



TEXTURAS CRISTALINAS EM LIGAS ALUMÍNIO-URÂNIO DETERMINADAS
POR DIFRAÇÃO DE NÉUTRONS

Adriana M. V. de Azevedo

DISSERTAÇÃO E TESE - IEA 116
IEA - DT - 116

AGOSTO/1979

CONSELHO DELIBERATIVO

MEMBROS

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

PARTICIPANTES

Regina Elisabete Azevedo Baretta
Flávio Gori

SUPERINTENDENTE

Rômulo Ribeiro Pieroni

**TEXTURAS CRISTALINAS EM LIGAS ALUMÍNIO-URÂNIO DETERMINADAS
POR DIFRAÇÃO DE NÉUTRONS**

Adriana M. V. de Azevedo

Dissertação para obtenção do Título de "Mestre em
Ciências" — Orientador Dr. Carlos B. R. Perente.
Apresentada e defendida em 30 de junho de 1978,
no Instituto de Energia Atômica.

Série DISSERTAÇÃO E TESE IEA

INIS Categories and Descriptors

B22

Aluminium base alloys

Uranium alloys

Texture

Rolling

Grain orientation

Neutron diffraction

Nota: A redação, ortografia e conceitos são de responsabilidade dos autores.

SUMÁRIO

	Página
CAPÍTULO I	
INTRODUÇÃO	1
CAPÍTULO II	
TEXTURA CRISTALINA E MÉTODO DE MEDIDA	5
CAPÍTULO III	
PARTE EXPERIMENTAL	11
III.1 – Preparação das Ligas	11
III.2 – Laminação das Ligas	11
III.3 – Preparação das Amostras	11
III.4 – Arranjo Experimental	22
III.5 – Obtenção das Curvas de Intensidade	27
CAPÍTULO IV	
TRATAMENTO DE DADOS	31
IV.1 – Correções dos Dados Experimentais	31
IV.2 – Determinação da Unidade Absoluta	33
IV.3 – Construção das Figuras de Pólos	37
IV.4 – Erros na Determinação de uma Figura de Pólos	41
CAPÍTULO V	
ANÁLISE DOS RESULTADOS	43
V.1 – Determinação das Orientações Preferenciais	43
V.2 – Resultados Obtidos	46
V.2.1 – Figuras de Pólos	46
V.2.2 – Microfotografias	58
CAPÍTULO VI	
CONCLUSÕES GERAIS	62

APÊNDICE 1

PROJEÇÕES ESTEREOGRÁFICAS 69

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS 73

TEXTURAS CRISTALINAS EM LIGAS ALUMÍNIO-URÂNIO DETERMINADAS POR DIFRAÇÃO DE NÊUTRONS*

Adriana M. V. de Azevedo

RESUMO

Texturas de ligas alumínio-urânio e de alumínio, laminadas a quente, foram determinadas por difração de nêutrons. Placas de ligas contendo 8,0%; 21,5% e 23,7% de urânio em peso, bem como de alumínio puro, foram obtidas em um processo de laminação por passes, com 15% de redução em cada passe e redução total de 75%. Durante a laminação a temperatura foi mantida em 600°C. Ligas com baixo teor de urânio são sistemas com duas fases, nos quais um composto intermetálico UAl_4 , ortorrômbico, aparece disperso em uma matriz de alumínio puro. A adição de uns poucos por cento de Si em tais ligas, leva à formação de UAl_3 , cúbico simples, em lugar de UAl_4 . A liga Al-U(23,7%) foi preparada com 2,2% de Si em peso.

As figuras de pólos (200), (040) e (121) da fase UAl_4 da liga Al-U(21,5%), mostram um alto grau de orientação definida por (010) [100]. A reflexão (111) da fase UAl_3 da liga Al-U (23,7%) - Si (2,2%) não indicou a presença de orientações preferenciais. As figuras de pólos (111) da matriz das ligas com 21,5% e 23,7% de urânio em peso, podem ser descritas satisfatoriamente pela mesma textura fracamente desenvolvida ou seja, $\{113\} \langle 332 \rangle$. A figura dos pólos (111) da matriz da liga Al-U (8%), tem a textura $\{113\} \langle 543 \rangle$, que é um caso intermediário entre a textura $\{110\} \langle 112 \rangle$ do alumínio e as texturas das ligas com mais alto teor de urânio. Para o alumínio puro e a liga com 8% o grau de textura é ainda baixo, contudo mais alto do que nos casos precedentes. As figuras de pólos (200) e (121), do UAl_4 da liga com 8% mostram a mesma textura que a liga com 21,5%, embora consideravelmente menos acentuada.

Os resultados indicam que a textura da matriz depende mais de concentração de urânio, do que das texturas das fases intermetálicas.

Este trabalho apresenta também uma melhoria na técnica utilizada nas medidas de textura, pela utilização de uma amostra totalmente imersa no feixe. O método tira proveito da baixa absorção de nêutrons dos materiais estudados, bem como da variação desprezível do espalhamento múltiplo, o que ocorre em uma amostra que tenha forma conveniente e não apresente textura acentuada.

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO

O modo normal em que um material se apresenta, em particular um metal ou uma liga metálica, é na forma de agregados policristalinos^(1,2). Um agregado policristalino se caracteriza por reunir um

(*) Este trabalho foi realizado com o apoio financeiro da Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), dentro da Pesquisa/Tarefa nº 22.01.61.62.

Aprovada para publicação em Julho/1978.

grande número de cristais individuais, usualmente de tamanho microscópico. Dentro de um agregado, um cristal individual, ou grão cristalino, tem no geral uma orientação cristalográfica diferente das orientações de seus vizinhos. Considerando as orientações de todos os grãos do agregado, estas podem estar distribuídas totalmente ao acaso, ou podem apresentar uma distribuição preferencial em torno de uma ou mais orientações particulares. No segundo caso, diz-se que o agregado tem uma orientação preferencial, ou orientações preferenciais no caso de apresentar mais de uma, ou simplesmente textura^(5,6,12,20).

A natureza da textura de um material policristalino, e o grau em que ela se manifesta, dependem das condições que envolveram o processo de obtenção do material. Um metal fundido ao se resfriar em uma forma ou molde apresenta, quase que certamente, uma textura que está ligada ao processo de resfriamento, às dimensões do molde e à própria natureza do metal. Materiais policristalinos que sofrem processo de conformação, a frio ou a quente, tais como trefilação para a obtenção de fios, extrusão na obtenção de tubos, perfis e vergalhões, laminação na obtenção de chapas metálicas, ou outro qualquer processo mecânico, estarão sujeitos ao aparecimento de textura, a qual dependerá não só do processo utilizado como também da existência de orientações prévias.

Grande importância tem sido dada ao estudo de texturas, tendo em vista o importante efeito que ela tem sobre as propriedades físicas dos materiais⁽⁶⁾. Materiais que possuem orientações ao acaso têm propriedades idênticas em todas as direções; mas quando eles possuem orientações preferenciais, observa-se uma anisotropia nas suas propriedades, o que pode ser favorável ou não, dependendo do uso que se pretende dar ao material.

A textura pode ser determinada por diversos métodos, dentre eles a difração de raios-x ou de nêutrons⁽¹³⁾. Em casos, a técnica de difração de nêutrons pode ser mais vantajosa do que a de raios-x, dada a natureza distinta das radiações empregadas. Como quase todos os elementos têm um coeficiente de absorção para nêutrons 10^3 vezes menor do que para raios-x, na quase totalidade dos casos, o feixe de nêutrons penetra muito mais profundamente no material do que o de raios-x. Este comportamento, tão acentuadamente diferente do feixe de nêutrons, faz com que a textura observada não esteja limitada a uma camada superficial do material, como ocorre com raios-x. Uma outra característica do feixe de nêutrons é que a área de sua seção transversal é, no geral, várias ordens de grandeza maior do que a de um feixe de raios-x. Esta é uma característica que não está ligada à natureza das radiações, mas ao fato de que as fontes de nêutrons existentes são muito menos intensas que as de raios-x normalmente utilizadas. Estes dois fatos, em conjunto, implicam em que o volume irradiado no caso de nêutrons é bem maior do que no caso de raios-x. Uma consequência imediata é que o número de grãos cristalinos, que contribuem para o feixe difratado, é bem maior com nêutrons, a ponto de ser possível o estudo de materiais que contenham grãos de grandes dimensões, o que é virtualmente impossível no caso de raios-x^(5,31). Uma aplicação bem específica é a determinação da textura de uma fase de uma liga metálica, fase que esteja dispersa em uma matriz. Especialmente no caso em que a quantidade da fase dispersa seja muito pequena.

Neste trabalho utilizou-se a difração de nêutrons na determinação da textura cristalina em placas de ligas de alumínio e urânio, com diferentes porcentagens em peso de urânio, obtidas por laminação a quente. Nas ligas alumínio-urânio tem-se a formação de três compostos intermetálicos UAl_2 , UAl_3 e UAl_4 . Os dois primeiros têm um tipo de estrutura comum, enquanto que o terceiro possui uma estrutura mais complexa^(7,28). O composto UAl_2 é cúbico de fases centradas (fcc) e tem $a_0 = 7,81 \text{ \AA}$ como parâmetro da rede⁽²⁷⁾. Esse composto pertence ao grupo espacial $Fd3m$ e possui uma estrutura semelhante à estrutura do Cu_2Mg ⁽⁷⁾. O UAl_3 é cúbico simples^(14,27) com parâmetro $a_0 = 4,29 \text{ \AA}$ e pertence ao grupo espacial $Pm3m$, sendo sua estrutura análoga à estrutura do $AuCu_3$ ⁽¹⁴⁾. Os grãos cristalinos desse composto apresentam-se ou em formas arredondadas ou em longas cadeias⁽¹⁵⁾. Já o composto intermetálico UAl_4 , cristaliza-se no sistema ortorrômbico, cuja cela unitária tem os parâmetros $a = 4,41 \text{ \AA}$, $b = 3,27 \text{ \AA}$ e $c = 13,71 \text{ \AA}$, pertencendo ao grupo espacial Ima ou $Imma$ ^(14,27). Os grãos cristalinos de UAl_4 podem ser formados durante o resfriamento de uma liga fundida e apresentam-se sob a forma de agulhas ou losangos^(8,15). Eles também podem ser formados através de uma transformação

do UAl_3 em UAl_4 , que ocorre em $730^\circ C$. Neste caso vai haver um aumento no volume do composto final de tal modo que eles se apresentarão fissurados^(10,14).

O diagrama de equilíbrio^(1,7,8) (Figura 1) da liga alumínio-urânio mostra que, dependendo da quantidade de urânio, se tem uma combinação diferente dos compostos mencionados, podendo a combinação incluir alumínio ou urânio. Para concentrações menores do que 68,8% em peso de urânio, tem-se a formação do composto UAl_4 que aparece junto com alumínio puro. A liga assim constituída solidifica-se a $640^\circ C$. O composto UAl_3 é estável acima de $730^\circ C$, e em condições de equilíbrio não aparece na liga solidificada, quando a concentração de urânio está abaixo dos 68,8% mencionados.

Para estabilizar o UAl_3 à temperatura ambiente, é necessário que se adicione elementos como boro, índio, tâlho, carbono, silício, cério e chumbo^(8,14). O silício constitui-se no melhor elemento para esse fim, visto que os outros, muito embora atuem de forma semelhante, não acarretam a mesma melhoria em propriedades mecânicas, como a que resulta do seu emprego^(10,14). Além disso, em virtude do isoformismo do UAl_3 e do USi_3 , a adição do silício forma um composto intermetálico, o $U(Al,Si)_3$ que tem estrutura ordenada do tipo $AuCu_3$, como o próprio UAl_3 .

De uma maneira geral, duas ligas com a mesma concentração de urânio, uma contendo o composto UAl_3 e outra o UAl_4 , comportam-se diferentemente durante um processo qualquer de conformação. A liga com UAl_3 é mais plástica, e essa plasticidade maior é atribuída por alguns autores^(8,14,15), ao enriquecimento em alumínio puro na matriz. Entretanto, a morfologia dos grãos de UAl_3 e de UAl_4 parece ter maior influência na plasticidade das ligas. Tanto é assim que quando os grãos de UAl_4 são globulizados por um tratamento térmico, a plasticidade aumenta^(8,14). A forma dos grãos de UAl_3 , aliada à maior plasticidade deste composto, quando comparado com o UAl_4 ⁽¹⁰⁾, explica a plasticidade da liga que o contém.

As ligas alumínio-urânio são empregadas na fabricação de elementos combustíveis nucleares^(8,14,15), pois permitem obter uma dispersão de material físsil em matriz de baixa secção de choque de absorção para nêutrons térmicos. A preparação dessa liga é fácil e seu custo é baixo.

O Centro de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica tem procurado desenvolver métodos de fabricação de elementos combustíveis planos, contendo núcleos de ligas alumínio-urânio revestidos de alumínio, visando sua utilização em reatores de pesquisa^(1,10,14,15). O alumínio é bem resistente à corrosão da água, a baixas temperaturas, e assim esse tipo de elemento combustível tem grande emprego em reatores de pesquisa ou reatores tipo piscina. Sua utilização entretanto é inadequada no caso de reatores que operam em temperaturas elevadas, em virtude de sua baixa resistência mecânica e do fato de ser pouco resistente à corrosão nessas temperaturas⁽⁸⁾. Na obtenção de placas de elemento combustível é empregada a laminação a quente⁽¹⁵⁾. Se a plasticidade do núcleo for bem menor do que a do revestimento, ocorre o chamado efeito halteres, que é um defeito terminal da placa laminada caracterizado por um aumento localizado do núcleo, com correspondente adelgaçamento do revestimento^(10,26). Esse defeito pode ser atenuado ou diminuindo a plasticidade do revestimento, ou aumentando a plasticidade do núcleo, ou alterando ambas^(10,14,26).

O conhecimento das orientações preferenciais das ligas alumínio-urânio pode ser útil na avaliação das propriedades físicas e mecânicas das placas de elemento combustível, bem como pode servir na determinação dos parâmetros do método de fabricação⁽³²⁾. Em vista disso, procuramos contribuir ao estudo dessas ligas, determinando a textura do alumínio de ligas com diferentes concentrações de urânio, laminadas a quente. Determinamos também a orientação dos grãos de UAl_4 de algumas ligas e dos grãos de UAl_3 em uma das ligas que continha silício. O estudo foi completado com a determinação da textura de alumínio, laminado nas mesmas condições.

No capítulo II deste trabalho, é feita uma revisão breve das principais técnicas empregadas na determinação de texturas, e da sua importância no conhecimento das propriedades dos materiais. No capítulo III é descrito o procedimento experimental utilizado na realização da experiência, incluindo-se a

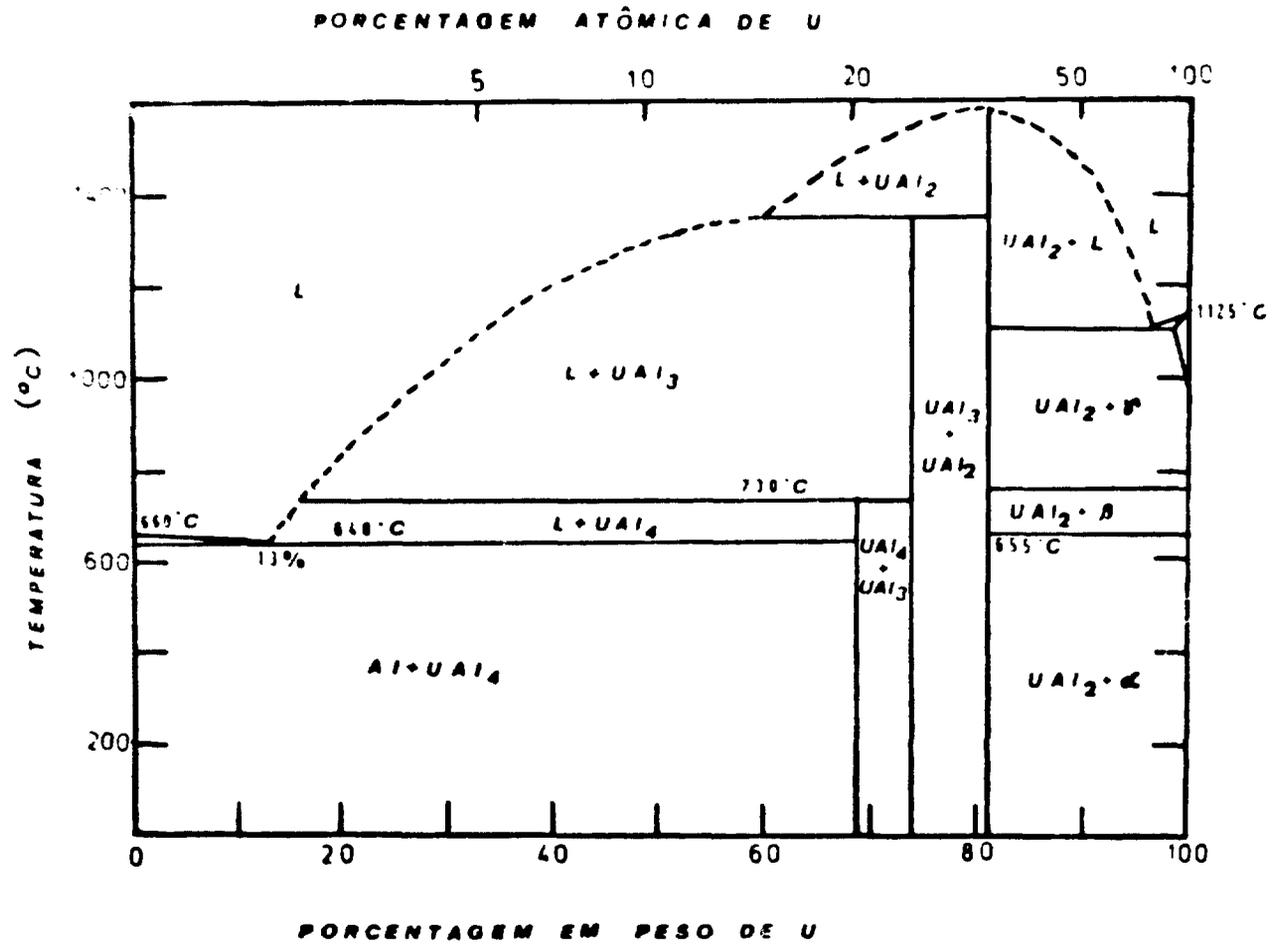


Figura 1 - Diagrama de Equilíbrio da Liga Alumínio-Urânio

preparação das ligas, o processo de laminação, a preparação das amostras e os métodos empregados nas medidas. O capítulo IV mostra como foram determinadas as unidades absolutas e como foram construídas as figuras de pólos, a partir dos dados experimentais. No capítulo V são apresentadas as orientações preferenciais prováveis obtidas pela análise das figuras de pólos das ligas estudadas. Finalmente, no capítulo VI, os resultados são comparados procurando-se estabelecer uma correlação entre as texturas das fases das ligas, bem como determinar a influência da concentração de urânio nessas texturas.

CAPÍTULO II

TEXTURA CRISTALINA E MÉTODOS DE MEDIDA

Como definido no capítulo I, um material policristalino com textura tem os seus grãos orientados preferencialmente em torno de uma ou mais orientações particulares.

Dado o fato de que a maioria dos monocristais são anisotrópicos, isto é, têm diferentes propriedades em diferentes direções, um material policristalino tendo orientações preferenciais deve ter também propriedades direcionais em maior ou menor grau^(1,2,25). Esta anisotropia das propriedades de um material policristalino reveste-se de grande importância quando este material é usado industrialmente. É o caso, por exemplo, de chapas metálicas utilizadas em estamperia, onde a anisotropia do comportamento plástico do metal recozido causa sérias dificuldades durante o repuxamento de uma peça. As dificuldades não são somente causadas pelo fluxo não homogêneo do metal, que provoca o aparecimento de abas não uniformes na peça, mas também pela utilidade pobre em certas direções cristalográficas⁽²⁵⁾. Esta mesma anisotropia pode ser útil no caso de fabricação de peças assimétricas, onde a direcionalidade é aproveitada para facilitar o repuxamento⁽⁶⁾. Um exemplo muitas vezes citado por vários autores^(3,6,12,25) é o da melhoria da permeabilidade magnética nas placas de aço-silício utilizadas em núcleos de transformadores elétricos. A direção de mais fácil magnetização é a [100], e na utilização das placas é conveniente que a maioria dos grãos cristalinos esteja orientada com a direção [100] na direção de laminação e planos (001) paralelos ao plano de laminação, o que é conseguido com vários ciclos de laminação a frio e recozimento acima de 1.000°C. Em tecnologia nuclear há o caso do urânio metálico na forma de barras que, quando submetido a ciclos de radiação e temperatura nas condições severas durante a operação de um reator, apresenta crescimento anisotrópico a ponto de causar deformação nas barras⁽⁵⁾.

O estudo das orientações preferenciais pode levar à obtenção de um material que seja isotrópico em certas propriedades, como por exemplo, a plasticidade. Essa isotropia pode ser obtida por meio de uma completa ausência de orientações preferenciais, o que é difícil de ser conseguido, ou por dois ou mais tipos balanceados de orientações preferenciais, as quais tenham efeitos opostos⁽²⁵⁾.

O mecanismo de formação da textura pode ser explicado como uma reorientação dos grãos do material causado por um fluxo plástico o qual pode também modificar a forma desses grãos cristalinos⁽⁶⁾. A textura também depende da temperatura do material durante a deformação, especialmente se a temperatura é alta o suficiente para permitir recristalização durante a deformação.

Algumas observações podem ser feitas a respeito de texturas⁽⁶⁾:

- a) A presença de grãos alongados ou achatados nem sempre implica em uma determinada textura, ou mesmo na presença de qualquer textura; assim como a presença de grãos equiaxiais não implica em uma orientação ao acaso.

- b) A partir de um conhecimento pormenorizado da textura de uma amostra metalúrgica ou mineralógica, pode ser possível deduzir fatos sobre a sua história mecânica e térmica.
- c) Por meio de um programa controlado de trabalho mecânico e recozimento, é possível em certos casos minimizar a formação de textura ou desenvolver uma textura desejada, mas é em geral difícil de conseguir uma orientação totalmente ao acaso.
- d) As tensões plásticas próximas da superfície de uma amostra podem diferir das tensões do seu interior, especialmente na laminação e na trefilação, e podem produzir texturas que variam com a profundidade abaixo da superfície.
- e) A simetria de uma orientação preferencial tende a igualar-se à simetria das tensões principais, mas fatos perturbadores podem surgir de tal forma que destruam a igualdade dessas duas simetrias (por exemplo, a retenção parcial de uma textura assimétrica inicial).
- f) Uma determinada mudança de forma pode ser produzida por deformações intermediárias de várias espécies, e estas podem modificar a textura final, de tal modo que as texturas não podem ser unicamente previstas a partir da mudança total da forma.
- g) A orientação de um monocristal durante laminação, forjamento, trefilação, compressão, ou estiramento, não segue necessariamente um caminho idêntico ao de um grão orientado de modo semelhante pertencente a uma matriz policristalina.
- h) Orientações preferenciais podem ser de um tipo simples, as quais podem ser especificadas adequadamente por uma ou mais "texturas ideais", ou podem ser tão complexas de forma a requerer descrição por meio de figuras de pólos ou de figuras de pólos inversas.
- i) A anisotropia das propriedades mecânicas em algumas amostras podem ser influenciadas em maior ou menor grau por inclusões alongadas ou achatadas, lacunas, fissuras ou contornos de grãos, assim como pelas orientações preferenciais de grãos. Mesmo a presença de tensões residuais anisotropicamente distribuídas podem introduzir direcionalidade em algumas propriedades mecânicas.

A descrição de uma textura em termos de orientações ideais, pode ser somente aproximada⁽²⁰⁾. Idealmente a descrição da textura deve especificar a orientação de cada grão cristalino na amostra, e sendo assim, é conveniente alguma forma de projeção na qual se possa representar, em modo quantitativo e qualitativo, a distribuição estatística das orientações dos grãos da amostra. Se todos os pólos (v. apêndice I) dos planos cristalográficos equivalentes de cada grão de um agregado policristalino são marcados em uma mesma projeção, então, em vez de pólos isolados e únicos como se teria no caso de um monocristal, cada ponto do diagrama resultante é caracterizado por uma densidade de pólos por unidade de ângulo sólido em torno desse ponto. As projeções assim obtidas são utilizadas na descrição de uma textura cristalina, onde uma representação da densidade de pólos pode ser feita por meio de linhas de contorno de mesma densidade de pólo ou por graduações de tonalidade de uma cor. Quando essas projeções são projeções estereográficas (v. apêndice I) a figura obtida é conhecida como figura de pólos. Essas figuras de pólos são somente um meio de expressar informações sobre a textura⁽²⁰⁾. Elas são uma representação dos dados obtidos em uma medida de textura e, a não ser que cada grão cristalino do material seja medido e representado na figura separadamente, não existe uma forma fácil de dar uma única interpretação da figura de pólos. É usual comparar uma figura de pólos com uma projeção de um monocristal, em uma ou mais orientações ideais, procurando descrever a figura de pólos em termos do desvio do ideal. Conseguir estabelecer as orientações ideais, de uma determinada figura de pólos, requer uma certa prática, bem como implica em alguma subjetividade.

A textura cristalina de um material pode ser determinada experimentalmente por diversos métodos.

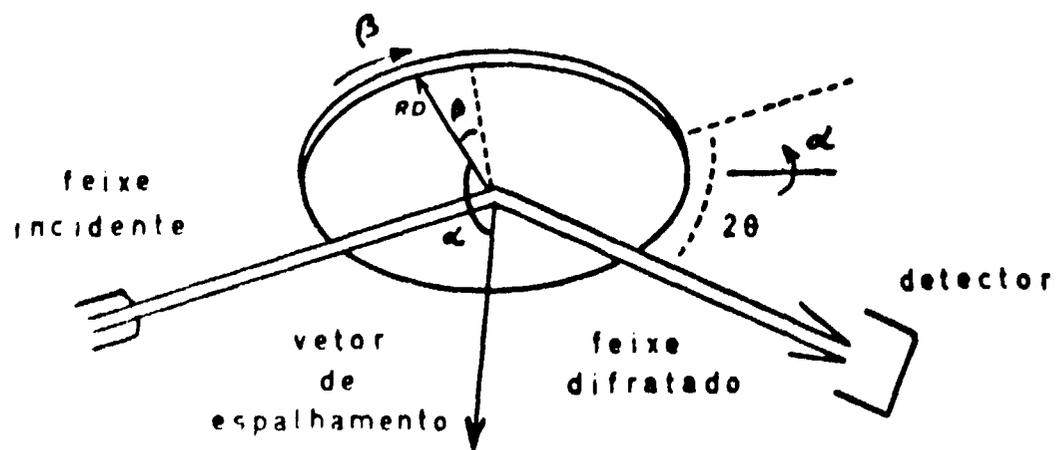
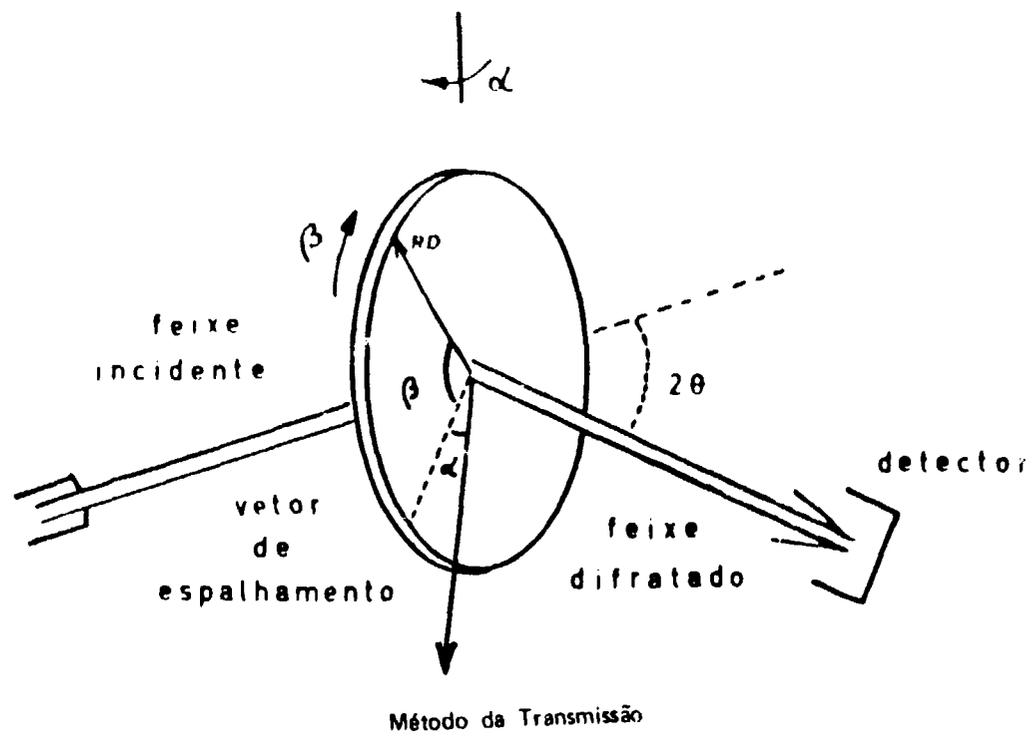
Um método proposto por Szpunar, Olés, Buras, Pietras e Sosnowska⁽³¹⁾, utiliza a difratometria de tempo de voo. Neste método, um feixe de nêutrons colimado e pulsado incide em uma amostra com textura. Os nêutrons espalhados pela amostra incidem em um detector colocado em um ângulo 2θ com o feixe incidente. O detector é conectado a um analisador multicanal, que separa os nêutrons de acordo com suas energias. A separação é feita levando em conta o tempo que a partir do instante inicial de formação de um pulso, um nêutron leva para chegar ao detector, o qual está relacionado diretamente com sua energia cinética. Como resultado é obtido um gráfico do número de contagens versus comprimento de onda dos nêutrons que mostram picos distintos, os quais são indexados da maneira usual. Fazendo medidas com posições diferentes da amostra, observa-se que a altura dos picos varia, sendo que essa variação está relacionada com a textura do material.

Um método indireto de medida de textura, é o baseado na anisotropia das propriedades físicas de um material policristalino possuindo textura⁽¹⁴⁾. Desde que a anisotropia das propriedades físicas de um material decorre da orientação preferencial dos grãos cristalinos individuais, não só as propriedades físicas do material podem ser deduzidas da figura de pólos, mas também, inversamente, a informação sobre o grau de orientação preferencial pode ser deduzida da anisotropia. Assim, um material que possui um alto grau de orientação dá uma boa correlação entre a anisotropia de suas propriedades físicas e a orientação preferencial de seus grãos. A informação obtida é, de certo modo, incompleta, desde que a quantidade medida é a média sobre as orientações preferenciais de todos os grãos. Mas ela permite que se tenha uma indicação do grau de orientação do material expresso por um número simples, o qual é de interesse em muitas aplicações industriais.

