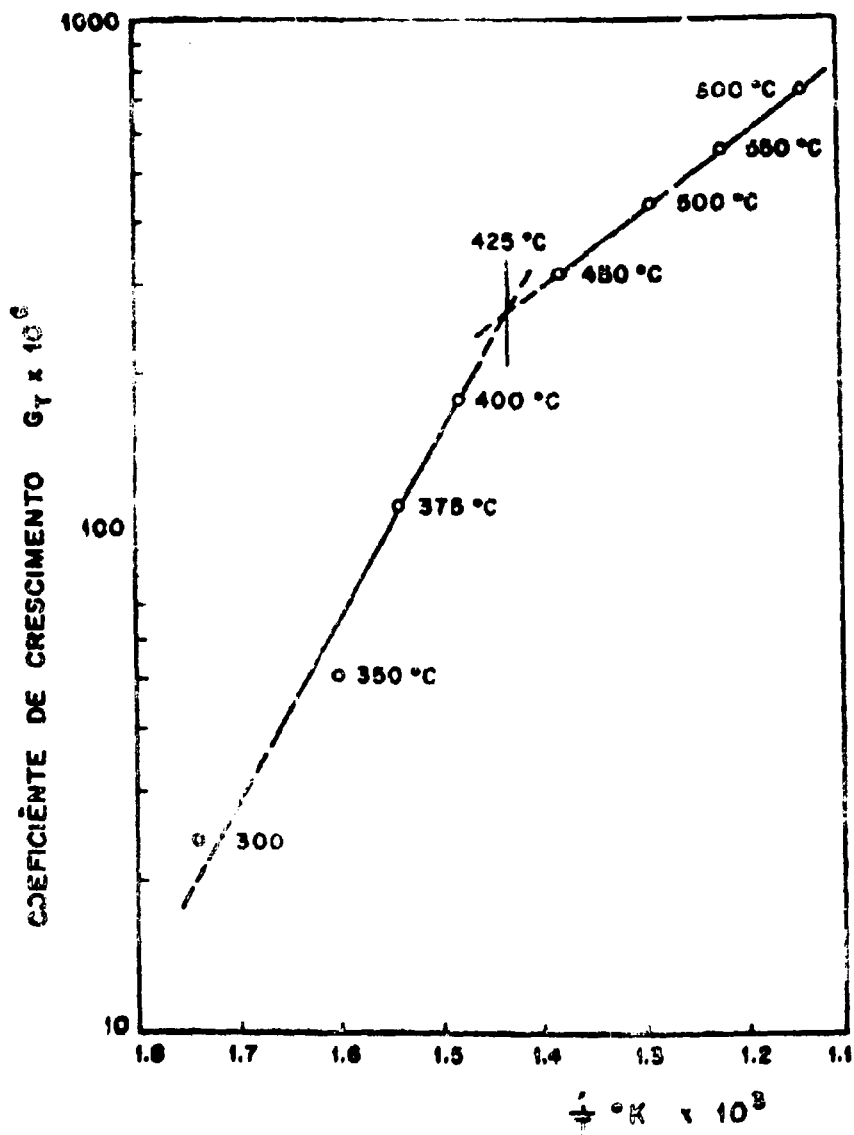


Figura 7 – Variação do coeficiente de crescimento a diversas temperaturas, em função do inverso da temperatura absoluta (ref. 30).



Figura 8 — Micrografia de liga U-C, bruta de fusão, apresentando forma e distribuição dos carbonetos de urânio. Sem ataque. Aumento: 100 X.

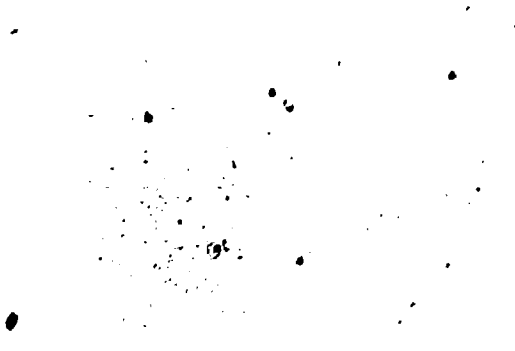


Figura 9 — Micrografia de liga U-Mo, bruta de fusão, mostrando a presença de carbonetos de molibdênio. Sem ataque. Aumento: 100 X.

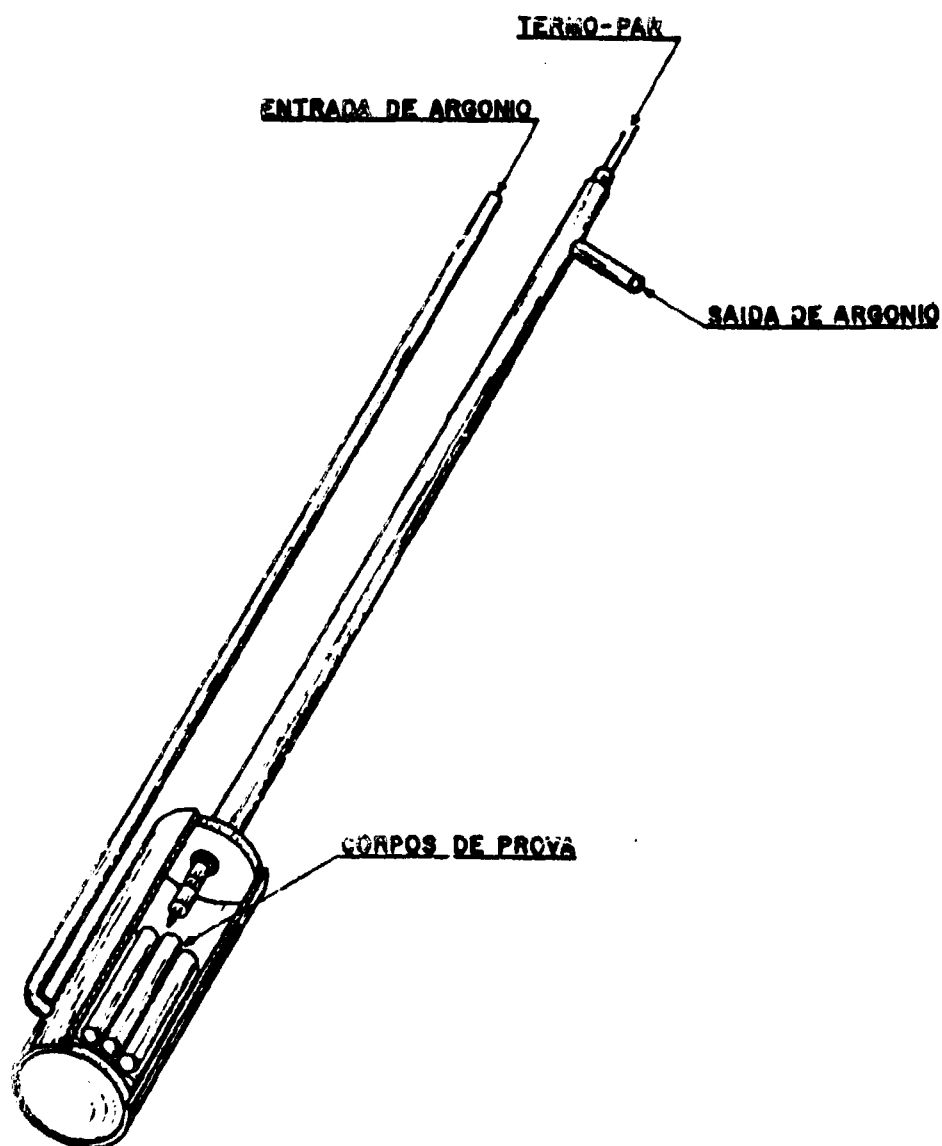


Figura 10 – Esquema do aparelho de alternância térmica.



Figura 11 – Aspecto superficial dos corpos de prova submetidos a 300 ciclos de alternância térmica. Da esquerda para a direita observam-se os seguintes corpos de prova: não ensaiado, I e D; não ensaiado e F; não ensaiado, J e D.



Figura 12 – Aspecto superficial dos corpos de prova submetidos a 300 ciclos de alternância térmica. Da esquerda para a direita observam-se os seguintes corpos de prova: não ensaiado, A, E, C, G e H.