Entre todos os métodos existentes, aqueles de utilização mais freqüente na determinação de texturas empregam as técnicas de difração de raios-x ou de nêutrons. Com raios-x pode-se empregar métodos fotográficos, que são qualitativos e que têm sido pouco utilizados atualmente, ou o método do difratômetro, mais preciso por envolver medidas quantitativas⁽¹²⁾. Por este último método, a investigação de todas as possíveis orientações dos grãos é feita posicionando-se o difratômetro em uma determinada reflexão de Bragg (hkl). Com o difratômetro assim posicionado, mede-se a variação da intensidade (a qual está relacionada diretamente com a textura do material) que ocorre quando a amostra é girada em torno de três eixos mutuamente perpendiculares. A rotação em torno desses três eixos é representada pelos seguintes ângulos, que são mostrados na Figura 2.

- o ângulo θ entre a direção do feixe incidente e a direção do feixe refletido, sendo que este último está dirigido para o detector. Este ângulo é utilizado somente na escolha da reflexão de Bragg (hkl).
- o ângulo α entre o vetor de espalhamento e a superfície da amostra.
- o ângulo β entre a projeção do vetor de espalhamento sobre a superfície da amostra e alguma direção escolhida, em geral a direção de laminação (RD, do inglês "rolling direction").

No método do difratômetro, para se fazer o estudo completo da textura de um material, que esteja na forma de uma placa com dimensões maiores do que a secção transversal do feixe de radiação utilizado, é necessário que se utilize dois métodos de medida. Esses dois métodos são chamados de método da transmissão e método da reflexão, por envolverem respectivamente as geometrias da transmissão e da reflexão na medição das variações de intensidade, ocasionadas pela presença de textura. Durante a aplicação do método da reflexão, verifica-se que no caso em que o ângulo α tem um valor relativamente pequeno, o ângulo de incidência do feixe sobre a amostra é muito pequeno, tornando-se rasante em $\alpha = 0$. Por este motivo o feixe não chega a atravessar a amostra, saindo e entrando pelas bordas da placa, o que implica em se ter de corrigir a intensidade observada, o que não seria facilmente conseguido. A utilização do método da transmissão resolve o problema. Entretanto, este método não pode substituir inteiramente o método da reflexão, uma vez que o fato idêntico ao da reflexão ocorre para valores relativamente grandes do ângulo α . Além disso, o goniômetro de



Método da Reflexão

Figura 2

posicionamento da amostra (que será descrito no próximo capítulo), interpõe-se entre o feixe incidente e a amostra, o que não ocorre no método da reflexão. Por fim, a utilização de dois métodos de medida torna necessária uma normalização entre os dados obtidos em um e outro método.

Com a modificação da posição da amostra há uma variação do caminho percorrido pelo feixe no seu interior, de tal forma que a absorção sofre também uma variação. É necessário, portanto, uma correção da absorção. Se a absorção for bastante alta, o que ocorre quase que exclusivamente com o emprego de raios-X, esta correção torna-se desnecessária no método da reflexão, uma vez que há uma compensação da variação de absorção por uma variação de volume irradiado⁽¹²⁾. No método da transmissão continua sendo indispensável a correção.

Uma terceira correção que se faz necessária é a referente à variação do volume irradiado, que deve ser aplicada aos dois métodos.

Uma descrição dos métodos é dada a seguir⁽¹²⁾:

a) Método da transmissão

Neste método, o qual foi desenvolvido por Decker, Asp, e Harker, a amostra na forma de placa é colocada com a direção de laminação na vertical, e pode ser rodada em torno de um eixo vertical, que é o eixo w do difratômetro⁽²⁴⁾, e em torno de um eixo perpendicular à placa, que é um dos eixos do goniômetro, como é mostrado na Figura 2. A rotação em torno do eixo vertical corresponde ao ângulo α , e a rotação em torno do eixo perpendicular à placa corresponde ao ângulo β . Na posição escolhida como inicial ($\alpha = 0^\circ$), a superfície da placa contém a linha bissetriz das direções do feixe incidente e difratado. As duas rotações citadas, movem o pólo do plano (hkl) de reflexão escolhido sobre a superfície da figura de pólos, a qual é construída numa projeção paralela ao plano da amostra. Para a determinação da figura de pólos é conveniente que se meça a intensidade em intervalos de 5° ou 10° tanto para α como para β . O método da transmissão é utilizado somente na medida de uma parte da figura de pólos, pois a região do centro não pode ser determinada pelo motivo citado acima.

b) Método da reflexão:

Este método, é utilizado para se determinar a parte central da figura de pólos, a qual não pode ser determinada pelo método da transmissão. No método da reflexão, desenvolvido por Schulz, o feixe incidente atinge a amostra do mesmo lado pelo qual o feixe difratado emerge. Este método necessita de um goniômetro que permita a rotação da amostra sobre seu próprio plano, ou seja, em torno de um eixo normal à sua superfície e, também, em torno de um eixo horizontal pertencente à superfície da amostra, o qual é ajustado de maneira, na condição inicial, a formar ângulos iguais com o feixe incidente e o feixe difratado.

Nota-se portanto, que o método de transmissão e o de reflexão se complementam, determinando toda a figura de pólos. Usualmente o da transmissão é utilizado para determinar o intervalo de α que vai de 0° a 50° , e o de reflexão de 40° a 90° . A região de intersecção, isto é, de 40° a 50° , é necessária para se calcular o fator de normalização entre os dois métodos.

Jetter e Borié⁽¹⁷⁾ desenvolveram um método na determinação da textura de um material policristalino, que utiliza a amostra na forma de uma esfera. Neste caso, não são necessárias correções na intensidade obtida, desde que a rotação da esfera seja feita em torno de um eixo que passe pelo seu centro. Isto é, não é necessário que se corrija quanto à geometria, pois esta não é alterada, e também não é necessária nenhuma correção quanto à absorção, pois não há variação no volume irradiado e portanto a influência da absorção será sempre a mesma, em qualquer posição da amostra. Nesse método é utilizada apenas uma geometria, a de transmissão, e não se tem limitação na rotação da amostra, podendo-se determinar toda a figura de pólos.

Um outro método introduzido, por J. T. Norton⁽¹²⁾, não necessita de correção nas curvas de intensidade. Neste método, são empregadas várias amostras na forma de cilindros de mesmo diâmetro. Eles são cortados de maneira a que seus eixos formem um certo ângulo com a direção de laminação da amostra original. Cada um desses cilindros corresponde a um dado ângulo α na determinação da textura e, experimentalmente, a medida é feita colocando-se cada um deles verticalmente no difratômetro. As curvas de intensidade com o ângulo β são obtidas simplesmente girando-se o cilindro em torno de seu eixo. Este método, contudo, implica na obtenção de um número relativamente grande de amostras, cortadas da amostra original. E se certos cuidados não forem tomados, a forma e a superfície usinada da amostra podem introduzir erros na medida.

Os métodos descritos acima foram todos desenvolvidos tendo em vista a utilização de raios-x. Todos eles podem ser, ou já foram, adaptados ao caso de nêutrons, onde o espalhamento múltiplo e não a absorção, é o maior problema. Como visto no capítulo I, a alta absorção dos raios-x restringe o estudo da textura a materiais com espessura fina, uma vez que eles penetram muito pouco nos materiais. Como foi também mencionado, um feixe de raios-x tem a área da sua seção transversal bem pequena, o que, somado à sua pequena penetração, implica em um pequeno volume irradiado. Este volume nem sempre representa o material como um todo, podendo conter somente uma quantidade limitada de grãos cristalinos o que prejudica bastante a estatística na determinação da orientação preferencial dos grãos.

Uma outra dificuldade aparece no caso de um material que não tenha a textura homogênea⁽¹³⁾. Se uma placa tem uma textura que varia bastante com a profundidade a partir da superfície, o que pode facilmente acontecer durante o próprio processo mecânico de formação da placa, a figura de pólos não representa uma só textura. Isto ocorre porque, para cada valor do ângulo α , o feixe tem uma inclinação diferente em relação à superfície da amostra, dando como resultado curvas de intensidade que representam texturas diferentes. Quanto mais inclinado o feixe mais superficial a textura observada. Ainda por causa da alta absorção, a preparação das amostras se torna mais trabalhosa, pois elas precisam ter espessuras relativamente finas. A maneira com que a amostra é preparada é fundamental, pois, como os raios-x analisam uma pequena espessura, qualquer defeito na superfície implica em um erro grande na medida. Ou seja, se o método de preparação introduzir orientações preferenciais dos grãos da superfície da amostra, serão estas as orientações observadas, e não as originais.

Como já foi mencionado no capítulo I, a pequena seção de choque de absorção de nêutrons para quase todos os elementos, bem como o fato de que a seção transversal de um feixe de nêutrons é da ordem de centímetros quadrados, tornam possível que o volume da amostra irradiada seja cerca de 10^3 vezes maior do que o volume irradiado no caso de raios-x⁽¹³⁾. Sendo assim, com a difração de nêutrons mede-se a textura de um volume muito maior da amostra, e problemas como texturas não homogêneas, estatística dos grãos cristalinos e preparação de amostras, são de pouca importância no caso de nêutrons.

Uma das dificuldades encontradas na utilização de nêutrons é a baixa intensidade disponível em um reator nuclear⁽¹³⁾. Para evitar períodos longos nas medidas experimentais, é que os feixes são formados com seções transversais de dimensões relativamente grandes, para permitir a utilização de amostras de grande volume. Isso só é possível porque a absorção, na maioria dos casos, é baixa. A resolução não pode ser tornada muito boa, pelo mesmo motivo de baixa intensidade das fontes de nêutrons. Um problema que também aparece é o do espalhamento múltiplo, que é bastante acentuado quando as amostras são de grandes dimensões. O espalhamento múltiplo ocorre no caso de nêutrons pelo fato da absorção ser bem baixa e estas poderem penetrar profundamente em um material policristalino⁽⁴⁾. Este tipo de espalhamento impede a proporcionalidade entre a intensidade difratada e o volume da amostra⁽¹³⁾. No caso de amostras de grandes dimensões, a própria hipótese de que os feixes não são atenuados durante o espalhamento de Bragg não tem validade. Estes são praticamente os únicos problemas que surgem na aplicação da técnica da difração de nêutrons ao estudo de textura. Entretanto, em certos casos, e em se tomando algumas precauções quanto ao formato das amostras, os problemas do espalhamento múltiplo e da atenuação dos feixes no espalhamento de Bragg podem ser contornados. No capítulo III, na parte referente à preparação das amostras, serão mencionados os procedimentos adotados quanto a estes problemas.

A Tabela I mostra uma comparação entre as principais propriedades das técnicas de difração de raios-x e nêutrons, que estão ligadas mais diretamente à determinação de texturas cristalinas^(2,19). As diferenças nas propriedades estão relacionadas às naturezas distintas das radiações, bem como às diferenças essenciais entre as fontes geradoras das duas radiações.

CAPÍTULO III

PARTE EXPERIMENTAL

III.1 – Preparação das Ligas

As ligas de alumínio-urânio utilizadas neste trabalho foram produzidas no Centro de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica. Na preparação das ligas, o método adotado foi o de fundir o alumínio a uma temperatura de 800°C em um cadinho de grafita, adicionando em seguida urânio em pedaços de pequeno tamanho para facilitar a sua dissolução. Em geral é colocado um excesso de 10% de urânio em peso, em relação à composição desejada, para que a perda por oxidação, durante a fusão, seja compensada^(6,15). No caso da liga com silício, este é adicionado junto com urânio metálico no alumínio fundido. O forno após a adição de urânio é desligado várias vezes para que seja agitada a liga por meio de um bastonete de grafita, buscando-se uma dissolução rápida do urânio e a homogeneização da liga. Em seguida é feito o vazamento em lingoteiras de grafita. É feita ainda uma segunda fusão do material para que se tenha homogeneização completa do urânio na liga. É realizada uma análise química da liga para a determinação da concentração resultante de urânio. Nas ligas preparadas para este trabalho, as análises indicaram as seguintes composições: Al-U(8%), Al-U(21,5%) e Al-U(23,7%) – Si(2,2%)

III.2 – Laminação das Ligas

As ligas preparadas foram em seguida laminadas a quente, na temperatura de 600°C. Esta laminação foi também realizada pelo Centro de Metalurgia Nuclear do Instituto de Energia Atômica.

As ligas, previamente aquecidas, são passadas em um laminador por cerca de 10 vezes, sendo que em cada passe a redução da espessura é de aproximadamente 15% até chegar-se a uma espessura de 3,2 mm. A porcentagem total de laminação é de aproximadamente 75%. Em cada passe a amostra é girada de 180° e a laminação é feita rapidamente para que a temperatura da amostra não sofra grande variação. Mesmo assim, de dois em dois passes a liga é reaquecida para que a temperatura seja mantida em torno de 600°C. Depois de resfriada, as bordas irregulares da placa laminada são aparadas restando uma placa retangular, na qual é marcada a direção de laminação.

III.3 – Preparação das Amostras

Em todos os métodos apresentados no capítulo anterior, as amostras são maiores do que a seção transversal do feixe utilizado. Isto acontece pois são métodos desenvolvidos para a utilização de raios-x, conforme já tivemos oportunidade de mencionar. Utilizar uma amostra totalmente imersa no feixe pode evitar pelo menos a correção quanto à variação do volume irradiado. Se a absorção for baixa pode, em princípio, evitar também a correção de absorção. Entretanto, produzir uma amostra muito pequena compatível com as dimensões de um feixe de raios-x é bem difícil, principalmente porque se tem que conservar a informação sobre o processo de conformação utilizado (por exemplo, a direção de laminação). No caso de nêutrons, todavia, não existem tais problemas pois em primeiro lugar o próprio

Tabela I
Comparação entre as Principais Propriedades
da Difração de Raios-X e Nêutrons

Propriedade	Raios-X	Nêutrons
intensidade do feixe	$\approx 10^{10}$ quanta/ $\text{cm}^2 \times \text{s}$	10^6 a 10^7 nêutrons/ $\text{cm}^2 \times \text{s}$
resolução	boa	regular
absorção de radiação	alta $\mu \approx 10$ a 10^2 cm^{-1}	baixa (exceto Cd, B, Li e terras raras) $\mu \approx 10^{-1} \text{ cm}^{-1}$
espalhamento múltiplo	desprezível	alto em amostras de grande volume
área do feixe	pequena $\approx 1 \text{ mm}^2$	grande $\approx 10^4 \text{ mm}^2$
volume da amostra	pequeno $\approx 10^{-1} \text{ mm}^3$	grande $\approx 10^4 \text{ mm}^3$
espalhamento magnético adicional	não existe	existe
preparação da amostra	difícil	fácil
uniformidade do feixe	boa	incerta
flexibilidade na forma da amostra	limitada	boa
aplicação a amostras com grãos grandes	incerta	possível
aplicação a amostras não homogêneas	incerta	possível
sensibilidade a defeitos superficiais ocasionais, impurezas e outros	razoável	muito baixa

feixe já tem dimensões relativamente grandes. Depois não há absorção considerável, de tal forma que é possível utilizar amostras de grandes dimensões. Deve-se tomar cuidado, contudo, com o espalhamento múltiplo e a atenuação do feixe no espalhamento de Bragg, problemas mencionados no capítulo anterior. Tendo em vista essa possibilidade, iniciamos as nossas medidas utilizando amostras imersas no feixe de nêutrons. A absorção de nêutrons por alumínio, urânio e silício é, em todos os três casos, desprezível.

A primeira amostra medida foi a de Al-U(8%). A placa dessa liga, tinha dimensões 6 x 6 cm, e foi cortada em placas menores de 3 x 3 cm. As quatro placas menores foram sobrepostas e presas com dois rebites de alumínio em sua parte central. Em seguida, a amostra foi aparada de tal forma a restar um prisma com base octagonal de altura aproximadamente igual a 1,3 cm e diagonal da base aproximadamente 3,0 cm (Figura 3a). Para a execução das medidas experimentais utilizamos na saída do feixe uma máscara de cádmio retangular, com uma largura da ordem de 2,54 cm. Com isto procuramos delimitar o feixe, de modo que ele incidisse preferencialmente na amostra, evitando que incidisse no porta-amostra. Cádmio é comumente utilizado na delimitação de feixes, pois esse elemento possui uma alta seção de choque para nêutrons térmicos, sendo portanto opaco para os nêutrons do feixe. Determinamos com essa amostra a textura da matriz de alumínio da liga. Foi necessária a utilização do método da transmissão, para ângulos α variando de 0° a 45° , e o da reflexão, para ângulos α variando de 45° e 90° . Nos dois métodos os ângulos nos intervalos mencionados, variam de 5° em 5° . Medimos também, pelo método da reflexão, as curvas de intensidade para os ângulos de α entre 0° e 45° . Com estas curvas e as obtidas pelo método de transmissão, calculamos os fatores de normalização em cada ângulo. Como ficou estabelecido no capítulo II, o método da reflexão não pode ser utilizado para ângulos menores do que um certo valor, 45° por exemplo, no caso em que a amostra tem dimensões maiores que as do feixe. Porém, neste caso foi possível a medida pois as dimensões da amostra eram menores que as dimensões da seção transversal do feixe de nêutrons. Sendo assim, em qualquer posição todo o volume da amostra era irradiado. A Tabela II mostra os valores encontrados para o fator de normalização para os ângulos α de 0° a 45° . O fator de normalização foi calculado pela expressão:

$$f = \frac{\sum_{\beta} I_{\text{trans}}^{\alpha}}{\sum_{\beta} I_{\text{refl.}}^{\alpha}} \quad (1)$$

A Figura 4a mostra as curvas de intensidade obtidas para $\alpha = 30^\circ$, pelos métodos de reflexão e transmissão. E a Figura 4b mostra a curva obtida por transmissão comparada à obtida por reflexão já normalizada, no mesmo $\alpha = 30^\circ$.

A média dos valores da tabela para esta amostra é 1,13, e portanto o desvio entre os dois métodos resultou ser cerca de 13%. Em princípio, esse desvio foi atribuído à possibilidade da amostra, no método da reflexão, não estar sendo totalmente banhada pelo feixe, por causa da limitação imposta pela máscara de cádmio.

Sendo assim, aumentamos as dimensões da fenda para 3,2 cm. Com essa nova fenda medimos a textura da matriz de alumínio da liga que contém 21,5% em peso de urânio.

A amostra utilizada nessa medida foi construída do mesmo modo que a amostra anterior. Utilizamos o método da transmissão para ângulos α entre 0° e 45° e o da reflexão para os ângulos $\alpha = 0^\circ$, 15° e de 40° a 90° . Nos intervalos citados a variação dos ângulos foi de 5° . As curvas de intensidade dos ângulos 0° , 15° , 40° e 45° foram utilizadas na obtenção dos fatores de normalização. Na Tabela II, são apresentados esses fatores de normalização calculados pela equação (1). O fator de normalização médio foi calculado e resultou em 1,19. A Figura 5a mostra a curva de intensidade obtida pelos dois métodos para $\alpha = 0^\circ$. Na Figura 5b aparece a curva obtida por reflexão depois de normalizada em comparação com a obtida por transmissão. Mesmo com o aumento das dimensões do feixe com a modificação da fenda, verificamos que os dois métodos ainda nos davam resultados distintos, sendo necessária a normalização.

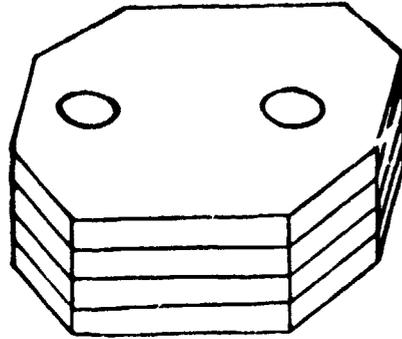


Figura 3a – Amostra com 4 Placas

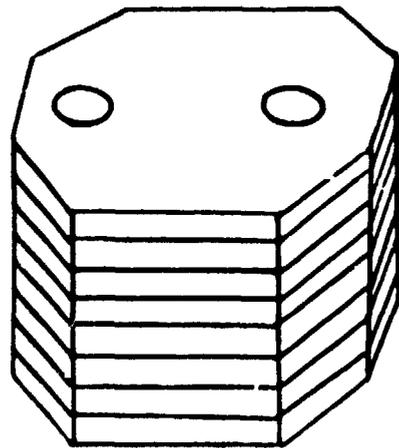


Figura 3b – Amostra com 8 Placas

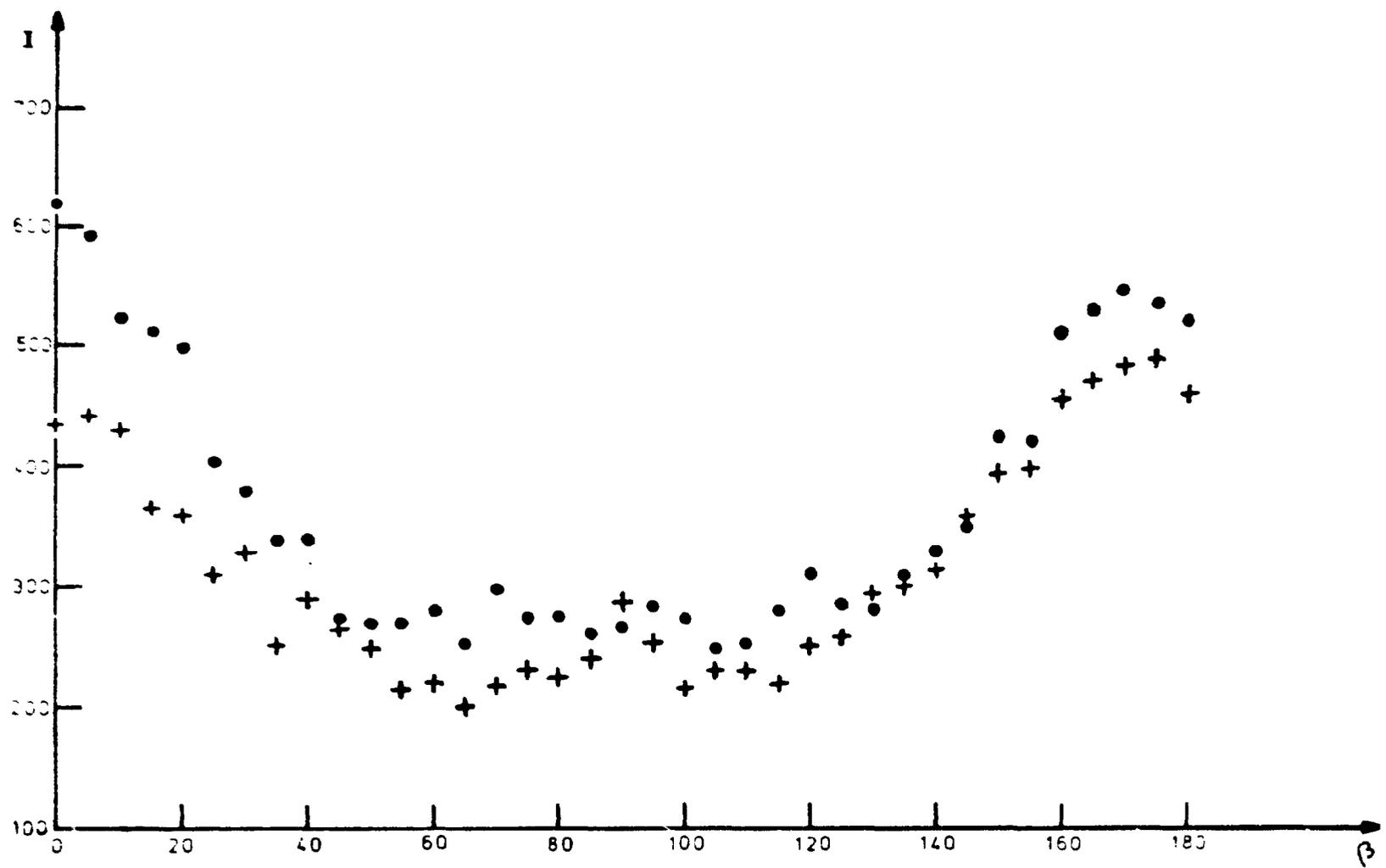


Figura 4a - Curvas de Intensidade para Al-U (8%), $\alpha = 30^\circ$
 ● transmissão
 + reflexão

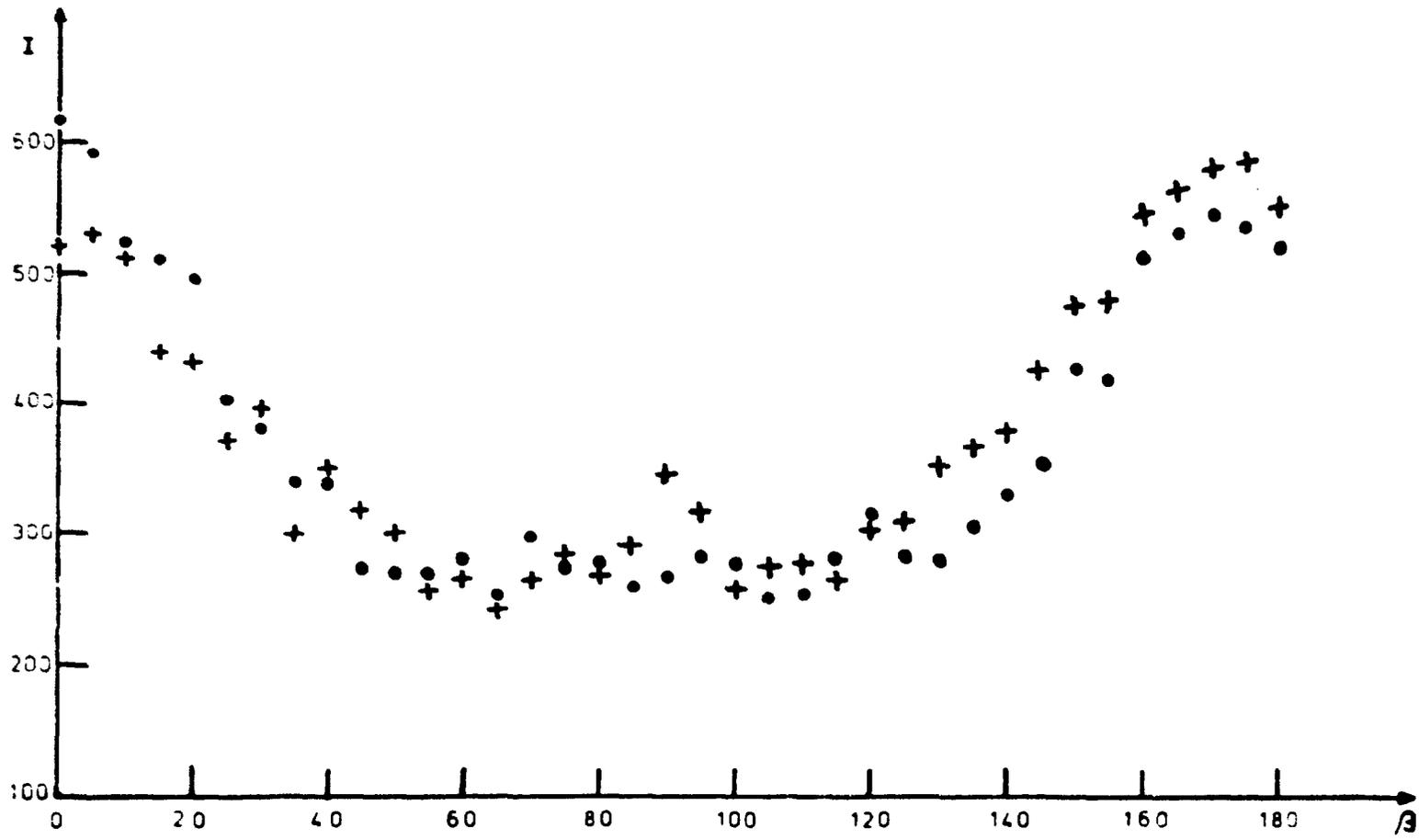


Figura 4b - Curvas de Intensidade para Al-U (8%). $\alpha = 30^\circ$
● transmissão
+ reflexão normalizada

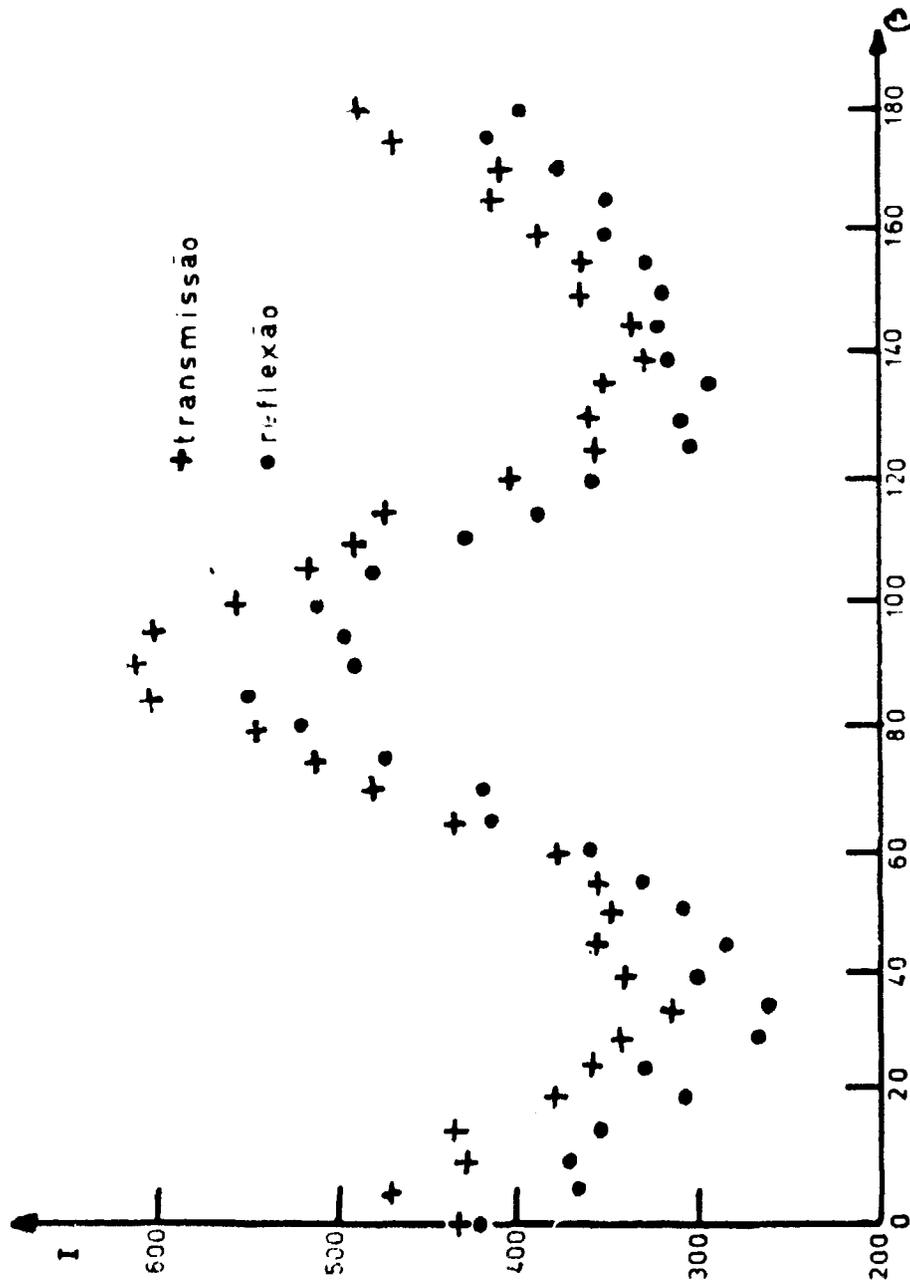


Figura 5a - Curvas de Intensidade para Al-U (21,5%). $\alpha = 0^\circ$

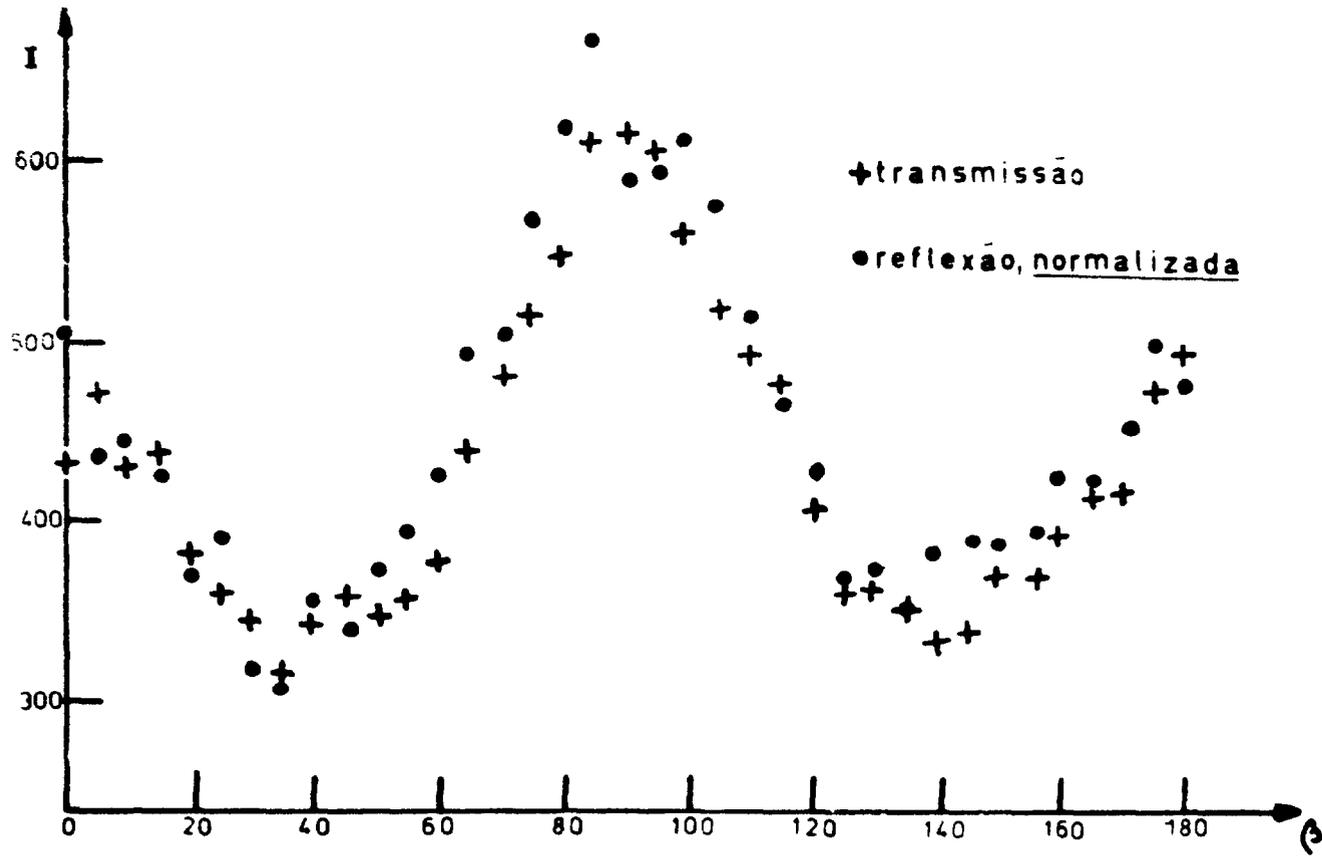


Figura 5b - Curvas de Intensidade para Al-U (21,5,5). $\alpha = 0^\circ$

Isso mostrou que a diferença entre as intensidades não poderia ser atribuída às dimensões do feixe incidente. A explicação poderia estar ligada à própria geometria dos dois métodos pois, conforme a posição da amostra, os nêutrons do feixe incidente percorrem caminhos mais longos em um método que no outro. No método da transmissão o feixe incidente atravessa a amostra entrando por uma face octogonal e saindo pela outra, ao passo que no método da reflexão o feixe atravessa o prisma pelas suas faces laterais. Sendo a altura do prisma menor do que qualquer das dimensões da base, no método da transmissão a maioria dos nêutrons vai percorrer um caminho menor dentro da amostra, do que a maioria dos nêutrons o faz no método da reflexão. Dentro de um mesmo método há também uma variação da geometria capaz de causar alteração nas intensidades. Entretanto, essa variação é pequena, só se tornando muito acentuada na passagem de um método para outro. Se não existissem os problemas do espalhamento múltiplo e da atenuação do feixe pelo espalhamento de Bragg, já citados, não haveria diferença pois o volume irradiado é o mesmo nos dois métodos. Mas existindo esses fenômenos, para um mesmo volume, quanto menor os caminhos percorridos pelos nêutrons do feixe, maior a intensidade difratada pela amostra. É o que acontece no caso do método da transmissão. Uma vez verificada a existência da influência da forma da amostra nas intensidades difratadas, chegou-se à conclusão de que, com uma amostra esférica, as curvas de intensidade não poderiam ser diferentes quando medidas pelos dois métodos em um mesmo ângulo α . A utilização de amostras esféricas imersas totalmente no feixe, bem como a citação de alguns dos problemas que surgem na aplicação de raios-x e de nêutrons, são mencionados no trabalho de O. J. Eder e R. Klemencic⁽¹³⁾. Construir uma esfera a partir de placas de pouca espessura não é uma tarefa muito fácil. Sendo assim, optamos por apenas aumentar a altura do prisma, construindo-o com oito placas em lugar das quatro utilizadas nas duas primeiras amostras. Apesar de não ter a simetria ideal, a esférica, em uma amostra assim construída é de se esperar uma alteração pequena nas intensidades difratadas pelos dois métodos. (Figura 3b).

A terceira amostra estudada, de alumínio puro, foi construída com oito placas, resultando em um prisma com o dobro da altura dos prismas das duas amostras anteriores. Desta feita, o feixe não foi delimitado pelas placas de cádmio, tendo então as dimensões 5 x 5 cm, definidas pelo próprio colimador do difratômetro. Ainda neste caso, utilizamos os dois métodos: o da transmissão para ângulos α entre 0° e 45°, e o da reflexão para os valores $\alpha = 0^\circ, 15^\circ, 30^\circ$ e para α entre 40° e 90°. Nos intervalos citados, os ângulos variaram de 5' em 5'. As curvas de intensidade obtidas em ambos os métodos, foram utilizadas no cálculo dos fatores de normalização mostrados na Tabela II, com os quais se obteve o valor médio 0,96. Na Figura 6 e 7 mostramos as curvas de intensidade, sem normalização, obtidas pelos métodos da transmissão e da reflexão, nos ângulos $\alpha = 15^\circ$ e $\alpha = 45^\circ$. A concordância é bastante boa, nos dois casos.

Os valores encontrados para os fatores de normalização mostram que, na média, o método da reflexão resultou, para este caso, em intensidades 4% mais altas do que o da transmissão. Desvios desta ordem tornam desnecessária a normalização entre os dois métodos, uma vez que a determinação de texturas admite, no geral, uma certa aproximação, assunto que será melhor tratado no próximo capítulo. Com amostras deste tipo, pode-se pensar em utilizar um só método, uma vez que a experiência mostrou que com a forma adotada não mais se alteram substancialmente os resultados, qualquer que seja a posição da amostra. A geometria mais conveniente é a do método da reflexão, pois no caso da transmissão, o goniômetro utilizado nas medidas acaba interpondo-se entre o feixe de nêutrons e a amostra. Com a geometria escolhida, α pode variar de 0° a 180°, sem qualquer dificuldade.

As medidas das texturas da matriz de alumínio da liga Al-U (23,7%) – Si(2,2%), da fase UAl₃ dessa mesma liga, da fase UAl₄ das ligas Al-U(8%) e Al-U(21,5%), foram todas feitas com amostras preparadas de forma semelhante a do alumínio puro, isto é com oito placas, sem também ser utilizada máscara no feixe. Essas oito placas foram sobrepostas de maneira a conservar paralelas entre si as direções de laminação. Aliás, este é um procedimento indispensável em toda e qualquer amostra, formada por placas sobrepostas, pois é óbvio que, se assim não fosse feito, a determinação da textura não seria possível. Nos casos das medidas de textura das fases UAl₄ das duas ligas mencionadas acima, foi necessário acrescentar quatro placas às quatro existentes nas amostras originais. Assim procedemos para que as amostras não só estivessem de acordo com o novo tipo empregado, mas também procurando aumentar a intensidade difratada por essa fase, que se encontra em pequena concentração nas amostras.

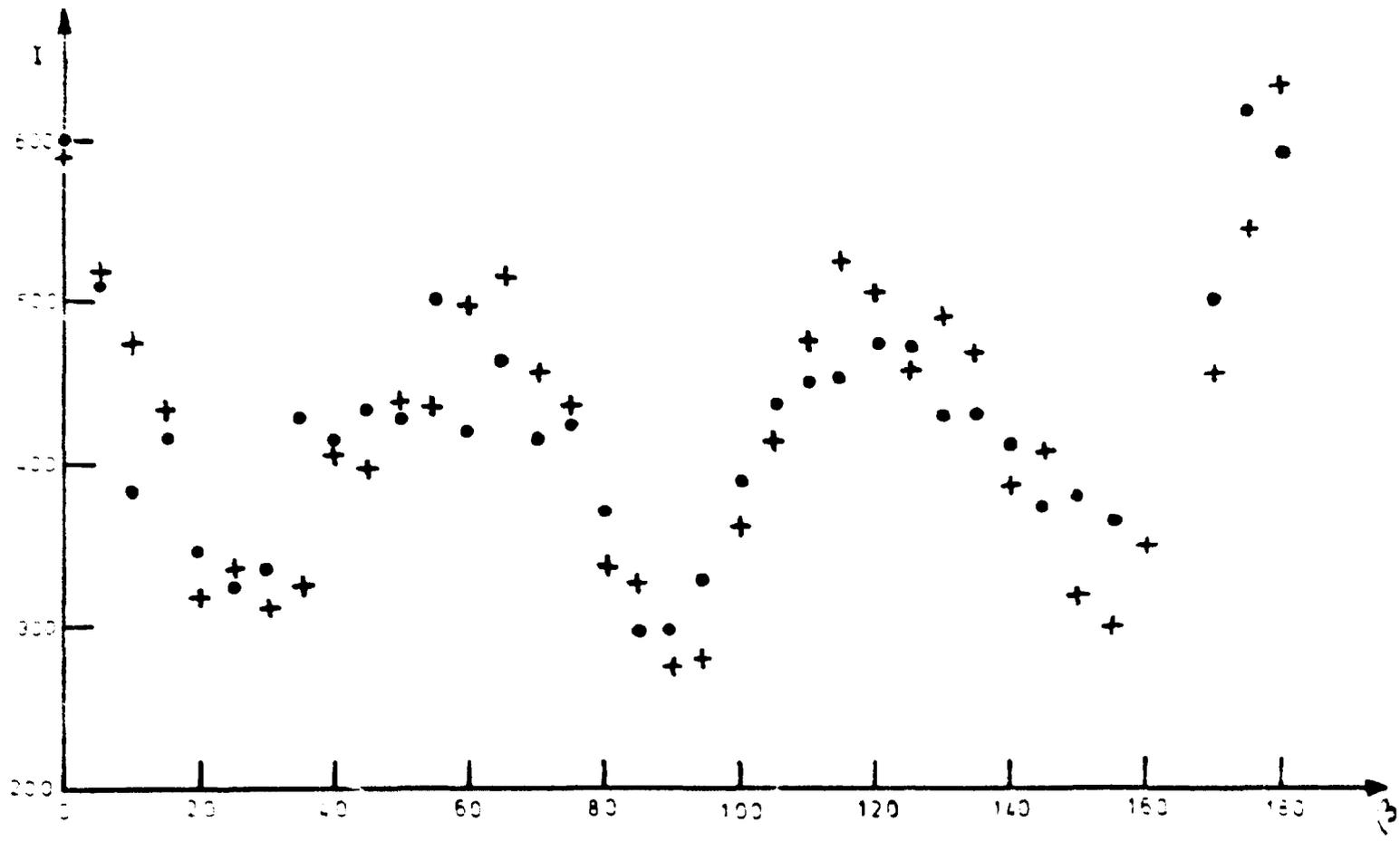


Figura 6 - Curvas de Intensidade para Alumínio Puro, $\alpha = 15^\circ$
● transmissão
+ reflexão

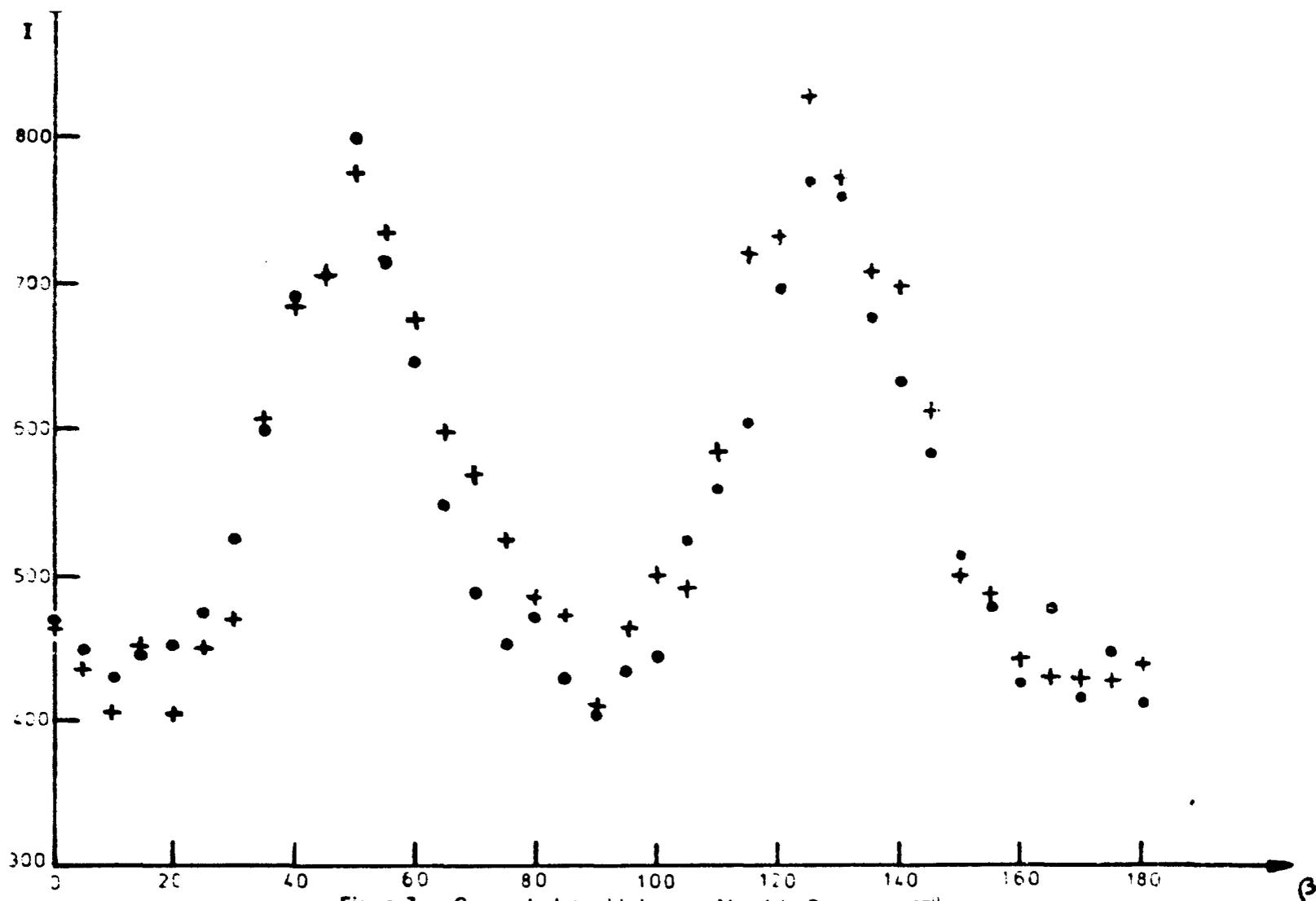


Figura 7 - Curvas de Intensidade para Alumínio Puro. $\alpha = 45^\circ$
 ● transmissão
 + reflexão

Tabela II
Fatores de Normalização entre os Métodos
da Transmissão e da Reflexão

Fator de normalização (f) para			
α	Al-U (8%) (4 placas)	Al-U (21,5%) (4 placas)	Al puro (8 placas)
0	1,08	1,14	0,95
5	1,13	-	-
10	1,11	-	-
15	1,09	1,28	1,02
20	1,15	-	-
25	1,15	-	-
30	1,20	-	0,97
35	1,18	-	-
40	1,10	1,17	0,92
45	1,11	1,15	0,96

III.4 – Arranjo Experimental

Na realização das medidas de textura foi utilizado o difratômetro de nêutrons do Instituto de Energia Atômica (IEA). Este difratômetro foi construído para ser instalado junto ao canal nº 6 do reator I.E.A.R-1. Uma descrição geral desse instrumento de pesquisas será feita a seguir, sendo que os pormenores referentes às suas partes constituintes podem ser conhecidos do trabalho de doutoramento de C. B. R. Parente⁽²⁴⁾.

A Figura 8 mostra o esquema de um difratômetro de nêutrons comum, onde os nêutrons provenientes do núcleo do reator passam por um primeiro colimador e saem na forma de feixe. Este feixe é constituído de nêutrons de várias energias, incluindo desde os nêutrons rápidos, formados na fissão, até os nêutrons térmicos, obtidos pela moderação dos rápidos. Os nêutrons térmicos do feixe têm uma distribuição de intensidade, com relação ao comprimento de onda, que tem a forma de uma função de Maxwell (maxwelliana). Dessa distribuição são separados nêutrons com (aproximadamente) uma só energia. A separação é feita pela colocação de um cristal monocromador no feixe, orientado de forma a difratar nêutrons com uma certa energia, formando um ângulo $2M$ com a direção do feixe incidente (V. Figura 8). O monocromador é colocado no feixe, de modo que uma família de planos cristalinos (hkl) forme o ângulo M com essa direção. Assim, surge do cristal um feixe difratado com uma só energia, selecionado do espectro, conforme a lei de Bragg.

$$n\lambda = 2d \sin M, \text{ onde}$$

λ = comprimento de onda associado à energia do nêutron.

d = distância entre dois planos cristalinos vizinhos, de índices de Miller (hkl).

n = número inteiro, positivo, chamado de ordem da reflexão.

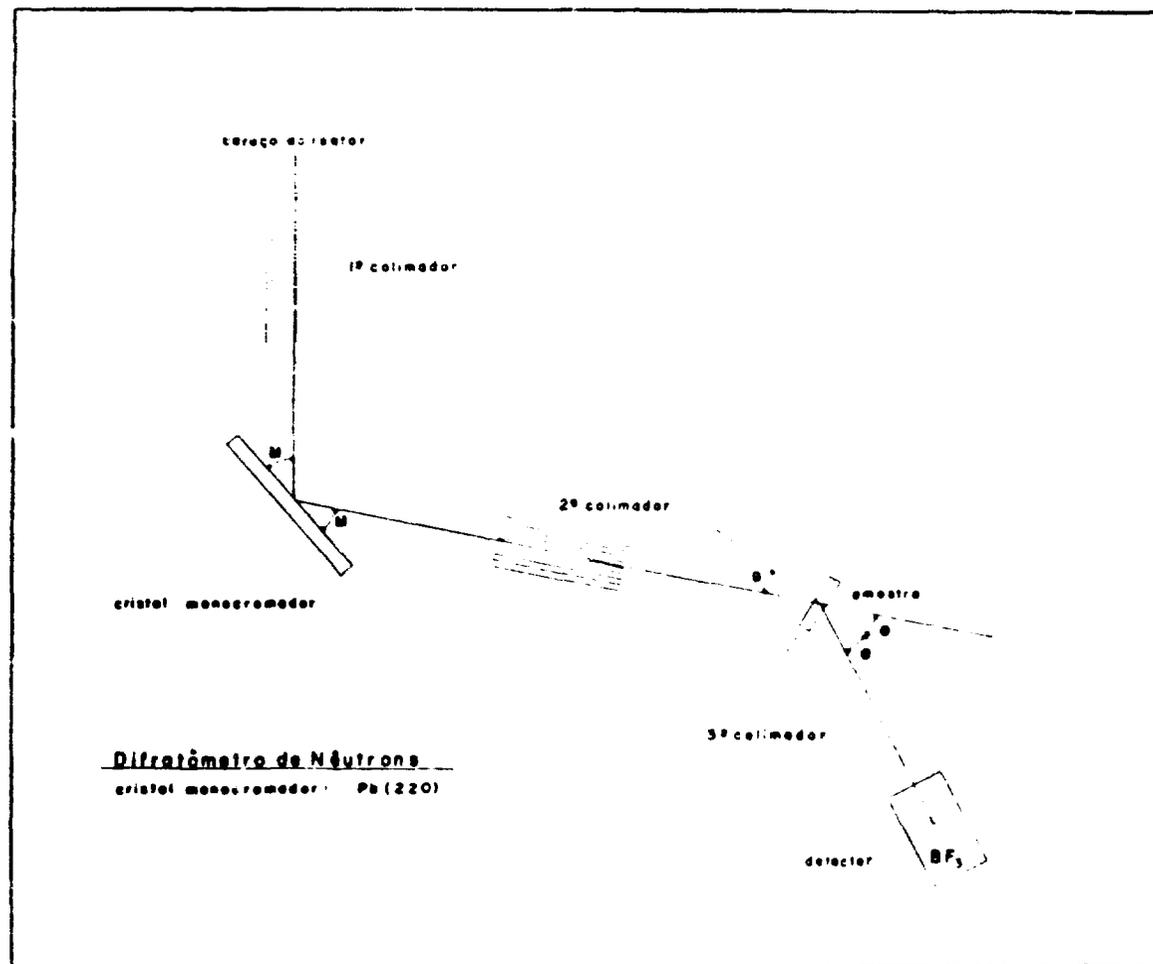


Figura 8 – Disposição Esquemática das Partes Constituintes de um Difratômetro de Nêutrons

O feixe monocromático assim obtido, atravessa um segundo colimador e incide na amostra. O espalhamento coerente da amostra é analisado por um sistema constituído por um terceiro colimador e um detector de nêutrons, ambos montados sobre um braço que gira em torno da amostra, de modo a formar um ângulo θ com os seus planos cristalinos. Esses planos difratam segundo a mesma relação de Bragg aplicada no caso do monocromador, ou seja,

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (n = 1)$$

O conjunto formado pelo terceiro colimador e pelo detector é chamado de espectrômetro.

Envolvendo o monocromador, e o segundo colimador, é colocada uma blindagem que tem a finalidade de evitar que, a parte do feixe não difratada pelo monocromador, atinja o ambiente. Envolvendo o detector é colocada também uma blindagem para prevenir a detecção de nêutrons do ambiente, que viriam contribuir para aumentar a radiação de fundo das experiências.

No difratômetro de nêutrons do I E A, o monocromador é um monocristal de chumbo orientado de forma a que o feixe monocromático seja obtido pela difração em planos (220). O comprimento de onda resultante tem o valor 1,106 Å. O detector utilizado é um do tipo BF₃ com janela de cerâmica na sua parte frontal. O detector está acoplado a um sistema eletrônico de contagem, constituído de pré-amplificador, amplificador, discriminador de altura de pulso, contador eletrônico e medidor de taxa de contagem. A polarização do detector é feita com uma fonte de alta tensão. Tem-se ainda um outro detector, que é do tipo câmara de fissão de baixa eficiência, colocado na saída do feixe de nêutrons monocromático. A função deste detector é servir de monitor, fornecendo uma contagem proporcional ao número de nêutrons que por ele atravessam, isto é, proporcional ao número de nêutrons que emergem do segundo colimador e atingem a amostra. Ele é útil, pois permite que se tenha uma melhor precisão nas medidas pois, fixando-se um certo número de contagens no monitor, elimina-se o problema de flutuação de potência do reator, que de outra forma manifesta-se como flutuações na contagem quando se utiliza um tempo fixo para as medidas.

O monitor está acoplado a um sistema eletrônico de contagem idêntico ao do detector BF₃. Os dois sistemas eletrônicos são os chamados canais de contagem e são ambos controlados por um programador que providencia a paralização da contagem em três situações possíveis: após um tempo pré-determinado, após um número pré-determinado de nêutrons detectados pelo monitor e após um número pré-determinado de nêutrons detectados pelo detector principal. No final da contagem, paralizada pelo programador, este providencia o registro do tempo de contagem e dos números de nêutrons registrados pelo monitor e pelo detector principal. O registro é feito em uma impressora de alta velocidade. Compõem ainda o sistema eletrônico, um registrador gráfico de dois canais que está ligado aos dois medidores de taxa de contagem dos dois detectores. É obtido, por meio deste instrumento um registro contínuo em folha de papel das variações das intensidades do monitor e do detector principal. Todo o sistema eletrônico de contagem está protegido das flutuações ocasionais da rede por um estabilizador eletrônico de tensão.

O difratômetro de nêutrons do I E A conta também com um sistema de comando automático que permite a movimentação programada do detector principal e da amostra. Este sistema de comando é, basicamente, constituído de duas partes bem semelhantes. Uma delas comanda o eixo 2θ do difratômetro, ou seja, movimenta o detector em torno da amostra por passos angulares pré-determinados ou de modo contínuo. Este movimento está acoplado ao eixo da amostra, em uma relação 2:1, de tal forma a girá-la em torno do chamado eixo θ . Outro movimento comanda o eixo ω , coaxial com θ , porém independente dele e, portanto, do eixo 2θ . Estes movimentos são esquematizados na Figura 9. Em ambos os movimentos existe a possibilidade de duas velocidades: uma mais alta para levar o espectrômetro ou a amostra, para uma posição inicial; e uma mais baixa que é utilizada durante as

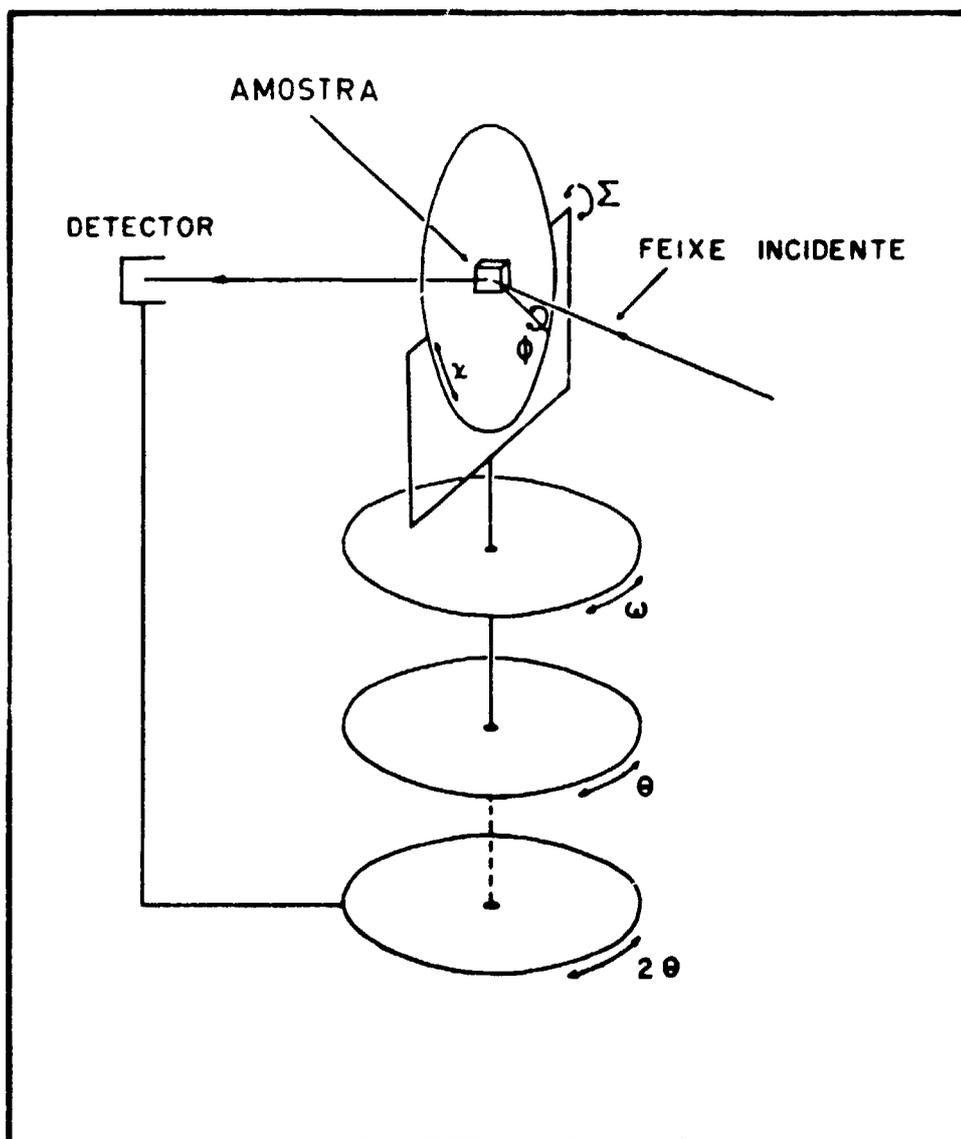


Figura 9 – Movimentos Circulares do Difratorômetro

medidas, onde é necessário posicionar mais lentamente a parte *grante* para obter boa precisão angular. A movimentação por passos fixos, em ambos os casos, está limitada a quatro passos que são $0,025^\circ$, $0,05^\circ$, $0,1^\circ$ e $0,2^\circ$. Na movimentação da amostra há a possibilidade adicional de utilizar um sistema de câmbio de velocidades, acrescentando às duas mencionadas duas velocidades mais altas. As informações sobre as posições angulares θ e ω são transmitidas por dois sincro-transmissores e recebidas em um painel por dois sincro-receptores. O painel é o mesmo que abriga o sistema de comando dos movimentos mencionados. Como características principais deste sistema encontram-se a possibilidade de operação automática de um, de outro, ou dos dois movimentos simultaneamente, em um dos passos mencionados. Os movimentos podem ser tanto no sentido positivo, de aumento de ângulo, como no negativo. O controle dos motores é feito por chaves e relés em um circuito apropriado. A automatização é feita por um circuito eletrônico que interliga o circuito de relés e o programador eletrônico mencionado na descrição dos canais de contagem. O sistema permite ainda a operação manual, sem intervenção do programador eletrônico. Como características de segurança existem dois pré-selecionadores de ângulo que servem para estabelecer os ângulos máximos 2θ e ω a serem atingidos durante a medida automática. É o limite interno de segurança. Existem também micro-interruptores colocados no espectrômetro, e no goniômetro, de forma a impedirem que tanto no sentido positivo, quanto no negativo, estes atinjam os pontos máximos de seus movimentos, situação em que seriam travados, com consequências danosas para os motores e as partes constituintes do mecanismo.