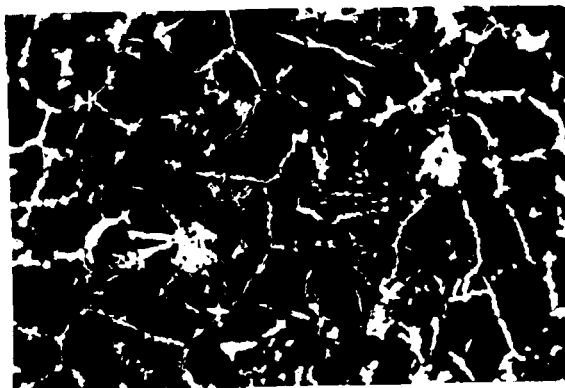


Figura 13 – Micrografia do corpo de prova H, após 300 ciclos de alternância térmica. Oxidado ao ar. Aumento: 200 X.



Figura 14 – Micrografia de urânio com poucas inclusões, no estado bruto de fusão, Oxidação anódica. Aumento: 100 X.



Figura 15 – Micrografia de urânio, com poucas inclusões após tratamento de refino de grão. Polimento eletrolítico. Oxidação ao ar. Aumento: 200 X.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. KOPELMAN, B. – "Materials for Nuclear Reactors", p. 38, McGraw-Hill Book, Co., Nova York, 1959.
2. KAPLAN, I. – "Nuclear Physics", p. 291-297, Addison-Wesley Publishing Co., Massachusetts, 1963.
3. ABREU, S. F. – "Recursos Minerais do Brasil", v. 2, p. 625-643, INT, Rio de Janeiro, 1962.
4. STEPHENSON, R. – "Introduction to Nuclear Engineering", p. 94-97, Kogakusha Co., Ltd., Tokio, 1958.
5. SOUZA SANTOS, T. D.; HAYDT, H. M. e FREITAS, C. T. – "Produção Experimental de Urânio e Tório Metálicos no Instituto de Energia Atômica" – Metalurgia – Rev. Ass. Bras. Met., v. 21, nº 87, p. 147-152, 1965.
6. FREITAS, C. T. – "Redução do Tetrafluoreto de Urânio por Magnésio. Estudo Experimental da Influência de Algumas Variáveis". Metalurgia Rev. Ass. Bras. Met., v. 24, nº 123, p. 131-138, 1968.
7. FREITAS, C. T.; CINTRA, S. H. L.; GENTILE, E. F. e CAPOCCHI, J. D. T. – "Fusão e Lingotagem de Urânio sob Vácuo em Forno Elétrico de Laboratório". Metalurgia-Rev. Ass. Bras. Met., v. 24, nº 125, p. 273-280, 1968.
8. AMBROZIO Fº, F. e GENTILE, E. F. – "Observação Metalográfica de Urânio". Apresentada ao XXV Congresso Anual da ABM, Pôrto Alegre, RS, 1970.
9. Ref.(1), p. 79.
10. HOLDEN, A. N. – "Physical Metallurgy of Uranium". p. 193, Addison-Wesley Publishing Co., Massachusetts, 1958.
11. TUCKER JR., C. W. – "The Crystal Structures of Metallic Uranium". Trans. ASM, v. 42, p. 762-770, 1950.
12. JACOB, C. W. e WARREN, B. E. – "The Crystalline Structure of Uranium". J. Am. Chem. Soc., v. 59, p. 2588, 1957.
13. HOLDEN, A. N. – "Physical Metallurgy of Uranium". Addison-Wesley Publishing Co., cap. 3, p. 27-29, 1958.
14. HALL, E. O. – "Twinning and Diffusionless Transformation in Metals". Butterworth Publishing Co., p. 84-85, Londres, 1954.
15. Ref.(13), p. 29-30.
16. RYLE, B. G. et al. – "Uranium" – "Reactor Handbook", v. 1, Materials cap. 7, p. 117, Interscience Publishers, Nova York, 1960.
17. TUCKER JR., C. W. – "The Crystal Structure of the β – Phase of Uranium". Acta Cryst., v. 4, p. 425-431, 1951.
18. Ref.(17), p. 429.
19. Ref (11), p. 762-770.