No que se refere à instrumentação específica para as medidas de textura, duas providências foram tomadas: a instalação de um goniômetro apropriado a esse tipo de medidas, e a automatização dessas medidas. O goniômetro instalado é semelhante a um goniômetro de cinco eixos apropriado a medidas de difração múltipla, desenhado pelo Prof. R. A. Young, do "Georgia Institute of Technology"⁽²⁴⁾. Em medidas anteriores de textura⁽³³⁾, onde utilizamos os dois métodos de medida, da transmissão e da reflexão, o goniômetro tinha suportes especiais para a amostra em transmissão. No entanto, neste trabalho, esses suportes não foram utilizados, sendo o goniômetro utilizado na sua forma original pois, com a amostra toda imersa no feixe, mesmo as medidas feitas pelo método da transmissão puderam ser realizadas sem modificação no goniômetro original. Para as medidas de textura pelo método da transmissão é utilizado o movimento ω do difratômetro, que corresponde ao movimento α e o movimento χ do goniômetro que corresponde ao β (v. Figura 9). No método de reflexão os movimentos são todos do goniômetro, sendo que χ corresponde a α e ϕ corresponde a β (v. Figura 9). Como foi mencionado anteriormente, ω é um movimento automatizado do difratômetro, bem como 2θ que permite o posicionamento do detector para receber o feixe difratado pelos planos (hkl) escolhidos. A automatização dos movimentos χ e ϕ do goniômetro foi providenciada, para que se efetuasse a realização desta experiência. Foram projetados dois módulos de comando para esses dois ângulos de tal forma que o movimento fosse transmitido por meio de sincro-transmissores acoplados aos sincro-receptores existentes no goniômetro. Os módulos de comando têm motores reversíveis que permitem o movimento nos sentidos positivo e negativo. O movimento de cada um dos módulos pode ser contínuo, ou então por passos de 2° , 5° ou 10° . O comando pode ser manual ou automático sendo que, neste último caso, um dos módulos é ligado ao programador por intermédio de um circuito eletrônico bem semelhante ao utilizado na automatização dos ângulos 2θ e ω do difratômetro. Quando as medidas estão sendo feitas pelo método de transmissão, o módulo utilizado em forma automática é o que comanda o movimento χ ; quando em reflexão é o que comanda ϕ . As Figuras 10 e 11 mostram respectivamente o circuito elétrico dos módulos de comando e o circuito eletrônico de interligação entre o módulo e o programador eletrônico.

Durante a maior parte da realização das medidas, os módulos foram utilizados no modo manual uma vez que o circuito eletrônico de comando automático só ficou pronto quase no final da experiência. Ambos os circuitos eletrônicos foram projetados e construídos pela Área de Instrumentação e Eletrônica. A Área de Oficinas foi encarregada do projeto e construção da parte mecânica dos módulos de comando. O circuito elétrico de comando do difratômetro, bem como o circuito elétrico dos módulos, foram projetados pelo Grupo de Difratometria de Nêutrons, Área de Física Nuclear. A execução dos projetos esteve a cargo da Área de Instrumentação e Eletrônica.

III.5 – Obtenção das Curvas de Intensidade

Para se determinar experimentalmente a textura de um material policristalino, por meio da técnica de difração, é preciso girar a amostra de tal forma a expor todos os seus grãos cristalinos para que difratem segundo uma determinada família de planos.

A primeira providência a ser tomada é fixar a amostra no goniômetro, tendo o cuidado de centrá-la muito bem, ao mesmo tempo em que é feita a sua orientação inicial na forma explicada a seguir. Na amostra é marcada não só a direção de laminação, como é dado também um sentido para essa laminação, com a gravação de uma pequena flecha em uma das bases do prisma. Essa flecha é orientada de acordo com o método utilizado. No método de transmissão ela é colocada verticalmente, para cima, quando $\alpha = 0^\circ$ e $\beta = 0^\circ$. No método de reflexão ela é colocada horizontalmente, apontando na direção do detector, quando $\alpha = 90^\circ$ e $\beta = 0^\circ$. Na fixação da amostra ao goniômetro, dois tipos de porta-amostras foram utilizados. Um deles, utilizado para as duas primeiras amostras no método da reflexão, tinha uma base circular de 5 cm de diâmetro com uma extensão que podia ser fixada ao eixo ϕ do goniômetro (Figura 12a). A base, bem como sua extensão, foram recobertas de cádmio. Para as medidas em transmissão dessas mesmas amostras, foi utilizado um outro porta-amostras semelhante ao primeiro, porém de menores dimensões. A base deste segundo porta-amostras tinha somente 2 cm de diâmetro. Este também foi recoberto de cádmio. Nas amostras seguintes, independentemente do método utilizado, adotou-se este segundo porta-amostras, ao qual foram adicionadas duas extensões de cobre, coladas sobre a superfície do disco. A função era manter a amostra o mais possível afastada do porta-amostras, de forma que este não interceptasse os feixes incidente e difratado (Figura 12b).

Para a medida de textura, primeiramente é necessário que se posicione o difratômetro num certo ângulo 2θ , calculado para que o feixe incidente seja refletido pelos planos (hkl) escolhidos. Em geral a escolha desses planos, é feita levando em conta o espectro de difração do material em estudo. O plano relativo ao pico de maior intensidade é muitas vezes o escolhido de modo a melhorar o mais possível a estatística. Por exemplo, para o alumínio, o pico mais intenso é o relativo ao plano (111) e foi este o plano de reflexão escolhido no caso da amostra de alumínio puro. Mas, nem sempre o critério de escolha da reflexão, a ser observada, é o da maior intensidade. Pode ser, por exemplo, o critério adotado nas medidas da textura da fase UAl_4 , em que procuramos pelo menos duas reflexões de planos perpendiculares entre si, de tal forma a poder facilmente conhecer a orientação preferencial dos grãos. No sistema ortorrômbico em que cristaliza o UAl_4 , planos (h00), (0h0) e (00h) não são equivalentes e, portanto, não aparecem em uma mesma Figura de pólos. Para se conhecer a orientação dos grãos é preciso, em sendo assim, determinar as figuras de pólos de pelo menos duas dessas famílias de planos. Uma vez escolhida a reflexão, e calculado o ângulo 2θ correspondente, é feito um ajuste experimental que consiste em medir uma curva de intensidade difratada pela amostra, com 2θ variando em torno do valor calculado. O espectrômetro é então posicionado no 2θ correspondente ao máximo dessa curva. Uma vez posicionado, é possível iniciar as medidas de textura, na forma descrita a seguir.

A amostra é girada em torno de dois eixos, perpendiculares entre si, que definem os ângulos α e β , conforme exposto no capítulo anterior. O modo mais comum de realizar a experiência é posicionar a amostra em um certo ângulo α , no intervalo de 0° a 90° e em seguida, girar em torno do eixo que define β (de 0° a 180°). Este giro pode ser feito em modo contínuo sendo a intensidade registrada graficamente. Ou pode ser feito em passos angulares, sendo a intensidade registrada em um contador eletrônico durante um certo tempo, ou durante o tempo necessário para o registro de um certo número de contagens pré-fixadas no monitor. Em difração de nêutrons, o giro por passos é o mais comum, pois as intensidades envolvidas são baixas sendo necessário acumulá-las durante um certo tempo. Após terminada a medida de uma curva de intensidade, a amostra é posicionada em um novo ângulo α , de acordo com o passo angular escolhido para este movimento, e nova curva de intensidade é determinada, na mesma forma anterior. O conjunto de curvas de intensidade obtidas na maneira descrita é que vai possibilitar a construção da figura de pólos, correspondente à reflexão (hkl) escolhida.

No método da transmissão, o sentido positivo de α corresponde ao sentido horário, quando se observa o goniômetro de cima para baixo. O sentido positivo de β , por sua vez, corresponde ao sentido

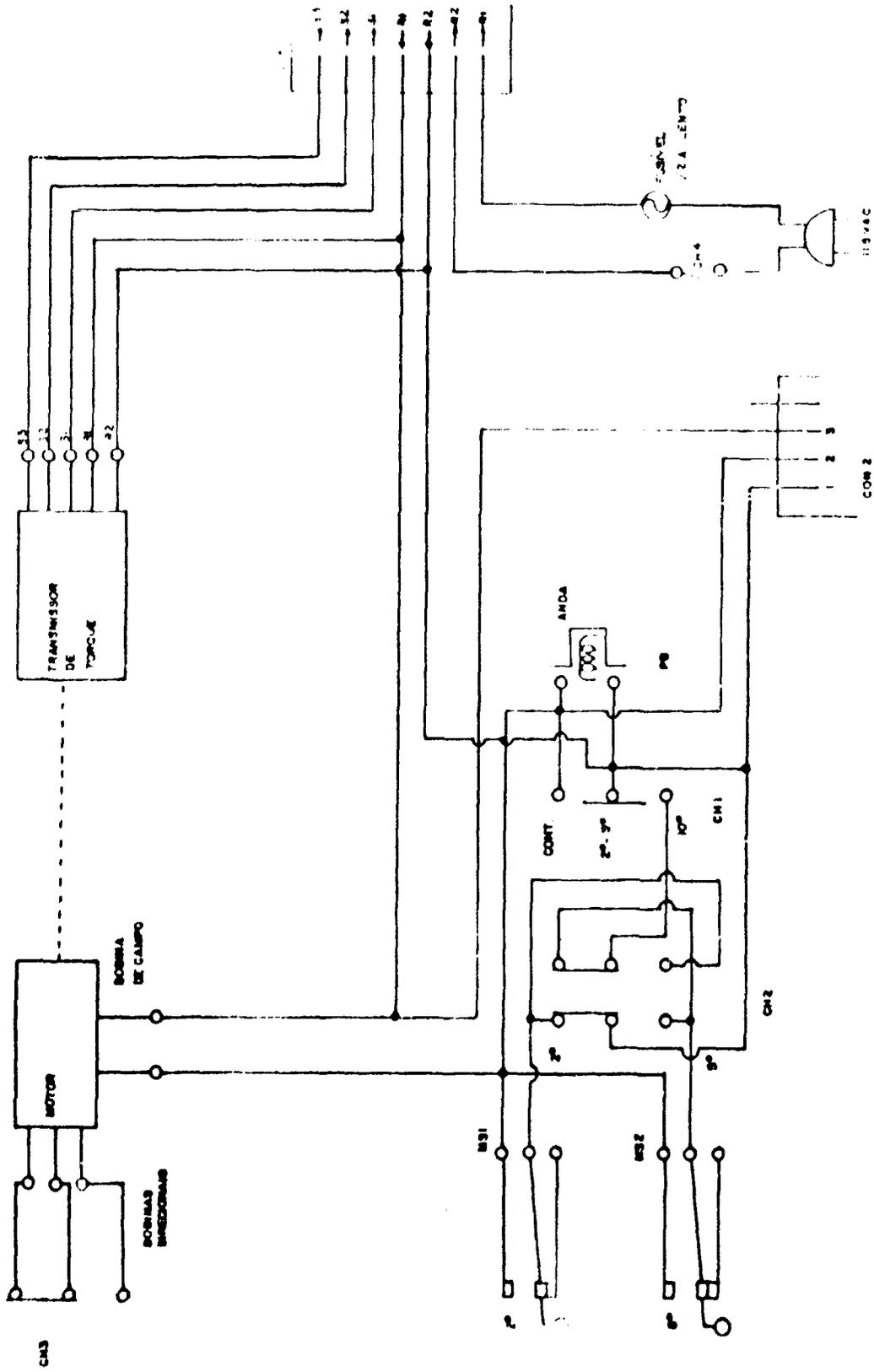


Figure 10 - Circuito Elétrico do Dispositivo de Giro dos Ângulos α e β

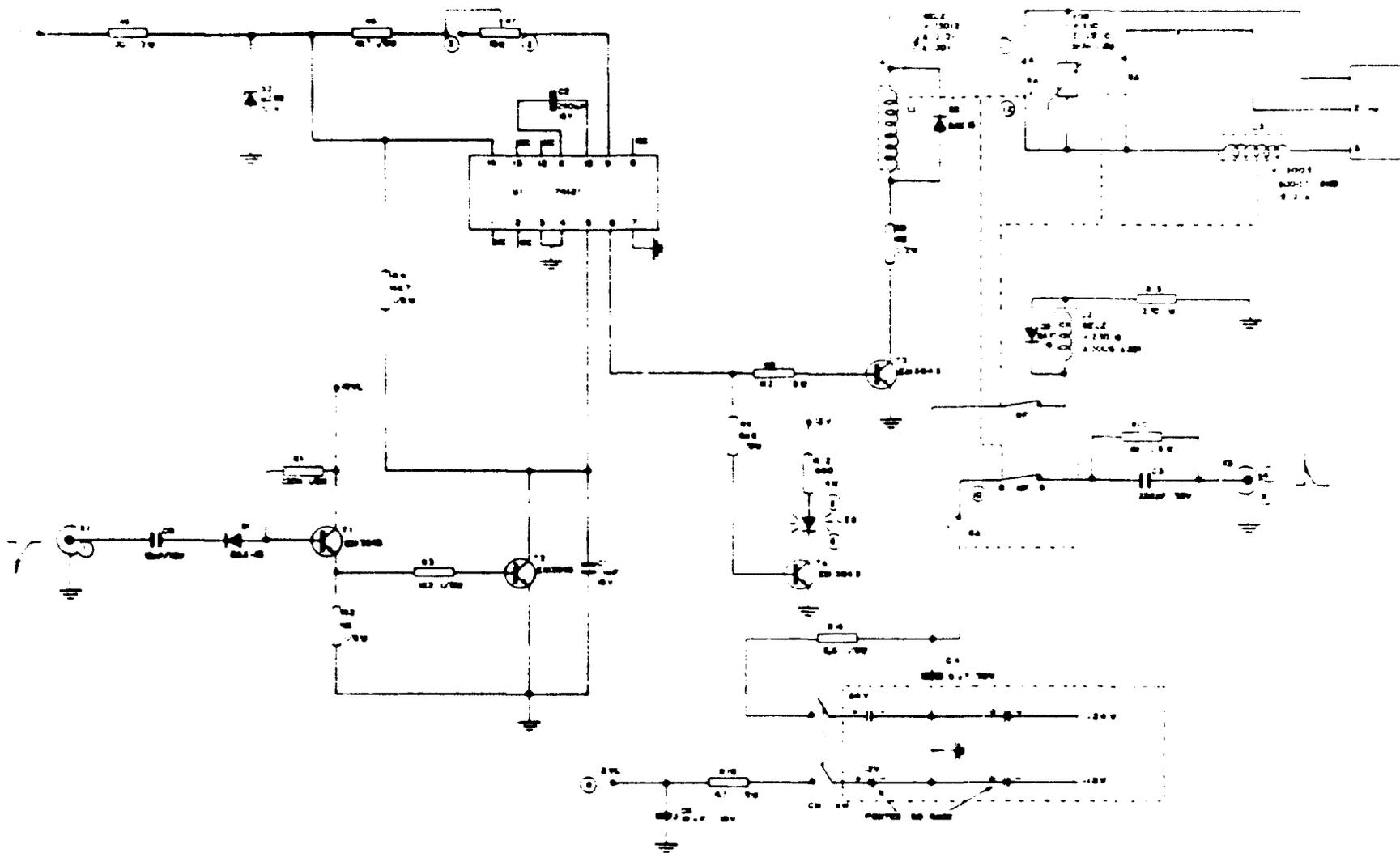


Figura 11 – Circuito Eletrônico de Interligação entre o Módulo e o Programador Eletrônico

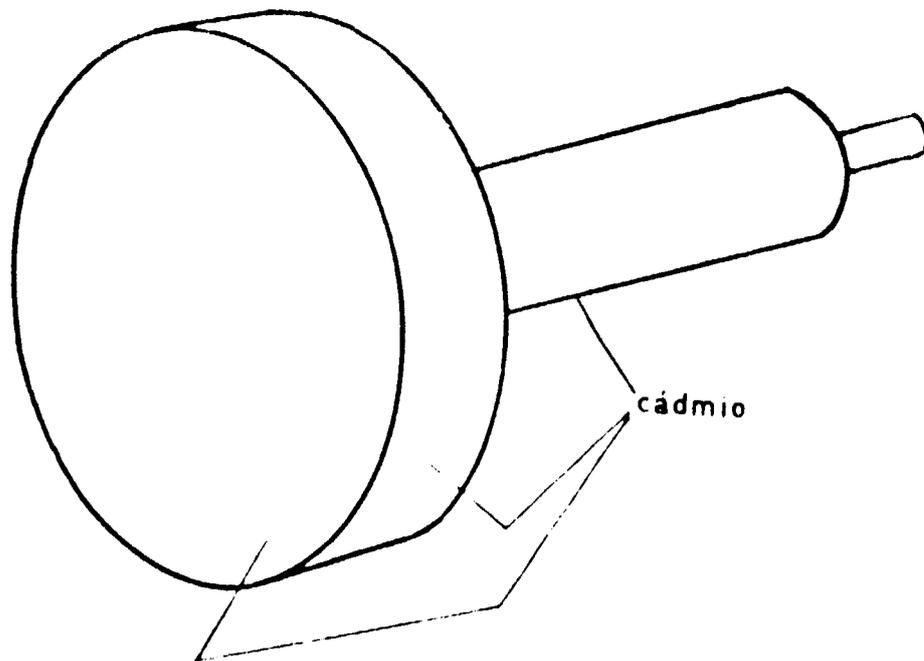


Figura 12a - Porta-Amostras Grande

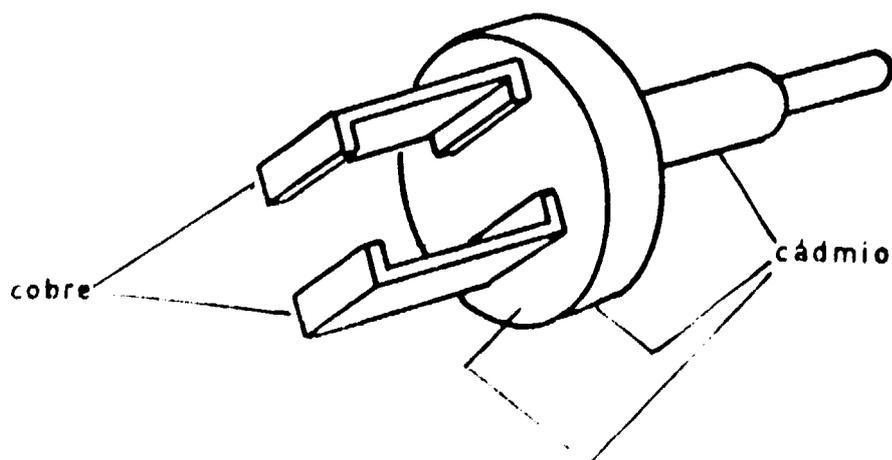


Figura 12b - Porta-Amostras Pequeno

horário de rotação da flecha marcada na amostra. No método da reflexão, o sentido positivo de α corresponde ao sentido horário, quando se observa a face do goniômetro voltada para o detector. O sentido positivo de β é o mesmo que no caso da transmissão. As posições iniciais desses movimentos foram mencionadas no capítulo II, por ocasião da descrição dos métodos. A Figura 2, do capítulo II, mostra os movimentos de α e β nos dois métodos.

O tempo necessário para a obtenção das curvas de intensidade depende de cada caso particular. Em um caso mais favorável, como o da amostra de alumínio puro formada de oito placas, o tempo gasto na medida de cada curva, com α e β variando de 5° em 5° , foi de aproximadamente 1 hora e 10 minutos. E o tempo total, da obtenção das 19 curvas necessárias à construção da sua figura de pólos, foi de 22 horas aproximadamente. Nos casos menos favoráveis, como os das reflexões dos planos (200) e (121) do UAl_4 relativos à amostra com 8% de urânio, gastamos um tempo de aproximadamente 3 horas e 30 minutos na medida de cada curva de intensidade, com α e β variando de 10° em 10° . No total, foram obtidas 10 curvas de intensidade, em aproximadamente 35 horas. Neste caso, temos uma massa de UAl_4 muito pequena, contribuindo para a intensidade, isto é, aproximadamente 6 g de UAl_4 para uma massa de 52 g da liga. O fato de ser pouca massa de UAl_4 , torna necessário o aumento no tempo de medida de cada ponto, de modo a aumentar a intensidade e, conseqüentemente, melhorar a estatística.

A Tabela III é uma relação de todos os casos estudados, onde são especificadas a liga utilizada, o número de placas na amostra, o porta-amostras utilizado, a reflexão observada, o ângulo 2θ da reflexão, o método utilizado na determinação das curvas de intensidade, e os passos angulares adotados para os ângulos α e β .

CAPÍTULO IV

TRATAMENTO DE DADOS

IV.1 – Correções dos Dados Experimentais

No capítulo anterior foram apresentados, em linhas gerais, os procedimentos necessários à obtenção dos dados experimentais. Para se chegar à construção das figuras de pólos é preciso antes corrigir esses dados quanto a vários fatores. Como vimos anteriormente, a absorção é desprezível nos casos das amostras estudadas, pois elas só contêm elementos de baixa seção de choque de absorção de nêutrons. Portanto, não é preciso corrigir quanto à absorção, mesmo porque a forma da amostra e o fato dela estar toda imersa no feixe já poderiam dispensar esta correção. Pelos mesmos motivos, não se tem também de corrigir quanto à variação de volume irradiado, uma vez que este não varia qualquer que seja o método utilizado. Sendo assim, tanto a correção pelo fator geométrico, dentro de um mesmo método, quanto a normalização entre dois métodos, tornam-se desnecessárias. Pode-se mesmo chegar a utilizar somente o método da reflexão que, como vimos no capítulo III, pelo menos no nosso caso é o mais conveniente.

Uma correção que deve ser feita, quando se utiliza nêutrons, é a do espalhamento múltiplo, que tivemos oportunidade de mencionar no capítulo III no que se refere à forma da amostra. Se a amostra for isotrópica, isto é, não tiver textura, a sua forma será o único fator capaz de alterar o espalhamento múltiplo, dependendo de sua posição no feixe. Entretanto, não é este o caso desde que se está justamente determinando a textura cristalina de um dado material. De fato, espalhamento múltiplo pode ser o principal problema ligado à utilização de nêutrons⁽¹³⁾, particularmente se existe um alto grau de orientação dos grãos cristalinos⁽¹⁹⁾. Alguns autores chegam mesmo a se referir ao espalhamento múltiplo como extinção secundária^(19,30), em uma evidente associação do efeito a uma orientação dos grãos

Tabela III

Amostras Estudadas e Métodos Utilizados

liga	número de placas na amostra	porta-amostras	reflexão	2θ	método	passo	
						α	β
Al	8	pequeno	(111)	$27,25^\circ$	reflexão	5°	5°
Al-U (8%)	4	pequeno e grande	(111) do Al	$27,25^\circ$	reflexão e transm.	5°	5°
Al-U (8%)	8	pequeno	(121) do UAl_4	$25,40^\circ$	reflexão	10°	10°
Al-U (8%)	8	pequeno	(200) do UAl_4	$28,93^\circ$	reflexão	10°	10°
Al-U (21,5%)	4	pequeno e grande	(111) do Al	$27,25^\circ$	reflexão e transm.	5°	5°
Al-U (21,5%)	8	pequeno	(121) do UAl_4	$25,40^\circ$	reflexão	10°	10°
Al-U (21,5%)	8	pequeno	(200) do UAl_4	$28,93^\circ$	reflexão	10°	10°
Al-U (21,5%)	8	pequeno	(040) do UAl_4	$41,15^\circ$	reflexão	10°	10°
Al-U (23,7%)- Si (2,2%)	8	pequeno	(111) do Al	$27,25^\circ$	reflexão	5°	5°
Al-U (23,7%)- Si (2,2%)	8	pequeno	(111) do UAl_3	$26,05^\circ$	reflexão	10°	10°

cristalinos da amostra, como se esta fosse equivalente a um monocristal mosaico. Sendo assim, tanto forma da amostra quanto orientação preferencial dos seus grãos cristalinos podem alterar o espalhamento múltiplo. No nosso caso, no que se refere à forma da amostra o problema já foi solucionado, como descrito no capítulo III, item 3. Com respeito ao grau de orientação das amostras, será visto no próximo capítulo que as texturas encontradas são pouco acentuadas, isto é, não há pólos muito intensos. Portanto, não achamos necessário corrigir os nossos dados experimentais quanto ao espalhamento múltiplo.

Finalmente, uma correção necessária em todas as medidas é a correção quanto à radiação de fundo. Esta é proveniente do espalhamento incoerente da amostra ao qual se soma a radiação proveniente do ambiente. O espalhamento incoerente tende a ser mais importante no caso de nêutrons do que no de raios-x, sendo assim, a radiação de fundo na difração de nêutrons é bem mais alta do que na de raios-x⁽⁴⁾. A radiação presente no ambiente origina-se de outros arranjos experimentais vizinhos e do próprio difratômetro de nêutrons, seja do espalhamento da amostra em uma direção que não atinja diretamente o detector, seja dos nêutrons do feixe direto que conseguem atravessar a blindagem envolvendo o monocromador. Se a blindagem do detector for eficiente, a contribuição desta radiação à radiação de fundo é muito pequena.

A determinação experimental da radiação de fundo é feita posicionando-se o difratômetro em um ângulo 2θ bem fora do pico de difração da reflexão (hkl) escolhida. É conveniente escolher essa posição observando o espectro de difração da amostra, de forma a realmente estar fora de qualquer contribuição por espalhamento de Bragg, do próprio pico ou de outro vizinho. As medidas da radiação de fundo, das amostras relacionadas na Tabela III, capítulo III, foram feitas em duas posições: em um ângulo menor e em outro maior do que o ângulo 2θ do pico da reflexão observada. Em cada posição, a intensidade era registrada duas vezes, sem que houvesse alteração das condições em que as curvas de intensidade foram medidas, ou seja, para uma mesma contagem de monitor e mesma largura do feixe incidente. Este procedimento foi efetuado para cada ângulo α , isto é, para cada curva de intensidade. A média dos quatro valores obtidos em cada α , foi subtraída de cada um dos pontos da curva de intensidade correspondente.

IV.2 – Determinação da Unidade Absoluta

Com os dados corrigidos do item anterior, já é possível construir uma figura de pólos. Essa figura de pólos poderá ser constituída de linhas de mesma intensidade ou gradações de tonalidade de uma cor, conforme mencionado no capítulo II. Neste caso, as linhas ou regiões corresponderão diretamente às intensidades experimentais e, desta maneira, irão depender da quantidade de amostra utilizada. Tal dependência dificulta a comparação entre figuras de pólos obtidas com amostras diferentes. Para se eliminar essa dependência é comum utilizar-se uma normalização feita entre as intensidades experimentais e as intensidades de uma amostra isotrópica, com uma mesma quantidade de material. A intensidade da amostra isotrópica é chamada de unidade absoluta, e a figura de pólos da amostra em textura é construída em termos dessa unidade. A maioria dos autores utiliza a unidade absoluta na representação das figuras de pólos^(9,21,23,29,31,32), mas é possível encontrar aqueles que não o fazem⁽¹⁹⁾.

Um dos métodos de obtenção da unidade absoluta consiste em determinar a intensidade da amostra isotrópica por meio de uma integração gráfica de toda a figura de pólos construída com as intensidades experimentais⁽³³⁾. Neste caso a unidade absoluta é dada por:

$$T = \frac{\sum_i I_i \Delta S_i}{\sum_i \Delta S_i}$$

onde

I_0 = intensidade de uma amostra ao acaso, isto é, unidade absoluta.

I_p = intensidade média obtida em um elemento de superfície

$\Delta S_p = \cos \alpha \Delta \alpha \Delta \beta$ (ΔS_p equivalente ao elemento $d\omega$ da Figura 13).

Em lugar de se obter a unidade absoluta por integração gráfica, pode-se integrar diretamente as curvas de intensidade, evitando-se assim a construção da figura de pólos com os dados experimentais⁽⁹⁾. A função de distribuição de orientações $p(\alpha, \beta)$ representa a fração do volume total do material que contém grãos cristalinos onde, para uma dada família de planos (hkl) as normais a esses planos estão orientadas dentro de um pequeno ângulo sólido $d\omega$, definido nos intervalos $\alpha, \alpha + d\alpha$ e $\beta, \beta + d\beta$. Os ângulos α e β relacionam-se a alguma direção fixa na amostra e correspondem às usuais coordenadas esféricas, θ e ϕ com raio igual à unidade (Figura 13). Se todo o volume do material possui grãos cristalinos orientados ao acaso, ou seja, a amostra é isotrópica, a função distribuição de orientações $p(\alpha, \beta)$ é igual à unidade. Sendo assim,

$$p(\alpha, \beta) = \frac{I_{hkl}(\alpha, \beta)}{\tau_{hkl} \times A(\theta, \alpha)}$$

onde

$I_{hkl}(\alpha, \beta)$ = intensidade obtida experimentalmente para uma amostra que possua textura

τ_{hkl} = unidade absoluta

$A(\theta, \alpha)$ = fator de absorção

O fator $A(\theta, \alpha)$ é igual a 1, no caso da absorção ser nula ou desprezível. Sendo este o caso deste trabalho, a expressão se reduz a

$$p(\alpha, \beta) = \frac{I_{hkl}(\alpha, \beta)}{\tau_{hkl}}$$

Multiplicando por $d\omega = \cos \alpha \, d\alpha \, d\beta$ e integrando, já que τ_{hkl} é independente de (α, β) , vem:

$$\tau_{hkl} \int p(\alpha, \beta) \, d\omega = \int \int I_{hkl}(\alpha, \beta) \cos \alpha \, d\alpha \, d\beta$$

Variando α de 0° a 90° e β de 0° a 180° (estes intervalos de variação dos ângulos são adequados à obtenção de meio círculo da figura de pólos) se tem:

$$\int_0^\pi \int_0^{\pi/2} p(\alpha, \beta) \cos \alpha \, d\alpha \, d\beta = \int_0^\pi \int_0^{\pi/2} 1 \times d\omega = \pi$$

pois como foi definido anteriormente $p(\alpha, \beta) = 1$ para uma amostra ao acaso. Assim, a intensidade para uma amostra ao acaso equivalente à amostra com textura medida experimentalmente, é dada por:

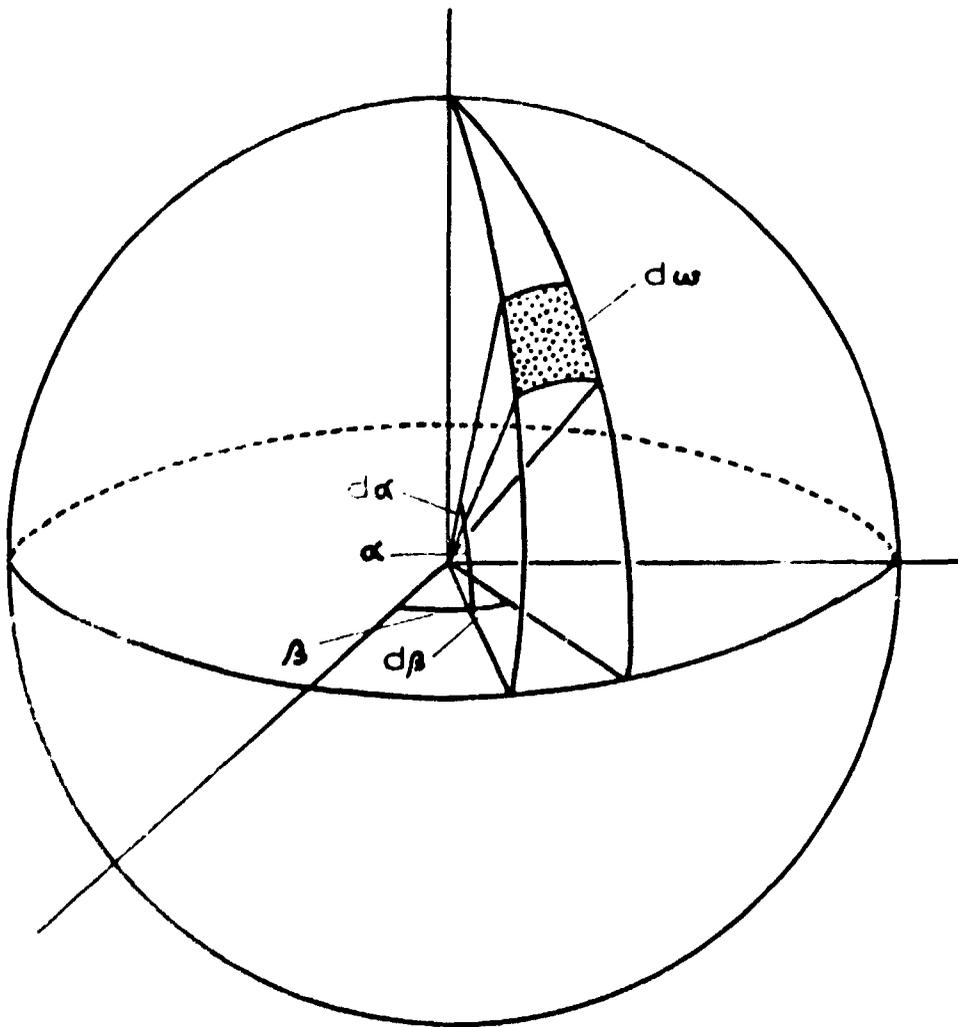


Figura 13 – Elemento de Área dw

$$\tau_{hkl} = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi \int_0^{\pi/2} I_{hkl}(\alpha, \beta) \cos \alpha \, d\alpha \, d\beta$$

Porém, na prática, as medidas são feitas em intervalos finitos dos ângulos α e β , e então faz-se $d\alpha \rightarrow \Delta\alpha$ e $d\beta \rightarrow \Delta\beta$, e as integrais passam a ser somatórias:

$$\tau_{hkl} = \frac{\Delta\alpha \Delta\beta}{\pi} \sum_{\alpha=0^\circ}^{90^\circ} \sum_{\beta=0}^{180^\circ} I_{hkl}(\alpha, \beta) \cos \alpha$$

com $\Delta\alpha$ e $\Delta\beta$ expressos em radianos.

A unidade absoluta pode ainda ser medida experimentalmente, utilizando-se uma amostra α não possua textura, que tenha a mesma densidade superficial que a amostra em estudo⁽¹¹⁾ e que seja medida nas mesmas condições geométricas. Essa amostra sem textura pode ser construída com pó do mesmo material utilizado nas medidas de textura, preparados de várias maneiras, em geral prensado na forma de pastilhas^(13,21,29). Neste trabalho foi feita uma tentativa de se determinar experimentalmente a unidade absoluta da amostra de alumínio.

Fizemos em primeiro lugar pastilhas prensadas com alumínio em pó, livre de impurezas de alta seção de choque de absorção de nêutrons. As pastilhas foram prensadas com a aplicação de cerca de 30 toneladas-força durante 4 minutos. O diâmetro das pastilhas era de 4 cm, e a altura dependia da quantidade de pó colocada na prensa. Em seguida as pastilhas foram cortadas na forma de prismas octogonais. As dimensões de base desse prisma eram pouco maiores do que as dimensões da base da amostra de alumínio, para compensar a menor densidade do material prensado. Cada pastilha resultante foi pesada, e uma combinação adequada dessas pastilhas, com peso aproximadamente igual ao da amostra, foi utilizada como amostra isotrópica. A intensidade obtida em todas as curvas de intensidade permaneceu constante. Entretanto, esse valor constante era pequeno, comparado com o valor obtido pelo método de integração das curvas de intensidade experimentais, obtidas com a amostra de alumínio laminado a quente (Tabela IV). O pequeno valor da unidade absoluta, obtido com a amostra em pastilhas, pode ser atribuído ao espalhamento múltiplo⁽¹³⁾, tal como ocorre com as amostras com textura.

Para comprovação da influência do espalhamento múltiplo, preparamos algumas amostras utilizando alumínio em pó, com várias granulações. As amostras tinham aproximadamente dimensões e quantidades iguais. Curvas de intensidade versus o ângulo 2θ , para essas amostras, mostraram que quanto menor a granulação, menor a intensidade difratada e maior a radiação de fundo. A Fig. 14 mostra esses resultados, com a granulação expressa em unidades mesh. É apresentado também o caso de uma amostra constituída de alumínio picado, obtido de placas.

Uma segunda tentativa de obtenção experimental da unidade absoluta, foi construir a amostra isotrópica a partir de placas de alumínio, pois assim se teria provavelmente o mesmo efeito do espalhamento múltiplo sobre as intensidades. As placas a serem utilizadas nesta amostra, eram de procedência da firma Carlo Erba, com pureza da ordem de 99,5%, e suas dimensões eram bem apropriadas, pois tinham aproximadamente 3 cm por 6 cm, com 3 mm de espessura. Estas placas cortadas ao meio poderiam facilmente converter-se em uma amostra de dimensões próximas das dimensões da amostra com textura. Entretanto, por serem laminadas possuíam textura, o que foi verificado experimentalmente. Em um trabalho de E. O. Wollan e C. G. Shull⁽³⁴⁾, estes autores expõem um método de eliminação de orientações preferenciais no alumínio. O método consiste em aquecer uma amostra de alumínio até próximo de seu ponto de fusão e, em seguida, resfriá-la rapidamente. Este

processo é repetido vezes seguidas. A aplicação deste processo, em nossas placas, não deu o resultado esperado de eliminação quase total da textura. Pelo contrário, desenvolveu-se nas placas uma textura muito acentuada, conforme verificamos experimentalmente, posicionando o detector na reflexão (111) do alumínio e girando a placa na horizontal, em torno do eixo normal às faces. Vários picos de variação da intensidade apareciam durante o giro. Provavelmente a textura surgida se deve à recristalização do alumínio, em temperaturas próximas do ponto de fusão⁽¹⁶⁾. Sendo assim, abandonamos este processo.

Uma terceira e última tentativa foi a de construir uma amostra isotrópica com pedaços de alumínio, provenientes das placas fabricadas pela Carlo Erba. As placas, eram cortadas de modo que os pedaços tivessem a forma de pequenos cubos de arestas aproximadamente iguais a 3 mm. Estes cubinhos e a limalha resultante do corte, eram prensados com cerca de 40 toneladas-força por 10 minutos. A prensagem era feita no mesmo molde utilizado para a prensagem do pó de alumínio. Por serem as pastilhas mais frágeis do que as obtidas com o pó, impedindo o seu corte posterior na forma octogonal, passamos a utilizar um anel de alumínio com cerca de três centímetros de diâmetro. Este anel servia para conter o material, de forma que resultasse em uma pastilha de menor diâmetro, após a prensagem. O anel deformado pela prensagem era finalmente cortado, restando uma pastilha com as dimensões adequadas, embora não tivesse uma forma regular. As pastilhas eram pesadas e agrupadas, como no caso das pastilhas obtidas do pó, para formarem uma amostra sem textura equivalente a de alumínio puro laminado. As curvas de intensidade obtidas com essa amostra indicaram ainda a presença de textura, que se manifestava de forma idêntica em curvas de intensidade obtidas pela fixação do ângulo β e variação do ângulo α . O tipo de variação observada é característica de texturas de fibra. A explicação para a sua existência se deve ao fato de que o alumínio é material com boa plasticidade. Mesmo estando os cubinhos ao acaso no material prensado, uma textura surgia pela deformação plástica superficial na pastilha, causada pela prensagem. E esta textura deve ser do tipo de textura de fibra pois, em uma direção ortogonal ao sentido da força aplicada na prensagem, há isotropia das orientações como as curvas de intensidade demonstraram. Com respeito ao espalhamento múltiplo, a amostra feita de alumínio em pedaços revelou uma melhora significativa, uma vez que uma curva de intensidade versus ângulo 2θ mostrou um aumento na relação sinal-irradiação de fundo que era cerca de duas vezes a melhor relação encontrada com as amostras em pó, ou seja, a do alumínio de granulação igual ou superior a 100 mesh. O pico correspondente a essa amostra está na Figura 14, junto com os picos das amostras de alumínio em pó. Considerando as dificuldades para se obter amostras que, afinal, não se revelam completamente isotrópicas, optamos por utilizar o cálculo, a partir das curvas de intensidade, para a obtenção das unidades absolutas.

A Tabela IV mostra os valores das unidades absolutas relativas às texturas estudadas, calculadas pelo método de intensidade das curvas de intensidade. Mostra ainda, para o alumínio puro, os valores da unidade absoluta determinados experimentalmente, utilizando pastilhas prensadas de alumínio em pó, de granulação maior ou igual a 100 mesh, e pastilhas prensadas de alumínio em pedaços.

IV.3 – Construção das Figuras de Pólos

Na determinação de texturas, por meio de difração de nêutrons ou de raios-x, o mais comum é procurar-se obter experimentalmente curvas de intensidade versus ângulo β , sendo necessária uma curva desse tipo para cada ângulo α estabelecido. Estas curvas já dão uma boa indicação da textura do material. Porém, a textura pode ser melhor descrita por meio de figuras de pólos, como foi mencionado no capítulo II. As figuras de pólos são projeções esterográficas (v. apêndice 1), que mostram a distribuição espacial das normais a uma família particular de planos (hkl) dos grãos cristalinos da amostra⁽²⁵⁾.

A figura de pólos é construída em uma rede estereográfica polar (ou equatorial) graduada (Figura 15), onde o ângulo α é representado na direção radial, tendo sua origem no círculo limite e valendo 90° no centro. O ângulo β é o ângulo formado entre um raio do círculo e um raio origem convencional. Essa rede corresponde a uma situação em que um eixo norte sul da esfera de referência

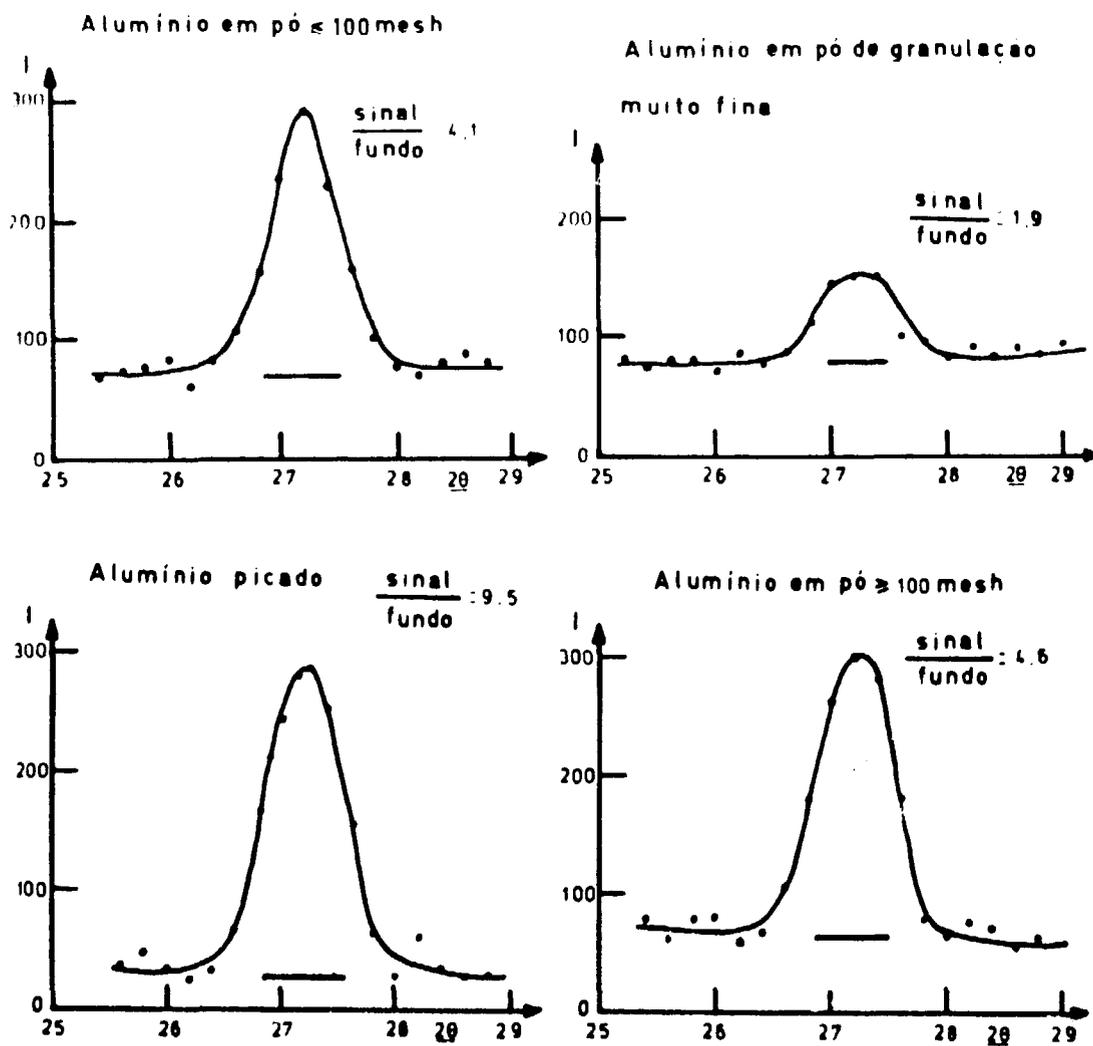


Figura 14 – Curvas de 2θ para Alumínio. Efeito do Espalhamento Múltiplo nas Intensidades Difradas por Amostras em Pó com Diversas Granulações

Tabela IV

Unidades Absolutas das Texturas Estudadas

Amostra	Textura	Unidade Absoluta
Al	Al(111)	472 (280*) (379**)
Al-U (8%)	Al(111)	374
Al-U (21,5%)	Al(111)	966
Al-U (23,7%) · Si (2,2%)	Al(111)	390
Al-U (21,5%)	UAl ₄ (121)	136
Al-U (21,5%)	UAl ₄ (200)	70
Al-U (21,5%)	UAl ₄ (040)	20
Al-U (8%)	UAl ₄ (200)	53
Al-U (8%)	UAl ₄ (121)	103

* -- obtido com pastilhas de alumínio em pó (≥ 100 mesh).

** -- obtido com pastilhas de alumínio em pedaços.

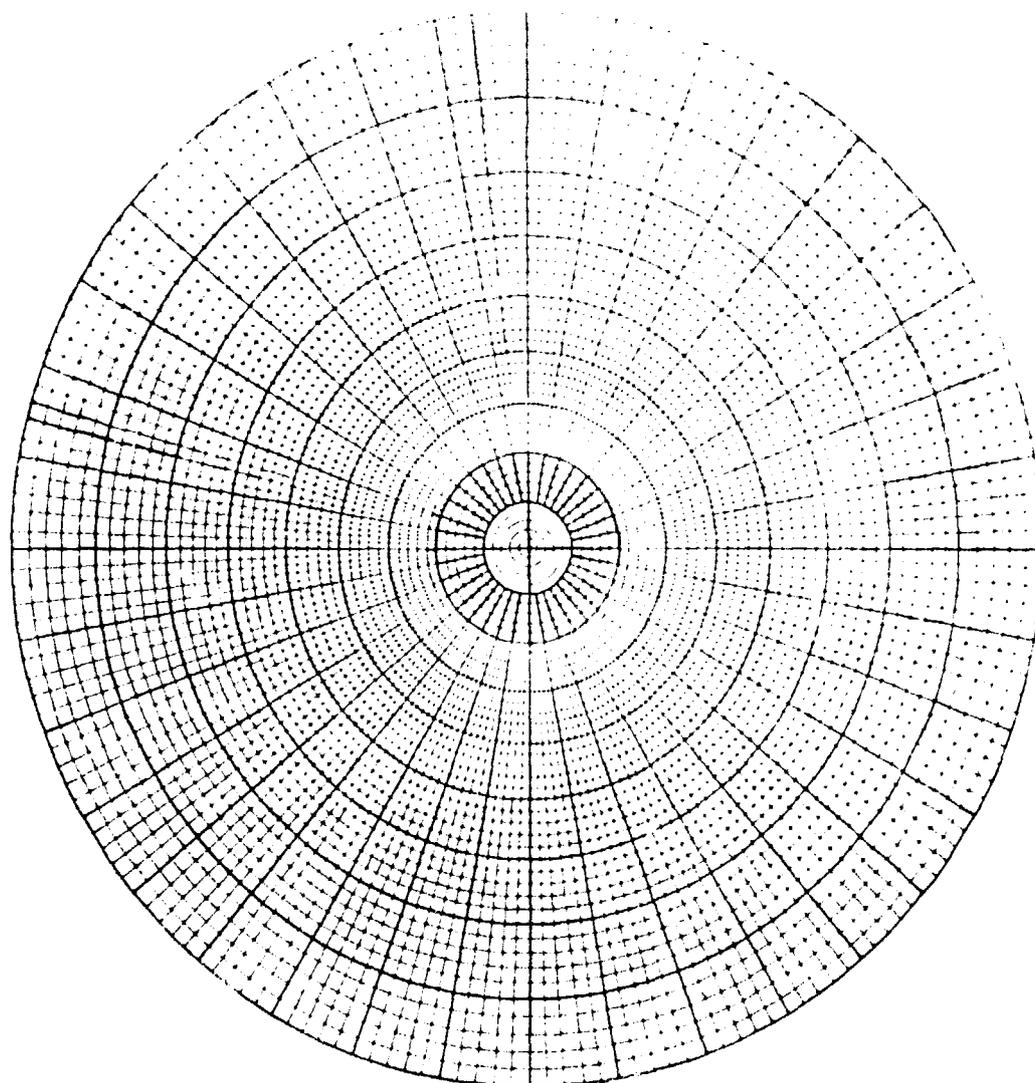


Figura 16 - Rede Estereográfica Polar

é perpendicular ao plano de projeção. Neste caso os meridianos são os raios, e as linhas de latitude são os círculos concêntricos da rede estereográfica polar.

As curvas de intensidade obtidas experimentalmente são utilizadas na construção da figura de pólos, da seguinte maneira. Constrói-se uma escala absoluta (utilizando o valor da unidade absoluta) sobre cada curva de intensidade, conforme mostra a Figura 16. A intersecção de uma linha horizontal, correspondente a um certo valor da escala absoluta, com a curva de intensidade, fornece os pontos da figura de pólos. Cada um desses pontos tem coordenadas que são: o ângulo α em que a curva de intensidade foi obtida, o ângulo β determinado pela intersecção, e o valor da linha de intersecção, em termos de escala absoluta. As coordenadas α e β servem para localizar o ponto sobre a rede estereográfica polar, enquanto que a terceira coordenada, isto é, o seu valor, em termos de unidade absoluta, serve para indicar a que linha de nível ele deverá pertencer. O valor do ponto pode ser marcado com a utilização de uma determinada cor, ou por um número, ou por qualquer outra forma conveniente. Cada uma das linhas da escala absoluta dará um certo número de pontos, de acordo com o número de vezes em que ela intercepta a curva de intensidade (veja como exemplo a linha 1,0 da Figura 16). Todos esses pontos têm, evidentemente, o mesmo valor e vão aparecer na rede todos colocados sobre um mesmo círculo α , em diferentes posições β . Para um outro valor da escala, na mesma curva de intensidade, outros pontos aparecerão sobre o mesmo círculo α , em posições β diferentes das anteriores. Estes pontos deverão ter cor (ou ter número, etc) diferentes dos anteriores. Este processo é repetido para todos os valores da escala absoluta, que foram escolhidos para a construção da figura de pólos, e para todas as curvas de intensidade obtidas na experiência. Ao final do processo tem-se sobre a rede estereográfica um conjunto de pontos, com determinados valores. Pontos de um mesmo valor, quando convenientemente ligados entre si, definem uma linha de mesmo valor ou linha de nível da figura de pólos. Um pólo normalmente localiza-se no centro de um conjunto de linhas fechadas, cujos valores vão diminuindo da região central para a mais externa. Para um pólo localizado próximo do círculo limite, as linhas serão interrompidas pelo círculo, mas têm continuidade se se considerar o outro hemisfério de projeção. Durante o traçado das linhas do mesmo nível, pela interligação dos pontos do mesmo valor, podem surgir indefinições no caminho a seguir. Em um caso como este torna-se necessário construir curvas de intensidade auxiliares, tais que novos pontos possam ser acrescentados à figura na região da indefinição. Essas curvas auxiliares são construídas, a partir das curvas de intensidade experimentais, pela fixação de um ângulo β adequado, o qual em cada curva, caracterizada por um ângulo α , corresponde a um valor de intensidade. O conjunto de valores encontrados para todos os ângulos α definem as curvas auxiliares que são, portanto, curvas de intensidade versus ângulo α , em um β fixo. Os pontos extras necessários, são obtidos das curvas auxiliares por processo idêntico aos das curvas para α fixo. Com um número suficiente destas curvas a figura de pólos pode ser definida integralmente.

IV.4 – Erros na Determinação de Uma Figura de Pólos

Os erros que surgem nos processos de determinação de uma figura de pólos têm várias origens. A primeira imprecisão ocorre durante a construção da amostra, onde as diversas placas que a constituem devem ser colocadas juntas, de forma que a direção de laminação seja conservada no conjunto. Este tipo de imprecisão não altera diretamente a qualidade da figura de pólos resultante, mas, isto sim, altera diretamente a textura original. Nas amostras utilizadas neste trabalho, todos os cuidados possíveis foram tomados para que esse tipo de erro fosse reduzido à ordem de uns poucos graus de desvio do paralelismo entre as direções de laminação das placas individuais. O cuidado seguinte é o que se refere ao posicionamento da amostra no goniômetro. Este posicionamento obedece a certas direções no próprio goniômetro, em relação à direção de laminação, conforme descrito no item 5 do capítulo III. Durante a construção da amostra, uma das arestas da base octogonal de cada placa é conservada paralela à direção de laminação, por um corte mais preciso. No conjunto de placas formando a amostra, essas bordas ficam sobrepostas, de tal maneira a estarem em um mesmo plano formando uma face lateral que, além de garantir o paralelismo entre as direções de laminação nas placas, serve também de referência. É em relação a esta face que a amostra é posicionada no goniômetro. O posicionamento é feito com a utilização de régua metálica e esquadro. O erro máximo estimado no processo é de cerca de 5° , em

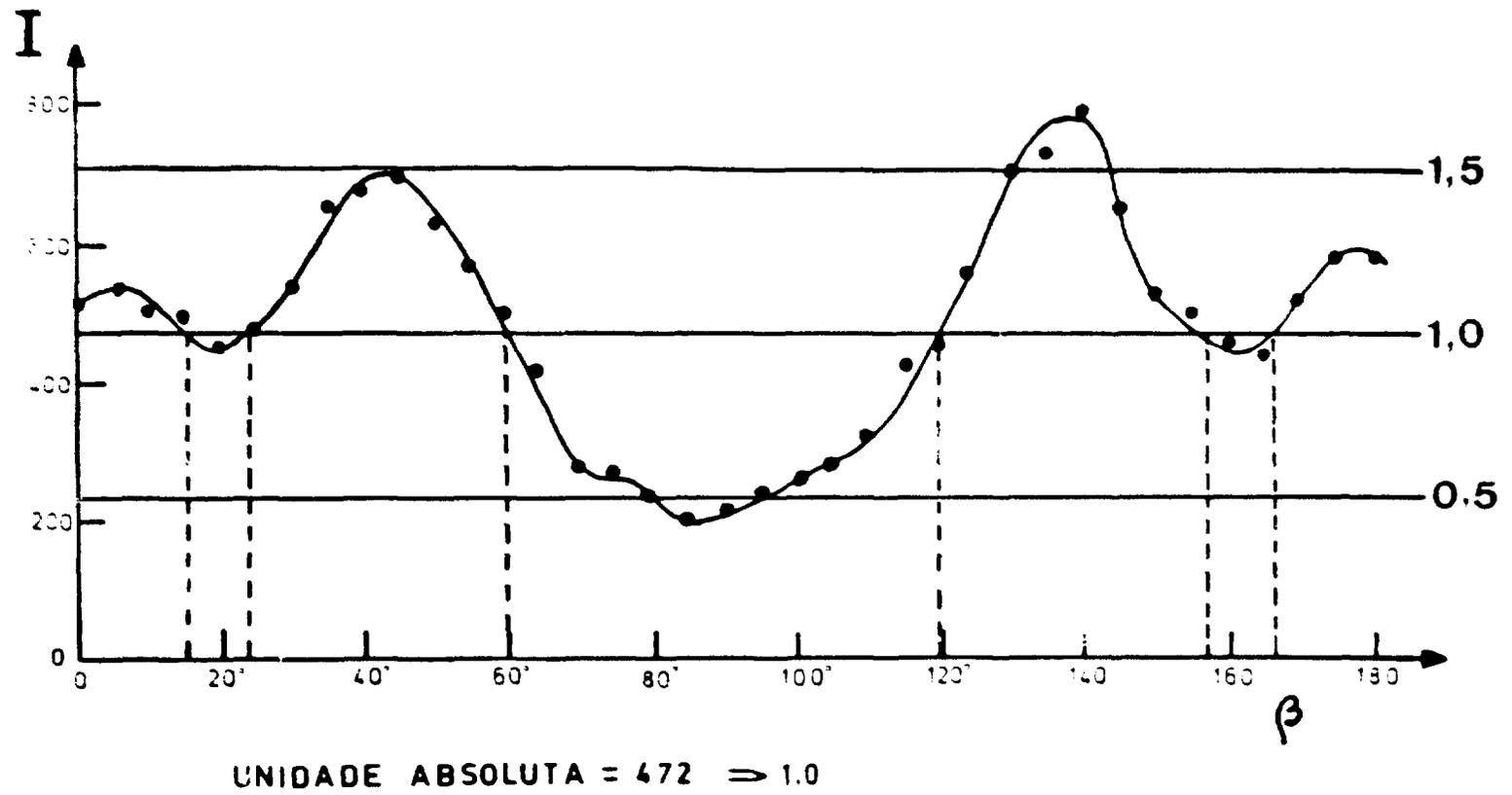


Figura 16 - Curva de Intensidade para Al Puro - $\alpha = 30^\circ$

qualquer dos ajustes feitos. As conseqüências deste tipo de erro resumem-se em uma distorção da figura de pólos, pois os ângulos de medida não correspondem exatamente aos ângulos α e β reais da amostra, relativos à normal à placa e à direção de laminação, respectivamente.

Ajustada a amostra, são realizadas as medidas de intensidade. Nestas medidas há o erro estatístico, que pode ser diminuído, como é do conhecimento geral, pelo aumento de tempo de medida, considerando-se que a intensidade do feixe incidente não pode ser alterada. Mas esta diminuição está sujeita a um compromisso entre o erro e o tempo de medida. É preciso considerar que se deve estabelecer um tempo razoável de acumulação de intensidade em cada ponto, de tal forma que não se torne impraticável a realização de todas as medidas. No caso presente, quando as reflexões eram de intensidade relativamente alta, foi possível obter uma estatística aceitável. Entretanto, em casos bem desfavoráveis, como o da fase UAl_4 em uma liga alumínio-urânio, foi necessário sacrificar-se a qualidade dos dados para se ter a possibilidade de realizar as medidas. Uma avaliação do problema pode ser vista no item 5, do capítulo III. Nas intensidades medidas é possível existir um erro que é causado pela flutuação de potência do reator e que deveria ser levado em conta. Porém, no nosso caso, utilizamos um monitor para as medidas, como foi mencionado no item 4 do capítulo III. Este monitor evitou completamente o problema.

Durante o tratamento de dados é necessário descontar a parte da intensidade que é devida à contribuição da radiação de fundo. A medida dessa radiação é feita com menos precisão estatística, o que introduz um erro em toda a curva de intensidade em que a correção é feita. Entretanto, na maioria dos casos, esse erro é proporcionalmente pequeno, uma vez que a contribuição da radiação de fundo para a intensidade é muito pequena.