20. WILSON, A. S. e RUNDLE, R. E. – "The Structures of Uranium Metal". – Acta Cryst., v. 2, p. 126, 1939.
21. Ref.(13), p. 32.
22. BAUMRUCKER, J. E. e CHISWIK, H. H. – "Thermal Analysis of High-Purity Uranium". USAEC, ANL – 5234, p. 30-33, dez., 1953.
23. Ref.(16) p. 111-112.
24. BLUMENTHAL, B. – "The Transformation Temperatures of High-Purity Uranium", Journal of Nuclear Materials, v. 2, n° 1, p. 27, 1960.
25. Ref.(10) p. 181-194.
26. Ref.(10) p. 97-101.
27. ZEGLER, S. T.; MAYFIELD, R. M. e MUELLER, M. H. – "Effects of Fabrication and Heat Treatment Variables Upon the Thermal Cycling Behavior of Uranium". Trans. ASM, v. 50, p. 913, 1958.
28. Ref.(10), p. 186.
29. BURKE, J. E. e TURKALO, A. M. – "The Growth of Uranium Upon Thermal Cycling". – Trans. ASM, v. 50, p. 943-944, 1958.
30. MAYFIELD, R. M. – "The Effect of Cycling Variables Upon the Growth Rate of 300°C Rolled Uranium" ANL-4905, Illinois, 1955.
31. BURKE, J. E.; HOWE, J. P. e LACY, C. E. – "Dimensional Instability of Uranium". – TID-73, v. 1, n° 3, p. 85, 1951.
32. MUEHLENKAMP, G. T.; SCHWOPE, A. D. e JACKSON, L. R. – "Deformation of Uranium During Thermal Cycling". TID-5061, v. 1, p. 233-241, 1952.
33. Ref.(30), p. 13.
34. CHISWIK, H. H. – "Effects of Preferred Orientation and Grain Size on the Dimensional Stability of Uranium on Thermal Cycling and Irradiation" – USAEC-Report ANL-4955, Argonne National Laboratory, 1956.
35. Ref.(34),
36. Ref.(16), p. 121
37. ZEGLER, S. T. e CHISWIK, H. H. – "Effects of Alloying Elements Addition of Mo, Si, Al, Ti, V and Nb on the Thermal Cycling Stability of Uranium". – Advances in Nuclear Engineering, v. 2, parte 2, p. 148, Pergamon Press, 1957.
38. SHOBER, F. R.; MARSH, L. L. e MUEHLENKAMP. – "Development of Dimensionally Stable Uranium Alloys". BMI-961, p. 12-21, Ohio, 1954.
39. COLOMBIE, M.; DECOURS, J.; FOURE, M. e MAGNIER, P. – "Observations Complementaires sur l'Affinage du Grain de Coulee d'Alliages d'Uranium". Influence de Faibles Additions" – CEA-R-3529, 1968.

40. MAGNIER, P. -- "Affinage de Grain α et Etude Metallurgique de l'Alliage D'Uranium, Sicral F 1 pour Elements Combustibles. CEA-R-3905, p. 4, 1969.
41. CHISWIK, H. H. et al. -- "Advances in Physical Metallurgy of Uranium and its Alloys". Proceedings of the II United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, P/713, v. 6. p. 394-412, 1958, United Nations, Geneva.
42. Ref.(41), p. 402-403.
43. Ref.(37), p. 140-145.
44. CABANE, G. e DONZE, G. -- "Stabilisation de 1^e Phase. γ , dans les Alliages Ternaires". Journal of Nuclear Materials, v. 1, p. 364-374, 1959.
45. Ref.(44), p. 372-373.
46. Ref.(6), p. 131-138.
47. Ref.(7), p. 273-280.
48. Ref.(38), p. 17.
49. Ref.(39), p. 2.
50. WILKINSON, W. D. -- "Uranium Metallurgy", v. 1, p. 304, Interscience Publishers, 1962.
51. Ref.(10), p. 121.
52. BUTCHER, B. R. e BAVERSTOCK, D. -- "The Effect of the $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ Phase Transformation on the Preferred Orientation of α Uranium", Journal Of Nuclear Materials, v. 3, n^o 1, p. 31, 1961
53. MAY, G. H. -- "The annealing of a quenched uranium-5^a/o Molybdenum Alloy". Journal of Nuclear Materials, v. 7, n^o 1, p. 73-79, 1962.
54. BRUN, G. -- "Relations d'Orientation entre Phases dans les Transformations $\gamma \rightarrow \alpha$ des Alliages U-Mo". CEA-R 2973, p. 9-10, 1966.
55. Ref.(10), p. 140.
56. GLADMAN, T. -- "Grain Control in the Solid State with Allotropic Change". Grain Control, reprints of University of Sussex, p. 57-65, mar., 1969.
57. Ref.(8)
58. "Elypovist - Electrolytic Polishing Equipment" -- Catálogo da Zeiss-Jena, para polimento eletrolítico.
59. Ref.(10), p. 192.
60. Ref.(38), p. 12-21.
61. Ref.(10), p. 72-73.