Após as considerações sobre os erros na intensidade, poder-se-ia pensar em colocar cada ponto, de uma curva de intensidade, acompanhado do seu erro. Contudo, este procedimento é desnecessário pois, se a precisão estatística é razoável, o traçado da curva pode ser feito manualmente, sem o auxílio de ajustes analíticos. Deve-se levar em conta que o resultado final, ou seja, a figura de pólos, é utilizada qualitativamente na análise da textura. Sendo assim, tanto o traçado das curvas de intensidade, como a própria construção da figura de pólos, a partir dessas curvas, são processos que admitem aproximações tão grandes que estes cuidados em nada iriam melhorar os resultados. De fato, o que se pretende de uma figura de pólos é que ela indique as orientações preferenciais dos grãos da amostra. E essa indicação aparece mesmo nos casos mais desfavoráveis como tivemos oportunidade de verificar com as reflexões (200) e (121) da fase UAl_4 da amostra com 8% de urânio. Estas considerações estendem-se também à determinação da unidade absoluta, cujo processo envolve por si mesmo uma aproximação de cálculo, bem como se utiliza dos mesmos dados experimentais afetados de erro. Deve-se considerar, contudo, que se se pretende que a figura de pólos dê mais do que uma indicação qualitativa da textura, então um cuidado maior deve ser tomado com o problema dos erros. No caso de determinações quantitativas de texturas, maior atenção é dada aos fatores que alteram a intensidade especialmente quando raios-x são empregados^(9,17,22,29), e só neste caso justifica-se um cuidado maior com os erros.

CAPÍTULO V

ANÁLISE DOS RESULTADOS

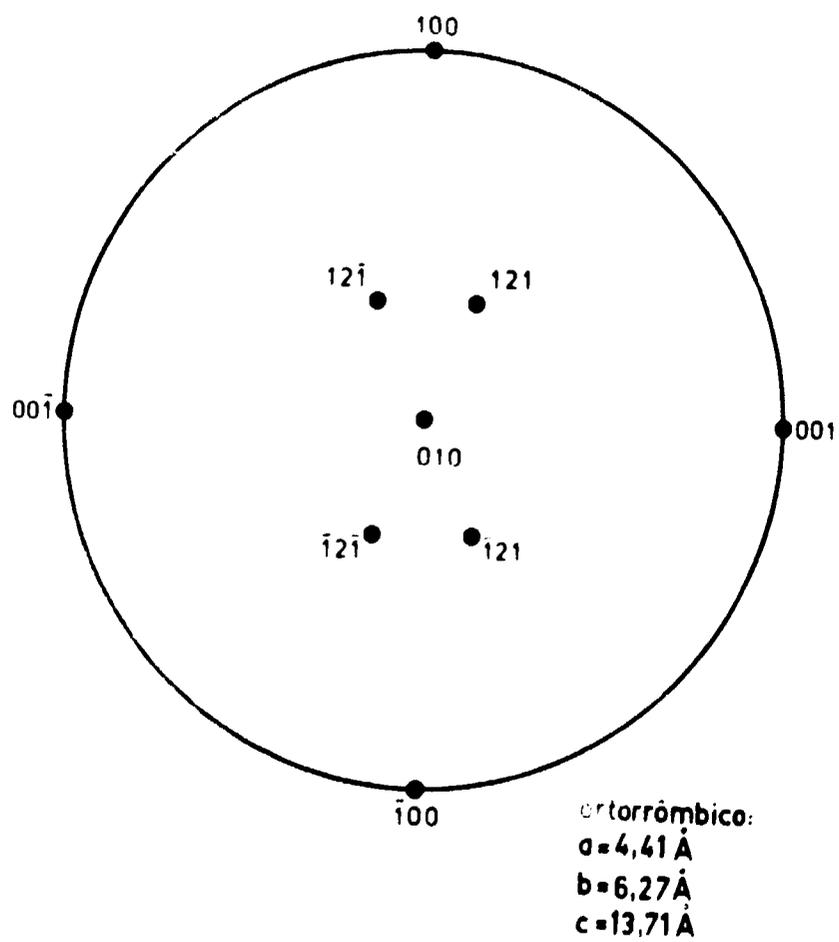
V.1 – Determinação das Orientações Preferenciais

Uma vez obtidas as figuras de pólos, segundo o procedimento exposto no capítulo anterior, é necessário determinar suas orientações preferenciais "ideais"⁽²⁰⁾. Em uma placa laminada, a forma mais comum dos grãos cristalinos estarem alinhados, é aquela em que eles têm um plano cristalino paralelo

ou quase paralelo, ao plano da placa, e uma direção paralela, ou quase paralela, a uma direção na placa. Tais texturas são representadas pelos símbolos $\{hkl\} [uvw]$, onde $\{hkl\}$ são os índices de Miller dos planos paralelos à placa e $[uvw]$ os índices da direção paralela a uma direção de referência na placa^(3,20). Em geral a direção de laminação é tomada como referência.

A forma de se determinar os índices que caracterizam a textura, é utilizar projeções estereográficas padrões tais que, por comparação, se encontre uma delas que melhor se superponha à figura de pólos. O procedimento utilizado será descrito a seguir. A figura de pólos é construída em uma rede estereográfica polar que tenha mesmo diâmetro que as projeções estereográficas padrões (v. apêndice 1), as quais se encontram desenhadas sobre material transparente. Estas projeções estereográficas correspondem às projeções dos pólos de um monocristal sobre um plano de referência e são indicadas pelo sistema cristalino, seguido dos índices desse plano de projeção. No caso cúbico, e somente neste caso, um conjunto de projeções pode ser utilizado para qualquer composto que cristalize neste sistema. Se o sistema for de menor simetria, como o tetragonal ou o hexagonal, uma determinada projeção estereográfica padrão serve para os compostos que tenham a mesma relação de parâmetros c/a para a qual a projeção tenha sido construída. Em sistemas de menor simetria ainda, como o ortorrômbico por exemplo, é, via de regra, necessário construir as projeções levando em conta os parâmetros de cada composto. No caso da fase $UA1_4$, por exemplo, tivemos de construir a projeção (010) de acordo com os parâmetros do composto. Nesta projeção colocamos apenas os pólos (121), (010) e (100), correspondentes às reflexões que observamos experimentalmente. Essa projeção (em tamanho menor que o real) é mostrada na Figura 17, onde estão indicados os parâmetros da rede do $UA1_4$. Uma vez que existam projeções padrões que possam ser superpostas a uma Figura de pólos em estudo, a verificação, de qual projeção melhor representa a textura, é feita por tentativa. Existem, em geral, algumas indicações de quais as projeções mais prováveis, o que evita que o processo seja totalmente aleatório. Desta forma, uma projeção provável é colocada sobre a figura de pólos, de maneira que os centros coincidam. A projeção é girada em torno do centro até que um de seus pólos, correspondente à reflexão utilizada na determinação da figura de pólos, esteja sobre uma região de máximo de um pólo. Quando ocorre uma coincidência, dependendo da simetria do sistema em que o material cristaliza, ocorrem simultaneamente outras coincidências. Entretanto alguns pólos da projeção só coincidem com pólos da figura, quando a simetria do sistema é levada em consideração. Um novo giro da projeção fará com que estes pólos venham a coincidir. Se por acaso alguns pólos da figura não podem ser explicados por uma só projeção, é porque existe mais de uma orientação preferencial da textura. Neste caso, as orientações preferenciais são relacionadas na ordem de importância^(3,20). Deve-se considerar que no processo de determinação das orientações preferenciais, mostradas por uma figura de pólos, existe um alto grau de subjetividade, em particular quando existe mais de uma orientação possível e é necessário estabelecer a contribuição de cada uma delas para a textura global.

Dependendo da simetria de um sistema, os planos equivalentes não são necessariamente paralelos. É o que acontece com o sistema cúbico onde planos não paralelos podem ser equivalentes. As faces do cubo, ou seja, os planos de índices (100), (010) e (001), bem como os planos correspondentemente paralelos $(\bar{1}00)$, $(0\bar{1}0)$ e $(00\bar{1})$, são todos equivalentes entre si. Neste caso, a um conjunto de planos equivalentes é dado o nome de forma e pode ser indicado por $\{hkl\}$. As faces do cubo podem, portanto, ser representadas pela forma $\{100\}$. O mesmo acontece com as direções das formas cristalográficas e elas podem ser representadas simbolicamente por $\langle uvw \rangle$ ⁽⁶⁾. Sendo assim, no caso cúbico, devido à alta simetria deste sistema as orientações preferenciais podem ser representadas pelo símbolo $\{hkl\} \langle uvw \rangle$. O significado desse símbolo é que, qualquer que seja o plano da forma $\{hkl\}$, uma projeção estereográfica desse plano terá pólos (da reflexão utilizada) coincidentes com pólos da textura, de tal forma que a direção de laminação será uma das direções equivalentes de $\langle uvw \rangle$. Estes símbolos foram usados na identificação das orientações preferenciais da reflexão (111) do alumínio das amostras. No caso das reflexões (121), (200) e (040) do $UA1_4$ das ligas, preferimos a notação $\{hkl\} [uvw]$, por não ter o composto a simetria cúbica, o que poderia causar alguma confusão. Ambas as formas de notação são encontradas na literatura.

Figura 17 – Projeção Estereográfica para UAl_4

V.2 – Resultados Obtidos

As orientações preferenciais determinadas para as figuras de pólos, obtidas na experiência, são relacionadas abaixo. A representação de mais de uma orientação preferencial para as figuras de pólos não significa que todas ocorrem simultaneamente, o que não teria nenhum sentido por serem muito pouco diferentes. Significa, isto sim, que, enquanto uma representa melhor alguns pólos da figura, outras representam melhor outros pólos. Esta é a razão por aparecerem todas elas, em uma certa ordem. A ordem em que aparecem é, como foi mencionado no item anterior, uma forma subjetiva de estabelecer uma ordem de preferência. Nas figuras de pólos deste trabalho, a ordem foi estabelecida de forma a que a primeira orientação preferencial seja a que melhor coincide com os pólos mais intensos. As outras, por sua vez, procuram explicar melhor outros pólos que não tenham sido bem explicados pela primeira. São comentados, em cada caso, a qualidade da figura de pólos e o valor máximo alcançado pelas linhas de nível, na escala absoluta. Esta última característica serve para uma noção do grau alcançado pela textura.

Para complementar o estudo das texturas das fases, foram tiradas microfotografias das ligas, bem como do alumínio puro. Para observação dessas microfotografias⁽¹⁾, o Centro de Metalurgia Nuclear preparou as amostras da seguinte maneira. As placas foram seccionadas na posição desejada e a parte retirada foi embutida em baquelita. Em seguida foi efetuado um lixamento mecânico úmido, sucessivamente com lixas de carboneto de silício de 180, 320, 400 e 600 g. Após o lixamento as amostras foram polidas com pasta de diamante de 6 μ e 1 μ de diâmetro médio. Finalmente, as amostras foram atacadas quimicamente com uma solução de ácido fluorídrico a 1%. As fotografias, então, foram obtidas por meio de um microscópio ótico.

V.2.1 – Figuras de Pólos

As figuras de pólos determinadas foram as seguintes:

a) Alumínio puro – reflexão (111)

A determinação desta figura de pólos (Figura 18) não envolveu maiores dificuldades, pois toda a massa da amostra contribuiu para a reflexão. A precisão estatística foi suficientemente boa resultando em uma figura de pólos bem definida.

As orientações mais prováveis são as seguintes:

$$\{110\} \quad \langle \bar{1}12 \rangle$$

$$\{551\} \quad \langle \bar{6}411 \rangle$$

Nos pólos de maior intensidade desta figura, as linhas de nível alcançaram 1,75 da escala absoluta. Comparativamente às outras figuras de pólos, da mesma reflexão do alumínio, esta é de textura mais acentuada, com exceção da liga Al-U(8%) que é comentada a seguir.

b) Al-U(8%) – reflexão (111) da matriz de alumínio

A determinação desta figura de pólos (Figura 19) não implicou também em grandes dificuldades pois, neste caso, na massa total a maior parte era alumínio. Da mesma forma que a anterior, esta figura de pólos resultou ser bem definida.

Orientações prováveis:

$+ \{110\} \langle \bar{1}12 \rangle$
 $\circ \{551\} \langle \bar{6}411 \rangle$

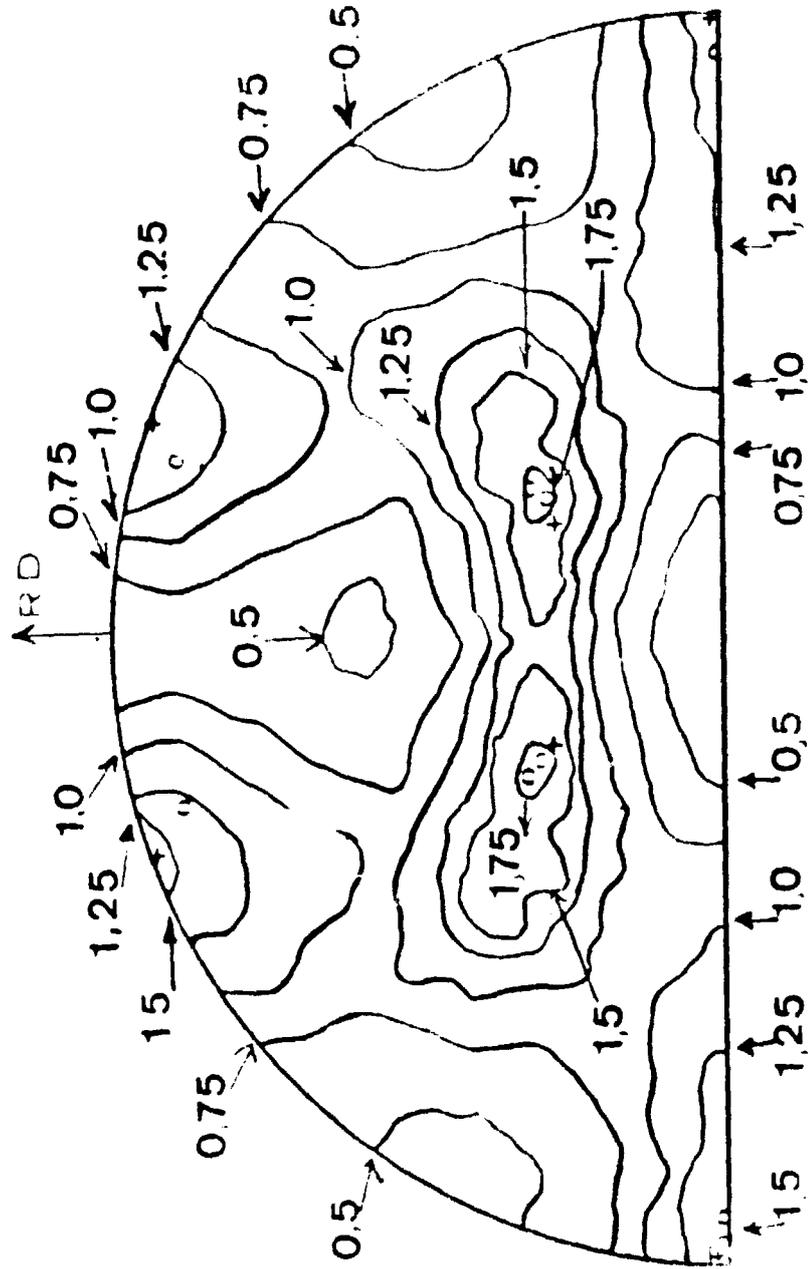


Figura 18 - Figura de Pólos Al(111)

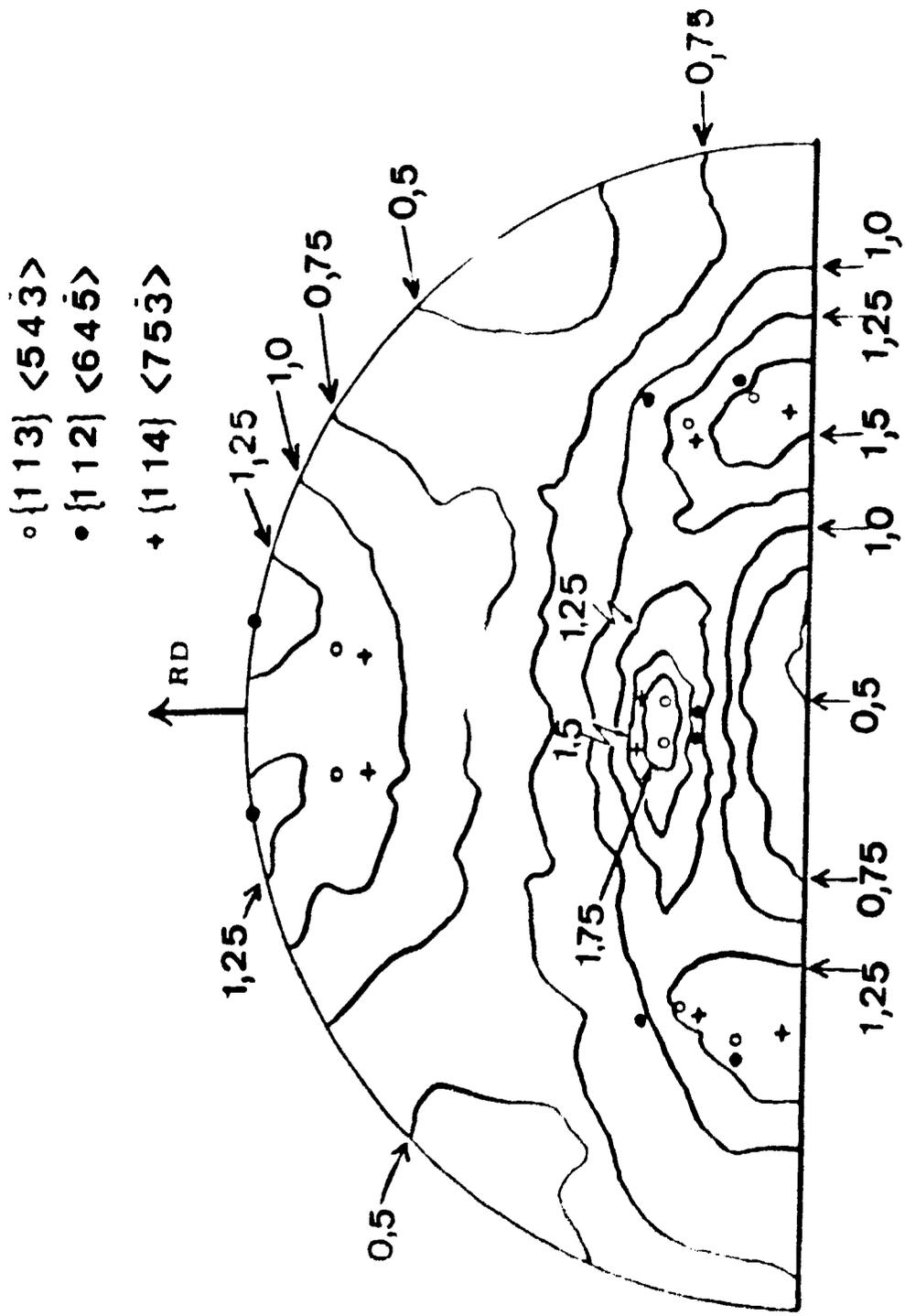


Figura 19 - Figura de Pólos Al-U(8%) Al(111)

$$\{113\} \quad \langle 54\bar{3} \rangle$$

$$\{112\} \quad \langle 64\bar{5} \rangle$$

$$\{114\} \quad \langle 75\bar{3} \rangle$$

Nesta como na figura anterior, as linhas de nível dos pólos mais intensos alcançaram 1,75 da escala absoluta. Como mencionado anteriormente, esta figura, juntamente com a do alumínio puro, tem textura mais acentuada do que todas as outras obtidas com a reflexão (111) da matriz de alumínio.

c) Al-U (21,5%) Reflexão (111) da matriz de alumínio

Este é um caso idêntico aos dois anteriores, no que se refere às dificuldades e à qualidade da figura de pólos (Figura 20)

Orientações prováveis

$$\{113\} \quad \langle 33\bar{2} \rangle$$

$$\{112\} \quad \langle 11\bar{1} \rangle$$

$$\{114\} \quad \langle 22\bar{1} \rangle$$

No polo mais intenso, a linha de nível de maior valor atinge 1,25 da escala absoluta. Portanto, houve uma queda no grau de textura com relação às duas primeiras curvas. Uma queda na intensidade dos pólos é ocasionada por uma maior dispersão da orientação dos grãos cristalinos. Os pólos se tornam mais largos e, portanto, menos definidos.

d) Al-U (23,7%) – Si (2,2%) – reflexão (111) da matriz de alumínio

Quanto às dificuldades de obtenção dos dados para a figura de pólos desta amostra (Figura 21) valem as mesmas observações das amostras anteriores. Contudo, a qualidade da própria figura foi prejudicada pelo fato de que as variações de intensidade nas curvas experimentais eram bem acentuadas, o que causa uma grande imprecisão na determinação dos pontos que vão formar a figura de pólos (v. item 3 do capítulo IV).

Orientações:

$$\{114\} \quad \langle 22\bar{1} \rangle$$

$$\{113\} \quad \langle 33\bar{2} \rangle$$

Os pólos desta figura são pouco acentuados, e no polo mais intenso a linha de nível de valor máximo vale 1,25 da escala absoluta. Em comparação com a anterior as duas figuras parecem ter o mesmo grau de textura. Os aspectos distintos das figuras podem ser atribuídos aos diferentes valores das curvas de nível, utilizadas na construção dessas figuras.

c) Al-U (8%) – reflexões (200) e (121) da fase UAl_4

- {113} <332̄>
- {112} <11ī>
- + {114} <22ī>

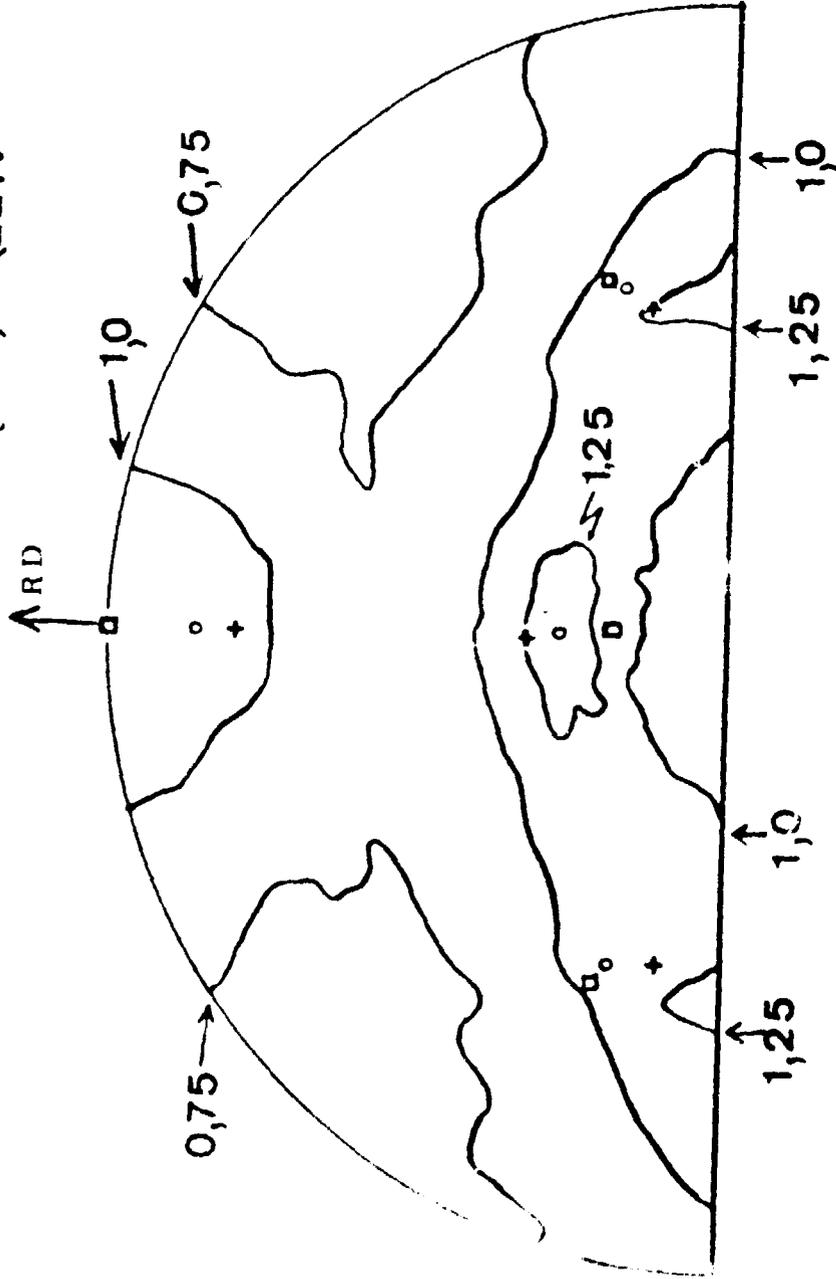


Figure 20 - Figura de Pólos Al-U(21,5%) Al(111)

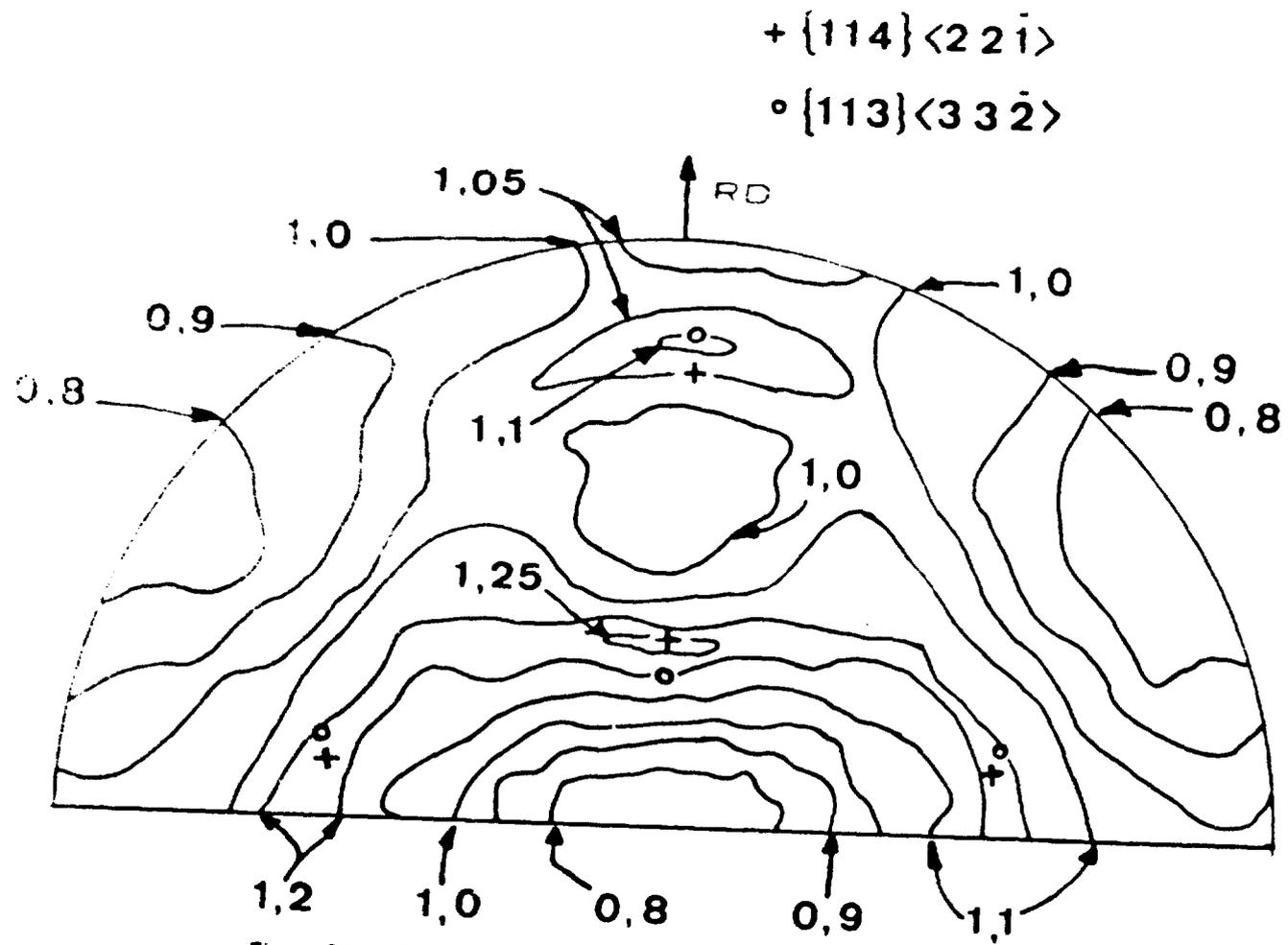


Figura 21 - Figura de Pólos Al-U(23,7%) - Si(2,2%) Al(111)

Diferentemente de todas as anteriores, estas figuras de pólos envolveram muitas dificuldades, desde a obtenção dos dados experimentais até a constituição das figuras. Como foi mencionado no item 5 do capítulo III, a proporção de UAl_4 na massa total é muito pequena implicando em um tempo muito grande para a obtenção das curvas de intensidade. E o compromisso de manter a precisão estatística aceitável, dentro de um tempo razoável, é desfavorável em termos da intensidade. Contudo, o maior problema surge quando da correção da radiação de fundo. É que, em toda a intensidade dificilmente acumulada, a maior contribuição é devida à radiação de fundo, na sua maior parte proveniente do espalhamento incoerente do alumínio, e após o processo de correção desta radiação os pontos resultantes têm tão grandes flutuações que se torna bem difícil traçar as curvas de intensidade, especialmente no caso em que a textura é pouco acentuada. Portanto, levando em conta todas estas dificuldades, as figuras de pólos das duas reflexões utilizadas não podem ser, de fato, de boa qualidade. De qualquer forma, elas dão uma indicação aceitável da orientação preferencial da fase UAl_4 dispersa na matriz de alumínio da liga.

Nas duas figuras de pólos (Figuras 22 e 23) a orientação preferencial é a seguinte:

$$(010) \quad [100]$$

A textura apresenta-se pouco acentuada nesta amostra, sendo que as linhas de nível alcançam um valor máximo de 1,5 para a figura de pólos relativa à reflexão (200), e 1,2 para a reflexão (121). Quanto à figura de pólos obtida com a reflexão (121), vê-se claramente na Figura 23 que a orientação preferencial encontrada não representa muito bem os pólos. Uma tentativa de encontrar outra projeção estereográfica que representasse melhor as figuras de pólos, mostrou que a projeção (010) é ainda a única a explicar satisfatoriamente tanto os pólos da reflexão (121) como os da reflexão (200). A discrepância nas posições dos pólos ideais, com relação aos pólos da textura, pode então ser atribuída à qualidade das figuras de pólos.

f) Al-U (21,5%) – reflexões (200), (040) e (121) da fase UAl_4

As dificuldades encontradas na determinação destas figuras de pólos (Figuras 24, 25 e 26) foram do mesmo tipo que as encontradas para a amostra de Al-U (8%). Entretanto, elas foram menos acentuadas pois, neste caso, existia uma porcentagem maior de massa de UAl_4 , contribuindo para as intensidades difratadas. Um outro fator, que melhora a qualidade da figura de pólos, é que as curvas de intensidade apresentam picos mais acentuados, fazendo com que o seu traçado se torne mais fácil e os pontos delas obtidos sejam bem mais definidos. Esses dois fatores contribuíram para que as figuras de pólos resultassem mais precisas do que as da amostra com 8% de urânio.

No caso das três figuras de pólos, a orientação preferencial é a mesma da amostra anterior:

$$(010) \quad [100]$$

Os valores máximos das linhas de nível das figuras de pólos, mostram uma textura bem mais acentuada que no caso da amostra anterior. O valor máximo encontrado para a figura de pólos de reflexão (200) foi 3,0 (anterior:1,5), o relativo à reflexão (040) foi 6,0 e finalmente para a reflexão (121) foi obtido o valor 2,0 (anterior:1,2), da escala absoluta.

g) Al-U (23,7%) – Si (2,2%) – reflexão (111) da fase UAl_4

A figura de pólos relativa a essa amostra não pôde ser construída pois não se observou indícios

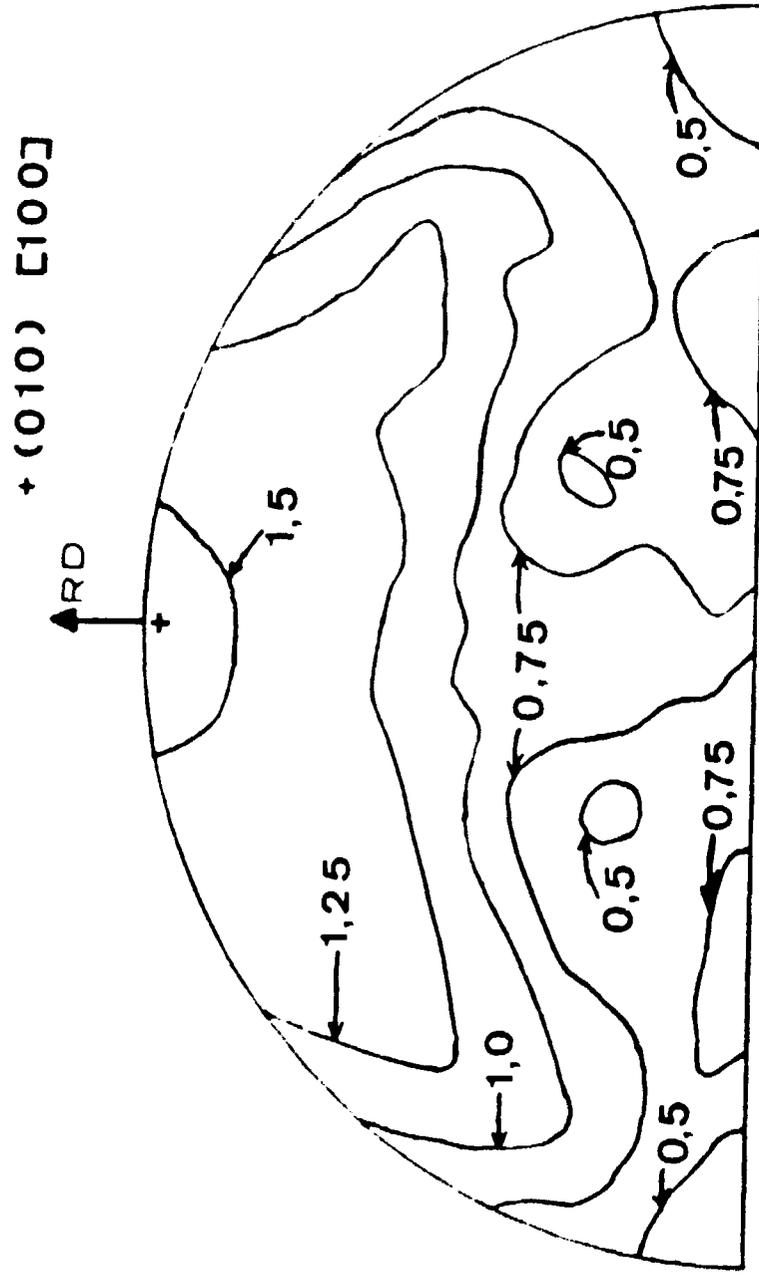


Figura 22 - Figura de Pólos Al-U(8%) UAl₄ (200)

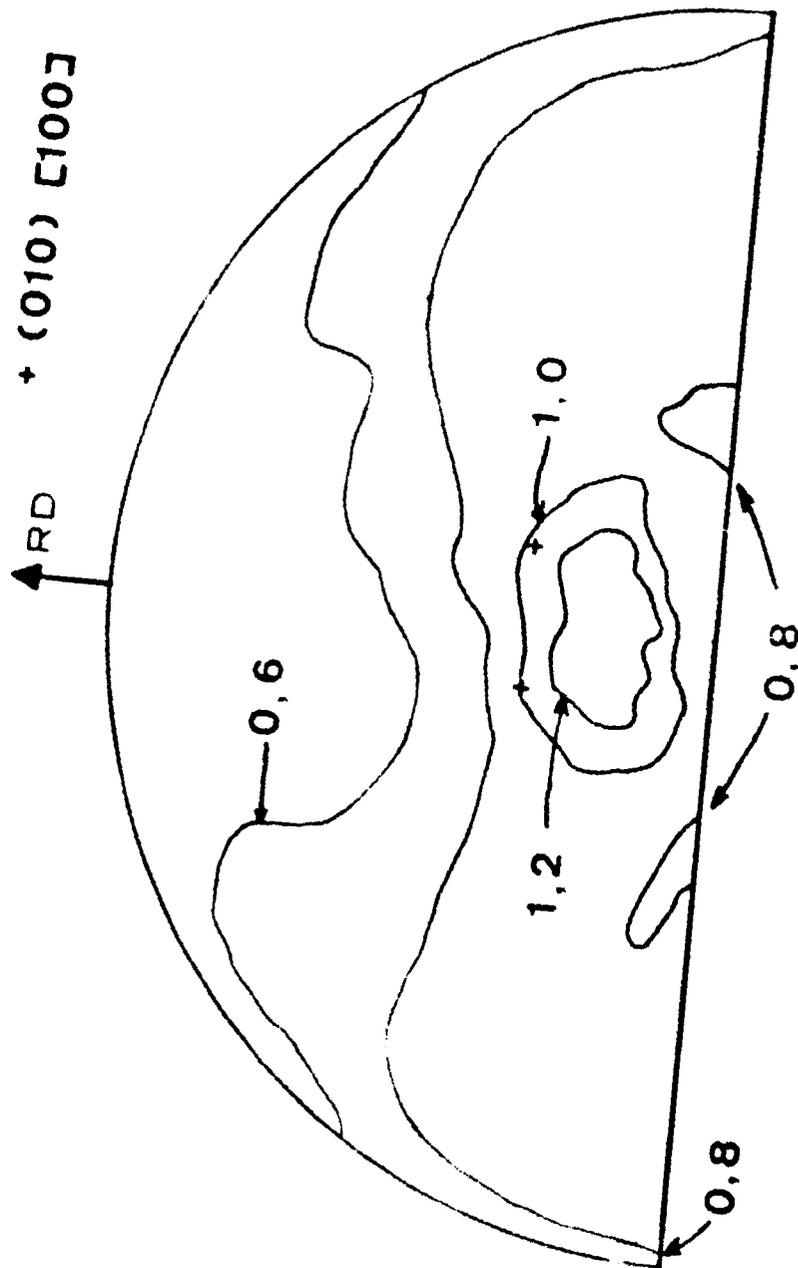


Figura 23 -- Figura de Pólos Al-U(8%) UA₁₄ (121)

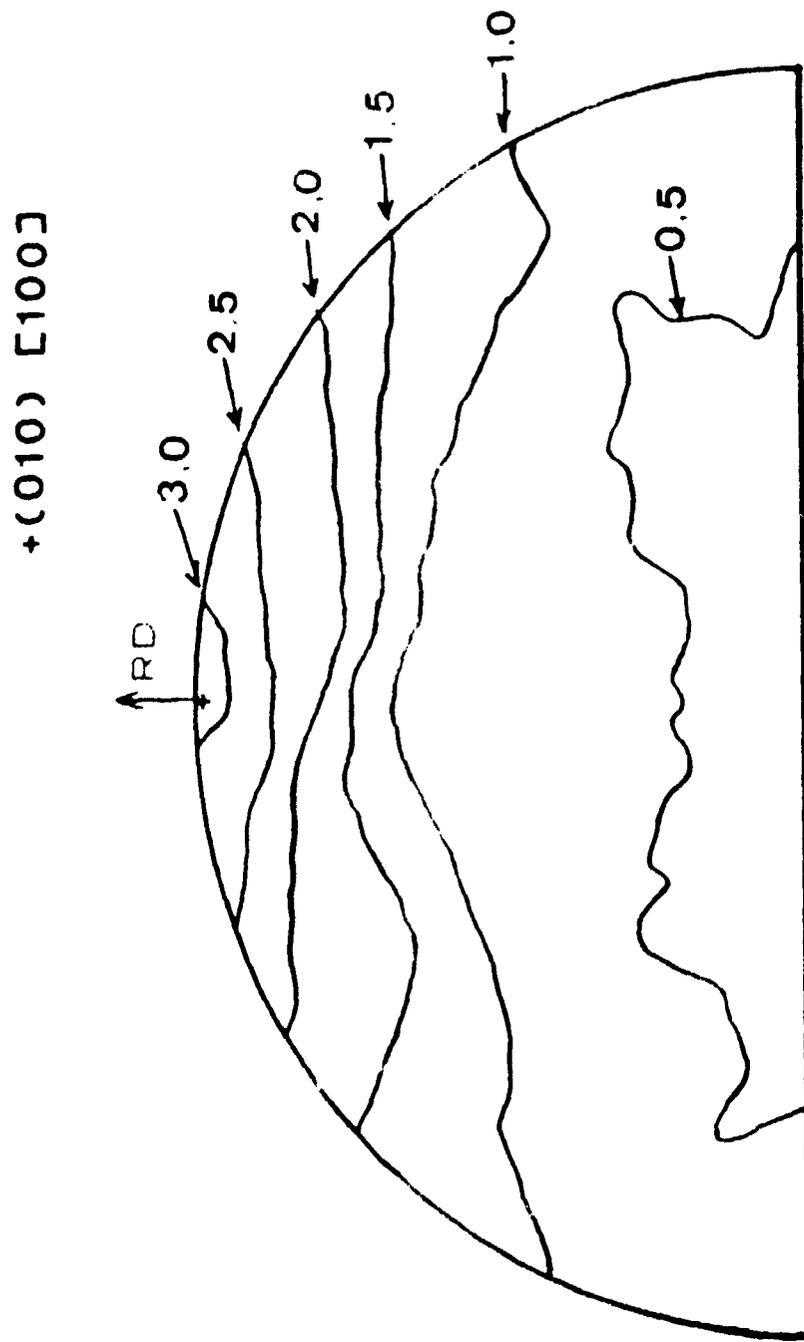


Figura 24 - Figura de Pólos Al-U (21,5%) UAl₄ (200)

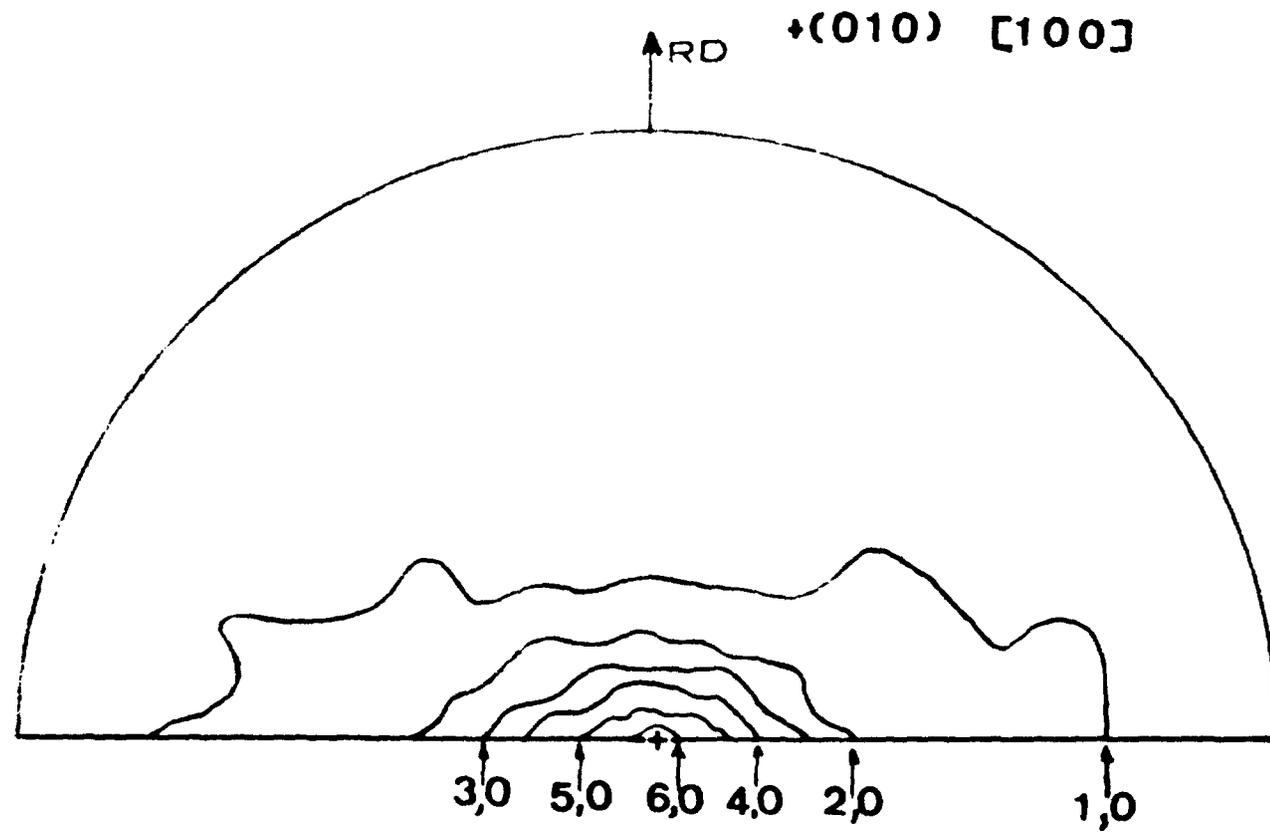


Figura 25 - Figura de Pólos $Al-U(21,5\%) UAl_4 (040)$

+ (010) [100]

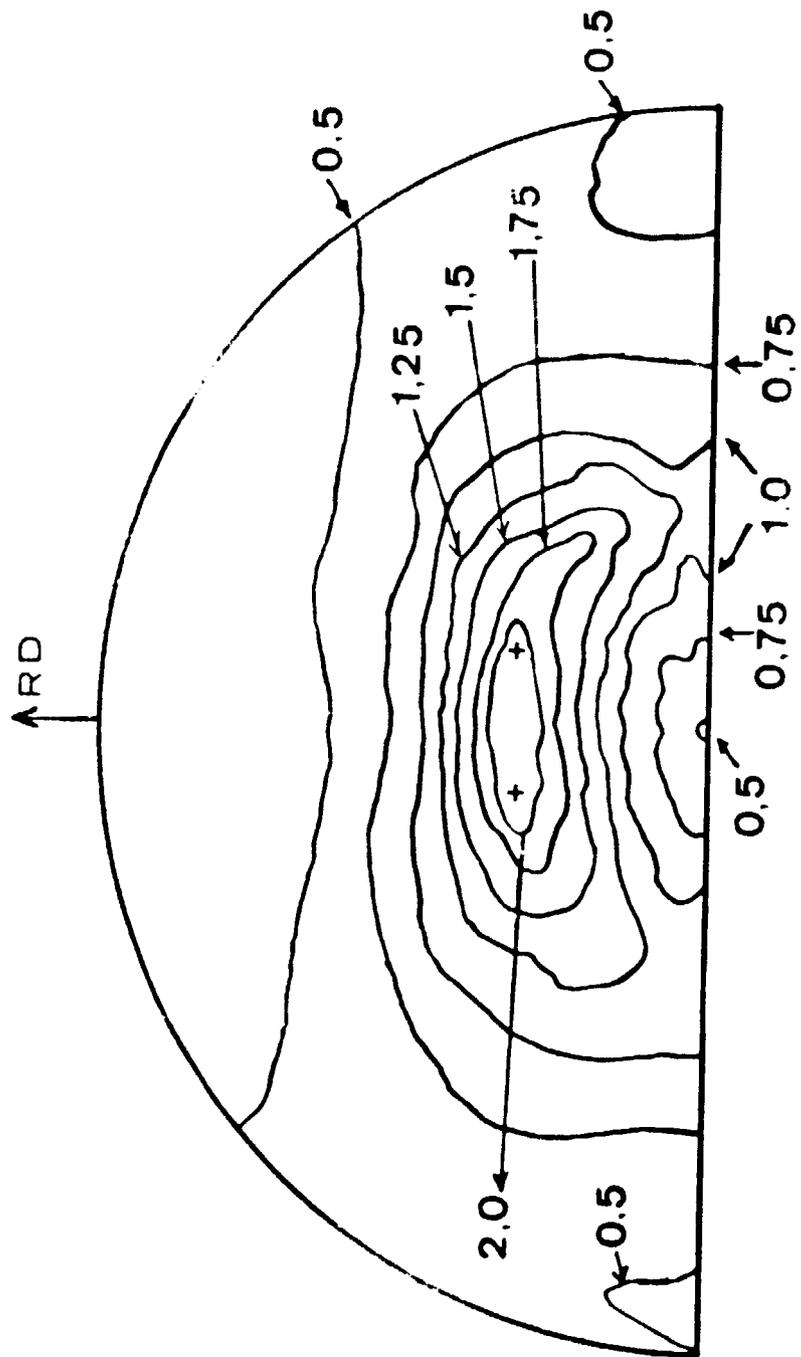


Figura 26 - Figura de Pólos Al-U(21,5%) UAl₄ (1121)

de textura nas curvas de intensidade. A Figura 27 ilustra o fato mostrando duas curvas de intensidade, obtidas para $\alpha = 30^\circ$ e $\alpha = 60^\circ$, onde as intensidades se mantêm praticamente constantes, indicando uma distribuição ao acaso das orientações dos grãos cristalinos da fase UAl_3 . Todas as outras curvas determinadas para este caso apresentaram comportamento idêntico ao das duas mostradas na Figura.

Finalmente, a Figura 28 mostra a variação da posição dos pólos encontrados nas figuras de pólos determinadas para as amostras estudadas. Pela observação dessa figura pode-se notar que a variação maior na posição desses pólos ocorre quando se passa da amostra de alumínio puro para a liga com 8% de urânio. A variação em relação às outras duas ligas é bem menor, sendo que entre elas praticamente não se percebe variação na posição de seus pólos. Sendo assim, a liga com 8% de U tem uma textura intermediária, isto é, uma orientação preferencial entre a do alumínio puro e as das ligas com maior porcentagem de urânio.

V.2.2 – Microfotografias

Algumas das microfotografias obtidas serão apresentadas a seguir. Acompanhando cada microfotografia, há um comentário geral sobre a caracterização das ligas.

a) Alumínio puro

A microfotografia do alumínio puro (Figura 29) foi obtida com um aumento de 150 vezes. Destaca-se apenas os contornos de um grão cristalino do alumínio.

b) Al-U (8%)

A microfotografia desta liga (Figura 30) foi obtida com um aumento de 150 vezes. Esta é uma liga hipoeutética com duas fases: uma delas a matriz de alumínio e outra o composto intermetálico UAl_4 que, de acordo com o diagrama de equilíbrio (Figura 1, capítulo I), se forma durante a solidificação a $660^\circ C$, de uma fase líquida. Na microfotografia, as regiões mais escuras correspondem ao eutético $Al + UAl_4$, onde o UAl_4 é formado de grãos de tamanho bastante reduzido. As regiões claras correspondem à matriz de alumínio puro⁽¹⁴⁾. O aspecto fibroso destas duas regiões deve ter resultado do processo de laminação, e as fibras se estendem ao longo da direção de laminação, que é a direção horizontal.

c) Al-U (21,5%)

A microfotografia desta liga (Figura 31) foi obtida com 150 vezes de aumento. É uma liga hipereutética com as mesmas duas fases da liga anterior. A sua microestrutura é composta de grãos de UAl_4 , que se destacam pelo tamanho e forma, dispersos no eutético formado pelas fases Al e UAl_4 . Os grãos de UAl_4 de grande tamanho foram formados antes da solidificação da liga. O diagrama de equilíbrio mostra que acima de 13% em peso de urânio (ponto eutético) até 68,8%, a mistura em equilíbrio passa por várias fases, durante um resfriamento lento. De uma fase líquida em altas temperaturas, o sistema passa por duas fases, uma líquida contendo urânio e alumínio, e outra sólida formada por cristais de UAl_3 . Em $750^\circ C$ ocorre a transformação da fase UAl_3 em UAl_4 , continuando a existir uma fase líquida contendo urânio e alumínio. Abaixo de $640^\circ C$, a fase líquida solidifica-se no eutético, onde os cristais de UAl_4 ficam dispersos. Os cristais de UAl_4 , apresentam-se normalmente na forma de losangos ou agulhas, conforme mencionado no capítulo I, com fissuras causadas pelo aumento de volume do composto, quando da transformação $UAl_3 \rightarrow UAl_4$ ^(8,10,14). Estas duas formas podem ser identificadas na microfotografia onde todos os cristais maiores aparecem fissurados, indicando que são originários do UAl_3 . A direção horizontal é a direção de laminação, e se pode perceber uma certa

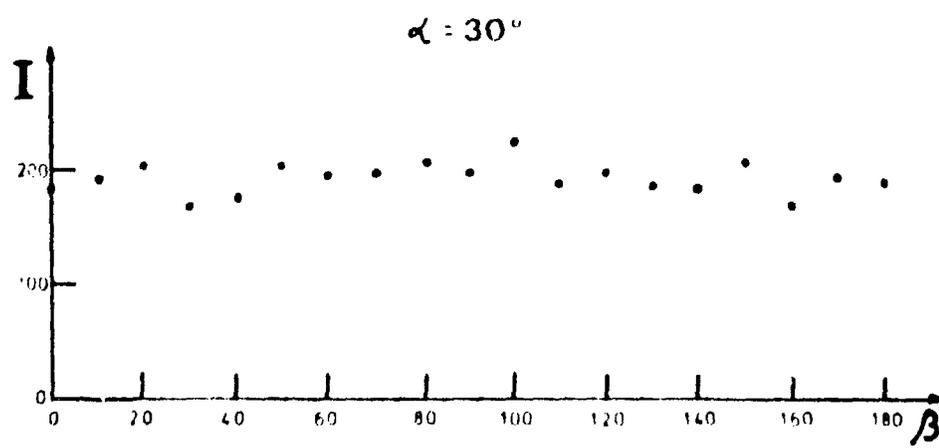
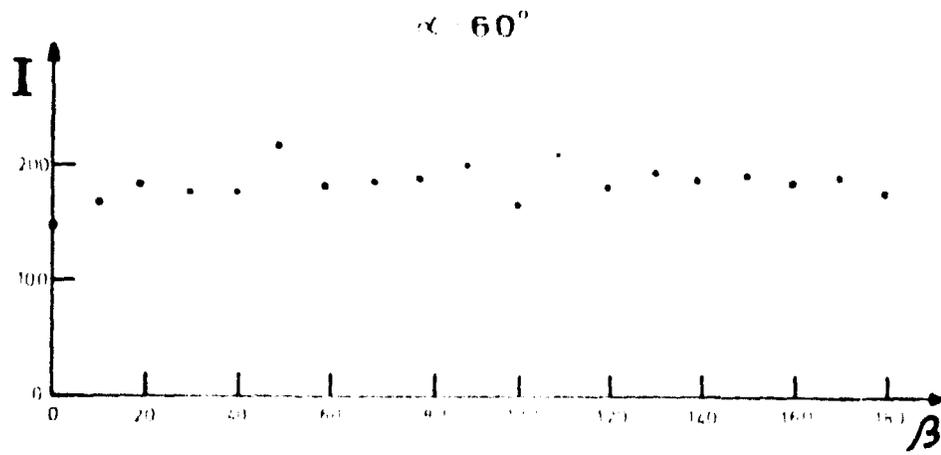


Figura 27 - Curvas de Intensidade para ^{235}U (23,7%) - Si (2,2%) UAl_3 (111)

- [] AI
- ⊕ AI - U (8%)
- ▲ AI - U (15%)
- ⊗ AI - U (20%)

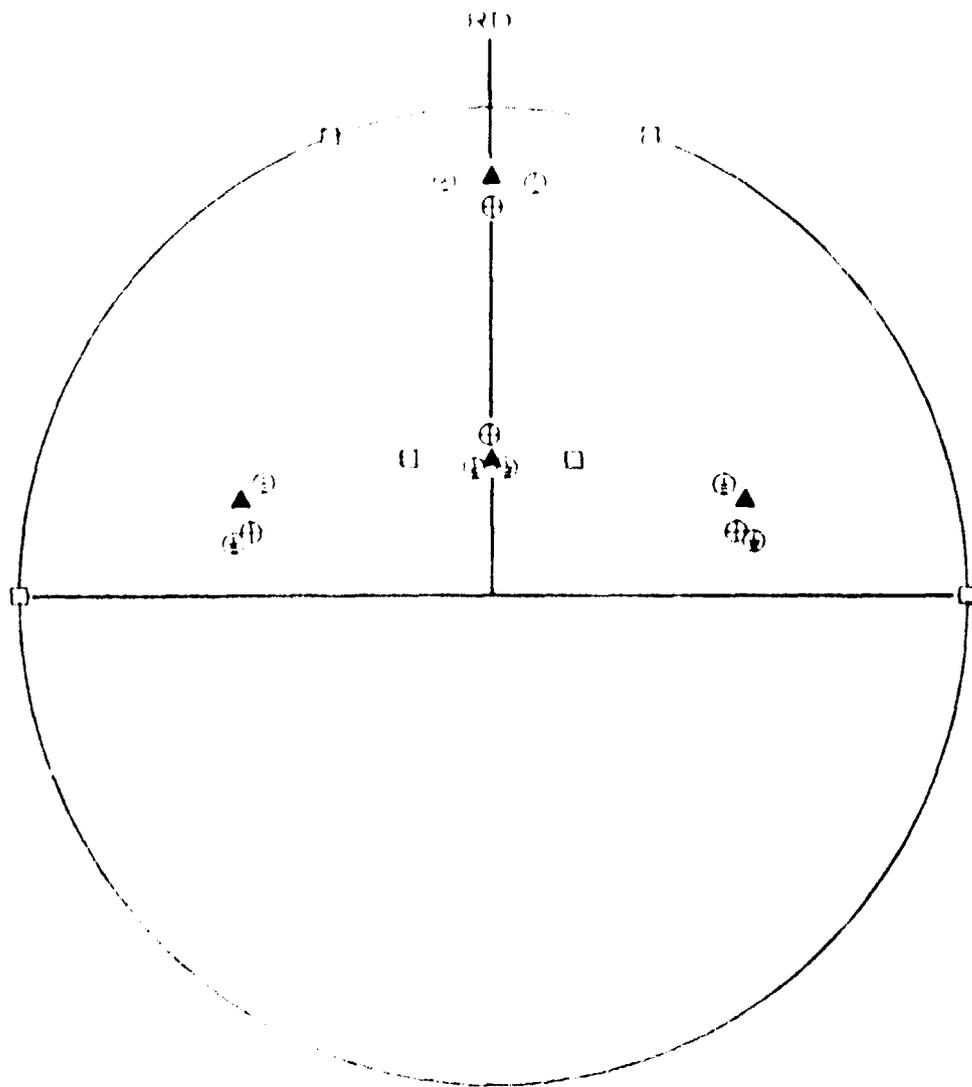


Figura 28 Posição dos Pólos Relativos às Amostras Estudadas

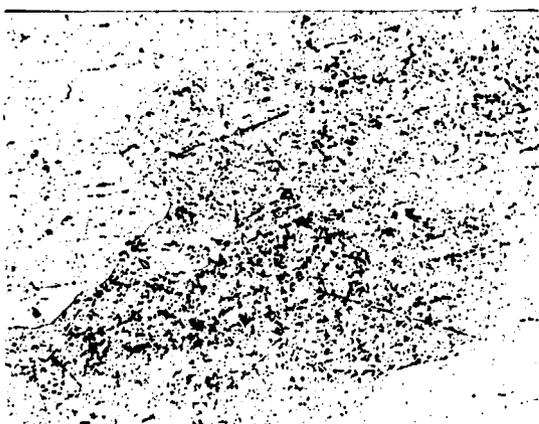


Figura 29 – Alumínio Puro, Aumento 150X, Direção de Laminação (RD) na Horizontal



Figura 30 – Al-U(8%), Aumento 150X, RD na Horizontal



Figura 31 – Al-U(21,5%), Aumento 150X, RD na Horizontal

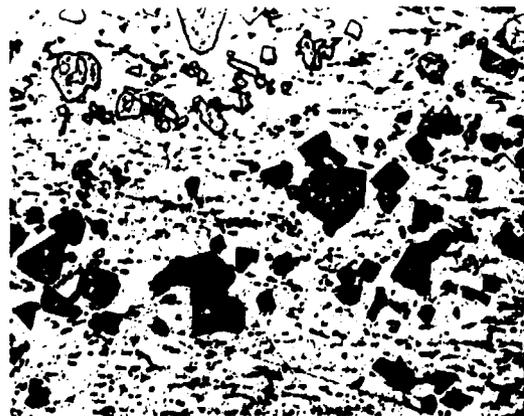


Figura 36 – Al-U (23,7%) – Si(2,2%), Aumento 270X, RD na Horizontal

orientação dos grãos com relação a essa direção. Um espectro de difração da liga, mostrou a presença do UAl_4 juntamente com o alumínio (Figura 32). Não foi detectada a presença de UAl_3 , indicando que a transformação deve ter sido total.

As Figuras 33, 34 e 35, mostram microfotografias dessa liga em três regiões distintas da placa, com 30 vezes de aumento. Esse pequeno aumento permite que se perceba melhor a orientação dos grãos de UAl_4 , e portanto pela observação das três figuras, nota-se que realmente há uma maior orientação na direção de laminação.

d) Al-U (23,7%) – Si (2,2%)

A microfotografia (Figura 36, junto às Figuras 29, 30 e 31) foi obtida com 270 vezes de aumento. Esta é também uma liga hipereutética, contendo a fase UAl_3 , a fase alumínio e, em se considerando a formação do eutético, a fase UAl_4 . A descrição das fases que se formam durante um processo de resfriamento lento, em que o sistema se mantém em equilíbrio é semelhante à descrição feita para a liga com 21,5% de urânio. Difere apenas no fato de que a transformação $UAl_3 \rightarrow UAl_4$ é inibida pela presença do silício^(8,14). Quando solidificada, a liga deve conter cristais da fase UAl_3 dispersos no eutético formado pelas fases Al e UAl_4 ^(10,14), pois ele solidifica-se, em 640°C de uma fase líquida contendo alumínio e urânio. Entretanto, um espectro de difração da liga indicou somente a presença de alumínio e UAl_3 (Figura 37). Isto não implica necessariamente na inexistência de UAl_4 , uma vez que este deve comparecer em tão baixa concentração, a ponto de não ser facilmente detectado. A microfotografia da Figura 36 mostra os grãos de UAl_3 como cristais com formas aproximadamente arredondadas, ou melhor, sem dimensões acentuadamente diferentes. Esses cristais estão dispersos no eutético, que se apresenta em forma semelhante ao eutético da liga anterior, com 21,5% de urânio.

CAPÍTULO VI

CONCLUSÕES GERAIS

Uma análise em conjunto dos resultados obtidos mostra que, entre as texturas do alumínio puro e da liga Al-U (8%) e as texturas das ligas Al-U (21,5%) e Al-U (23,7%) – Si (2,2%), existe uma diferença de cerca de 30% a menos na intensidade máxima observada nas figuras de pólos das ligas com mais urânio (v. Figuras 18, 19, 20 e 21 do capítulo V). Esta tendência à formação de uma textura menos acentuada com o aumento na concentração de urânio, já fora observada por W. C. Thurber e C. J. Mc Hargue, em trabalho semelhante a este⁽³²⁾. Estes dois autores determinaram por meio de raios-x as texturas de alumínio puro e de ligas com 5% e 13% de urânio em peso, laminadas a frio. Uma comparação dos nossos resultados, com os resultados dos autores mencionados, mostra orientações preferenciais bem diferentes nos dois casos. Para o alumínio puro encontramos como orientação preferencial mais importante a $\{110\} \langle \bar{1}12 \rangle$ (v. Figura 18, cap.V) enquanto que eles encontraram $\{5,6,16\} \langle \bar{1}0, \bar{1}3, 8 \rangle$. O resultado por nós encontrado, já foi mencionado como próprio de metais c.f.c., laminados a frio, em trabalhos iniciais de determinação de texturas. Posteriormente, a textura desses metais foi melhor determinada e passou a ser $(123) [41\bar{2}]$, ou melhor, como sendo a composição $(123) [41\bar{2}] + (146) [21\bar{1}]$. A orientação $(110) [11\bar{2}]$ passou a descrever a textura de certas ligas como, por exemplo, cobre-zinco com cerca de 30% de zinco em peso, ou latão comercial 70-30⁽⁶⁾. Otto J. Eyr e Rudolf Klemencic encontraram para o alumínio laminado a frio a orientação $(124) [21\bar{1}]$, utilizando tanto nêutrons como raios-x na determinação das figuras de pólos⁽¹³⁾. Esta multiplicidade de resultados, muitas vezes bem diferentes uns dos outros, é uma característica dos estudos desta natureza, onde os mais diversos fatores podem influir na formação da textura. Entre esses fatores, por diversas vezes mencionados, certamente estão a redução total da espessura na laminação⁽⁶⁾, a existência de uma

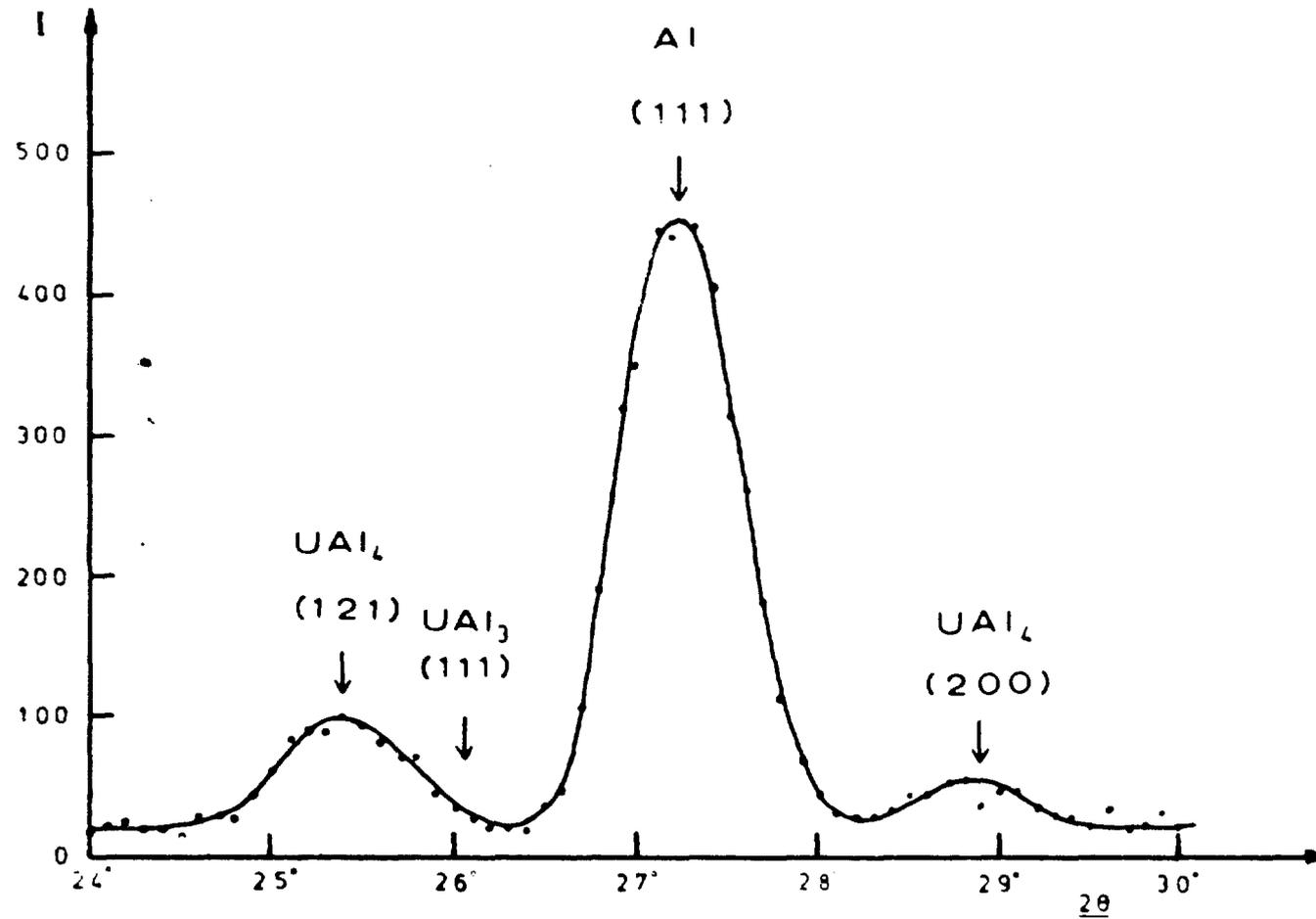


Figura 32 - Espectro de Difração da Liga Al-U (21,5%)



Figura 33 – Microfotografia da liga Al-U (21,5%). Vista lateral da placa, com a Direção de Laminação Horizontal e Paralela à Fotografia. O plano de Laminação é Horizontal e Normal à Fotografia. Aumento: 30X



Figura 34 – Microfotografia da liga Al-U (21,5%). Vista lateral da placa, com a direção de laminação normal à fotografia. O plano de laminação é horizontal e normal à fotografia. Aumento: 30 X.



Figura 35 – Microfotografia da Liga Al-U (21,5%). Vista Superior da Placa, com a Direção de Laminação Horizontal. Aumento 30X

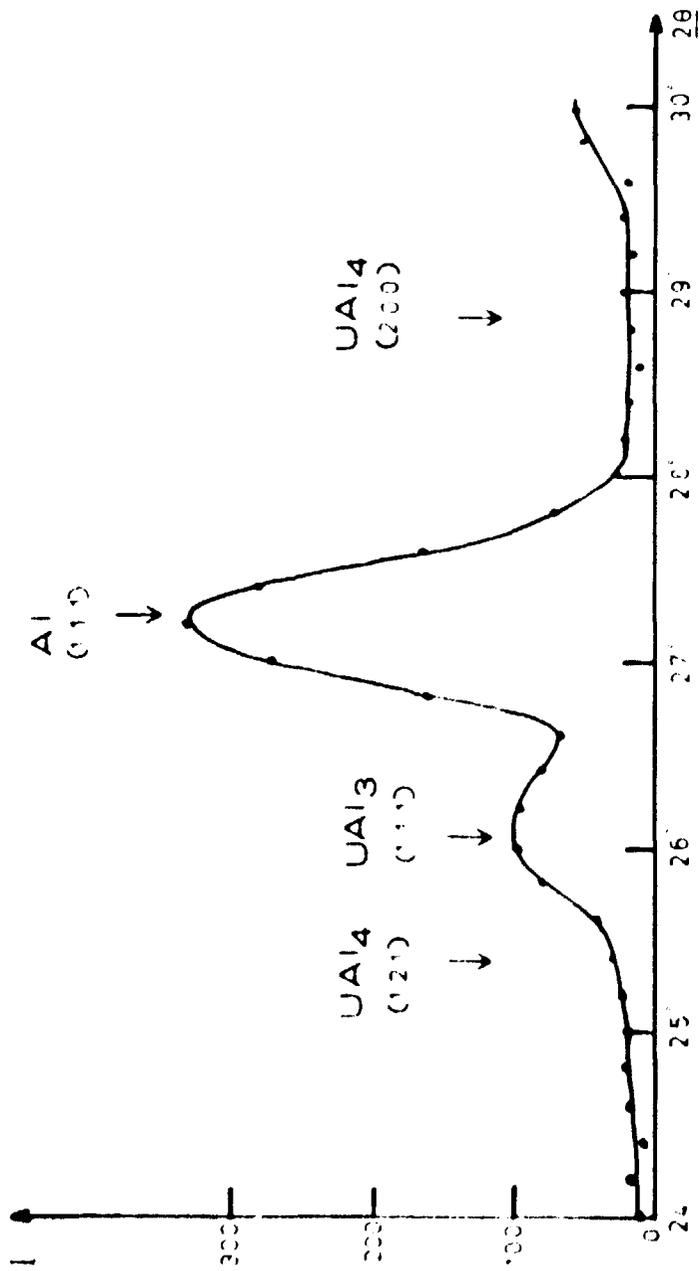


Figura 37 - Espectro de Difração da Liga Al-U (23,7%) - Si(2,2%)

textura prévia, e a técnica de laminação empregada⁽¹²⁾. Não há dúvida de que a laminação a quente, em temperaturas próximas do ponto de fusão do material, pode conduzir a uma textura diferente daquela obtida pela laminação a frio desse material. Quanto à redução em espessura, convém notar que nos trabalhos citados a laminação foi de 90% ou mais, enquanto que no caso presente a redução total limitou-se a 75%.

No que se refere às ligas, a comparação dos nossos resultados com os de Thurber e Mc Hargue deve ser feita levando-se em conta as diferentes concentrações de urânio das ligas. Uma comparação com maior significado pode ser feita entre as ligas hipoeutéticas Al-U (8%) deste trabalho, e Al-U (5%), dos autores mencionados, dada a pequena diferença em concentração nas amostras, entre um e outro caso. As orientações preferenciais, encontradas nos dois casos, são diferentes, ou seja, $\{124\} \langle 232 \rangle$ para a liga com 5% de urânio, e $\{113\} \langle 543 \rangle$ para a nossa liga com 8% de urânio (v. Figura 19, cap.V). Os motivos para estes resultados serem diferentes são basicamente os mesmos que no caso do alumínio. As ligas Al-U (21,5%), deste trabalho, e Al-U (13%), do trabalho mencionado, deram resultados fundamentalmente diferentes. A liga com 21,5% de urânio é hipereutética enquanto que, a com 13% tem exatamente a concentração eutética. Entretanto, segundo o trabalho em referência, esta última liga não apresentou a microestrutura típica do eutético, consequência de solidificação em condições de não-equilíbrio. Enquanto que a liga com 21,5% de urânio apresentou uma textura com orientação $\{113\} \langle 332 \rangle$, (v. Figura 20, cap.V), a liga com 13% apresentou textura de fibra, com eixo aproximadamente paralelo à direção $\langle 111 \rangle$. A hipótese formulada por Thurber e Mc Hargue, para explicar a formação de textura de fibra em uma placa laminada de uma liga alumínio-urânio, é que os grãos de UAl_4 orientam-se relativamente ao plano e à direção de laminação, nos primeiros estágios do processo de laminação. Nos estágios subsequentes a matriz de alumínio puro é virtualmente estudada através do arranjo de grãos de UAl_4 , sendo este o processo que explicaria a formação da textura de fibra. Não é este, entretanto, o caso da liga Al-U(21,5%) que não tem textura de fibra, embora os grãos de UAl_4 sejam orientados preferencialmente segundo a direção de laminação, como parecem indicar as microfotografias das Figuras 31, 33, 34, 35, do capítulo anterior. De fato, as figuras de pólos da fase UAl_4 desta liga, mostram uma textura bastante acentuada, com orientação preferencial (010) [100]. Entre todas as figuras de pólos determinadas, a da reflexão (040) do UAl_4 é que alcançou o maior valor em unidades absolutas, isto é, cerca de 6 unidades. Mesmo a liga com 8% de urânio apresenta a fase UAl_4 orientada, entretanto em forma bem menos acentuada que a da liga com 21,5%. As figuras de pólos das reflexões (121) e (200) da liga com 8% de urânio atingem valores máximos das linhas de nível que são cerca de metade dos valores atingidos na liga com 21,5%. O maior grau de orientação da fase UAl_4 , na liga Al-U(21,5%), surge do fato de que a maioria dos seus grãos são bem maiores do que os grãos dessa fase na liga Al-U(8%), como pode ser verificado, no capítulo anterior, pela observação das microfotografias das Figuras 31 e 30, respectivamente. Como já foi mencionado, por diversas vezes, os grãos de UAl_4 derivam da fase UAl_3 durante o abaixamento da temperatura do sistema alumínio-urânio, com concentrações de urânio acima de 13% e abaixo de 68,8%, em peso. E a fase UAl_3 forma-se em meio líquido, podendo seus grãos crescerem até tamanhos relativamente grandes. Na liga Al-U(8%), hipoeutética, a fase UAl_4 se forma durante a solidificação, e os grãos não podem atingir tamanhos muito grandes. E grãos maiores são mais facilmente orientados pelo fluxo plástico de alumínio, durante a laminação. De qualquer forma, a presença de grãos com formas arredondadas ou alongadas, com maior ou menor tamanho, com maior ou menor grau de orientação, não parece ser o fator dominante na formação das texturas da matriz de alumínio das ligas, nem parece influenciar o grau com que essas texturas se desenvolvem, pelo menos no que se refere a este trabalho. É o caso da liga Al-U(23,7%) – Si(2,2%), em que a fase UAl_3 não apresenta orientação preferencial, como mencionado no capítulo anterior. Os grãos de UAl_3 são os que se formam em meio líquido, nas ligas hipereutéticas, mas são impedidos de se transformarem em UAl_4 durante o abaixamento da temperatura do sistema, como foi mencionado anteriormente. Esses grãos podem ser considerados equiaxiais, daí não terem a tendência de se orientarem no fluxo plástico, durante a laminação. A total ausência de orientação dos grãos de UAl_3 nesta liga, em contraste com a acentuada orientação dos grãos do UAl_4 na liga Al-U(21,5%), não provoca diferenças maiores entre as figuras de pólos da matriz de alumínio das duas ligas. Com exceção dos aspectos um tanto diferentes das figuras de pólos (v. Figuras 20 e 21, capítulo anterior), em que se destaca o pólo principal com forma mais alongada e estreita na liga com silício, não há diferenças

essenciais nas orientações preferenciais, bem como no grau atingido pelas texturas. De fato, para a liga Al-U(21,5%) as orientações preferenciais adequadas são $\{113\} \langle 332 \rangle$, $\{112\} \langle 111 \rangle$ e $\{114\} \langle 221 \rangle$, enquanto que na liga Al-U(23,7%) - Si(2,2%) elas são $\{114\} \langle 221 \rangle$ e $\{113\} \langle 332 \rangle$. A ordem em que aparecem as duas orientações coincidentes e a existência de uma terceira orientação, na liga com menor concentração de urânio, podem ser tidos mais como consequência da subjetividade inerente ao processo de determinação das orientações, do que de diferenças essenciais nas figuras de pólos. Mesmo no aspecto grau de textura, as figuras de pólos se equivalem, como foi mencionado no capítulo anterior.

De um modo geral, no que se refere ao grau de textura das figuras de pólos (111) do alumínio e da matriz de alumínio das ligas, uma comparação dos resultados deste trabalho com os resultados de Eder e Klemencic⁽¹³⁾ e de Thurber e Mc Hargue⁽³²⁾ levam às observações expostas a seguir. As figuras de pólos (111) do alumínio puro, laminado a frio com 90% de redução em espessura, atingem níveis máximos que variam de 3 a 9 unidades absolutas, enquanto que, para o alumínio laminado a quente com 75% de redução, o nível máximo foi de 1,75 unidades absolutas. Com relação às ligas, as diferenças não são tão grandes. As ligas com 5% e 13% de urânio, laminadas a frio em 90%, apresentaram 3 e 2,5 unidades absolutas, respectivamente, como nível máximo nas figuras de pólos (inversas), ao passo que as ligas com 8%, 21,5% e 23,7% de urânio, laminadas a quente em 75%, apresentaram 1,75 unidades absolutas, a primeira e 1,25 unidades absolutas as outras duas. Portanto, tanto o alumínio puro quanto as ligas obtidas por laminação a frio apresentaram texturas mais acentuadas do que os casos equivalentes obtidos por laminação a quente. Pode-se destacar ainda o fato de que entre o alumínio e as ligas, laminados a frio, há uma diferença nos níveis máximos entre 50% e 60% para menos nas ligas. Essa mesma diferença, no caso dos materiais estudados neste trabalho, é da ordem de 30%, o que já foi mencionado no início deste capítulo. As diferenças observadas nos dois casos, quanto ao grau de textura, podem ser também atribuídas às diferentes temperaturas de laminação bem como às diferentes porcentagens de redução de espessura na laminação.

Uma contribuição deste trabalho relaciona-se com o cálculo da direção paralela à direção de referência, no caso a direção de laminação. As projeções estereográficas padrões não podem conter um número de pólos muito grande pois, em caso contrário, se tornariam pouco práticas. Quando da verificação das orientações preferenciais, na maioria das vezes a direção de laminação não cai sobre um pólo do círculo máximo da projeção padrão. Embora não exista na projeção padrão, esse pólo pode ser calculado sabendo-se os ângulos que ele forma com dois pólos do círculo máximo e levando-se em conta que ele é ortogonal ao pólo central. Um programa para calculadora de bolso foi escrito para esses casos, o qual permitiu dentro de uma certa aproximação, encontrar a direção cristalográfica paralela à direção de laminação, em muitas das figuras de pólos determinadas.

Durante a realização da experiência, houve um progresso notável na sistemática aplicada à obtenção das curvas de intensidade. De um processo de medida em que se tornava obrigatório a presença de um operador para acionar o módulo de mudança do ângulo, bem como os canais de contagem, passou-se à obtenção das curvas em forma automática. Somente durante a passagem de uma curva de intensidade para outra, isto é, no fim de cada curva de intensidade e início da seguinte, tornava-se necessária a presença do operador. Este sistema automático de obtenção das curvas de intensidade foi incorporado ao difratômetro de nêutrons, e constituiu-se em uma contribuição à instrumentação existente. Do ponto de vista da técnica experimental, este trabalho demonstra como tirar um bom proveito de uma das características fundamentais da radiação de nêutrons: a baixa absorção dessa radiação pela maioria dos elementos. Graças à baixa absorção tornou-se possível utilizar uma amostra toda imersa no feixe, o que elimina a necessidade da correção da variação do volume irradiado com a alteração do ângulo α . O fato é que, com a amostra toda imersa no feixe, se torna possível a utilização de um só método na obtenção das curvas de intensidade, em todo o intervalo de variação de α . Desta forma, o fator de normalização entre métodos é também eliminado. Finalmente, com a escolha de uma forma de amostra que seja, ao mesmo tempo, fácil de obter e que se aproxime de uma simetria esférica, é possível eliminar a correção de absorção, já por si de pouca influência nos resultados, uma vez que o método é mais propriamente aplicável aos casos de baixa absorção. A baixa absorção de nêutrons faz com que se acentuem os efeitos do fenômeno conhecido como espalhamento múltiplo. O espalhamento

múltiplo impede que se verifique a proporcionalidade entre volume difratante e intensidade difratada. No caso de medidas de texturas, o problema não reside na existência ou não de espalhamento múltiplo, mas na variação do efeito com a alteração da posição da amostra no feixe. Em poucas palavras, é a variação do espalhamento múltiplo, com a variação de α que deve ser evitada. E a variação do espalhamento múltiplo, em uma amostra sem textura toda imersa no feixe, vai depender de sua forma. Na amostra com textura, além da forma o grau de orientação preferencial tem um papel importante no fenômeno: nos pólos da orientação, onde a intensidade difratada é mais intensa, o espalhamento múltiplo é também acentuado. A forma das amostras adotada neste trabalho reduz o problema do espalhamento múltiplo à existência, ou não, de uma textura acentuada. No caso de alto grau de textura torna-se necessário corrigir para o efeito de espalhamento múltiplo. Em caso contrário, essa correção é desnecessária. Nas amostras estudadas neste trabalho, as texturas são bem pouco acentuadas, o que dispensou qualquer tipo de correção para o fenômeno.

APÊNDICE 1

PROJEÇÕES ESTEREOGRÁFICAS

As relações angulares entre as faces do cristal, as arestas do cristal, os planos atômicos, as zonas e os elementos de simetria, não podem ser corretamente representados por desenhos em perspectiva; se eles são representados matematicamente tornam-se difíceis de serem compreendidos e utilizados. Entretanto, por meio de projeções estereográficas eles são entendidos facilmente e utilizados convenientemente.

A projeção estereográfica é utilizada para os seguintes propósitos: determinação da orientação do cristal; reorientação de cristais preparados para corte de faces específicas; determinação de índices cristalográficos de marcação de superfície, tal como deslizamento, deformação de bandas, etc...; e resolução de problemas cristalográficos envolvendo a precipitação, transformação no estado sólido e crescimento. Orientações preferenciais de materiais policristalinos são sempre tratados com projeções estereográficas (figuras de pólos). Propriedades direcionais de um cristal, ou de um material policristalino, podem ser mapeados sobre uma projeção estereográfica; como exemplo têm-se os módulos de elasticidade e a condutividade elétrica⁽⁶⁾.

A projeção estereográfica^(3,6,18,35) é baseada na projeção esférica. Assume-se que o cristal está colocado no centro de uma esfera transparente e oca (esfera de referência), de modo que o centro da esfera coincida com o centro do cristal. Assume-se ainda que o tamanho do cristal é muito pequeno comparado com o tamanho da esfera. Os planos do cristal, quando prolongados para interceptar a esfera, sempre passam pelo seu centro e interceptam sua superfície formando círculos. Esses círculos são chamados "grandes círculos", pois têm o diâmetro igual ao diâmetro da esfera.

Sobre essa "projeção esférica" os grandes círculos representam vários planos do cristal, e os ângulos entre eles são os mesmos ângulos entre os planos. E então essa projeção dá, sem distorção, as relações angulares do cristal. Esse método de representação dos planos do cristal não é muito conveniente quando se tem um número muito grande de planos, pois então envolve muitos grandes círculos. Uma alternativa é representar os planos, na esfera, por pólos. Os pólos são obtidos traçando normais aos planos com origem no centro da esfera. O ponto de interseção da normal de um dado plano com a superfície da esfera é chamado de pólo desse plano. O grande círculo M, correspondente ao plano F do cristal, é representado pelo pólo P, e é mostrado na Figura 38. Assim, pode-se obter vários pólos correspondentes a diferentes planos do cristal, e todos esses pólos sobre a esfera formam uma projeção esférica. O método de construção da projeção esférica é mostrado na Figura 39.

As relações angulares entre os planos do cristal são preservados na projeção, visto que esses ângulos correspondem aos ângulos entre as normais aos planos. Na projeção, os ângulos entre as normais são os ângulos entre os pólos medidos sobre o grande círculo comum a esses pólos.

Todas as operações cristalográficas podem ser estudadas por meio da projeção esférica mas, como esta é dada em três dimensões, uma proposta prática é o uso de uma projeção dada em duas dimensões, pois assim pode-se trabalhar sobre uma folha de papel. Existem muitas projeções viáveis, mas a projeção estereográfica é a mais conveniente e a mais usada. Nessa projeção a esfera é mapeada sem perder a relação angular entre os pólos. Esses ângulos podem ser matematicamente calculados para a projeção ou medidos diretamente utilizando a rede de Wulff⁽⁶⁾.

Uma projeção estereográfica pode ser construída a partir de uma projeção esférica, da maneira exposta a seguir. O plano de projeção tomado é o plano que passa horizontalmente através do centro de projeção esférica. Cada pólo da esfera é então projetado no plano de projeção ligando os pólos a um ponto R situado na parte de baixo da esfera (Figura 40).

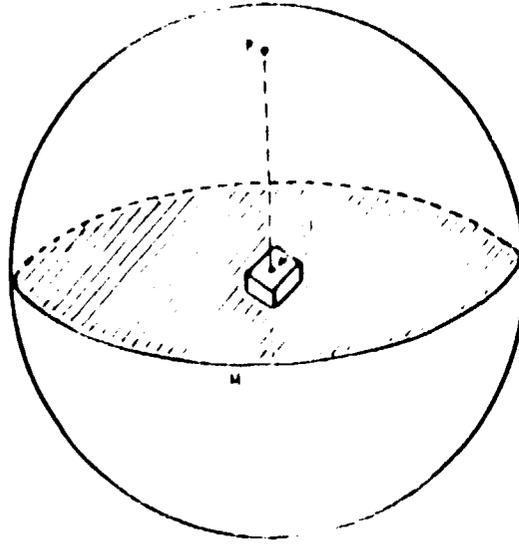


Figura 38 – Representação de um Plano F de um Cristal por Meio do Grande Círculo M ou de seu Pólo P na Projeção Esférica

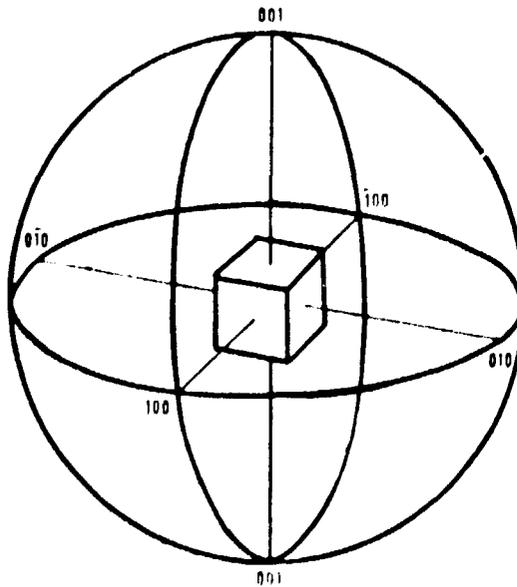


Figura 39 – Projeção Esférica da Forma {100} de um Cristal do Sistema Cúbico

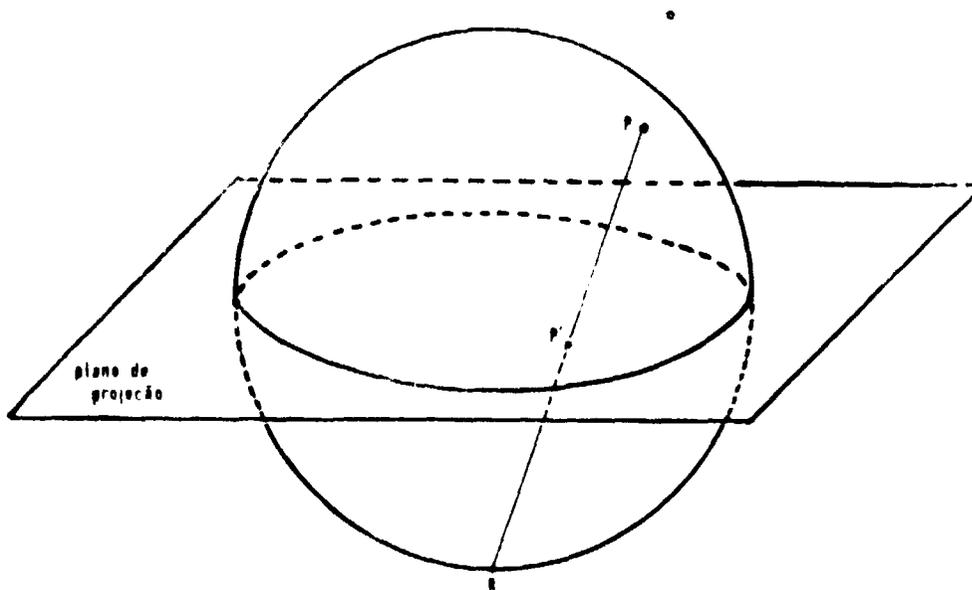


Figura 40 – Construção de uma Projeção Estereográfica a Partir de uma Projeção Esférica

A metade superior da esfera (e do cristal) é projetada como uma série de pólos que estão dentro do grande círculo sobre o plano do papel. A metade inferior da esfera da Figura 40, se for projetada por meio do ponto R, será projetada fora do grande círculo resultando em uma extensão indevida da projeção. Assim é necessário restringir a projeção dentro da área do grande círculo. A metade inferior da esfera e do cristal é representada projetando os pólos na metade inferior e são ligados aos pólos da metade superior, os quais são diametralmente opostos. A intersecção dessas linhas com o círculo grande são em geral representadas por círculos vazios para indicar que representam os pólos da metade inferior do cristal.

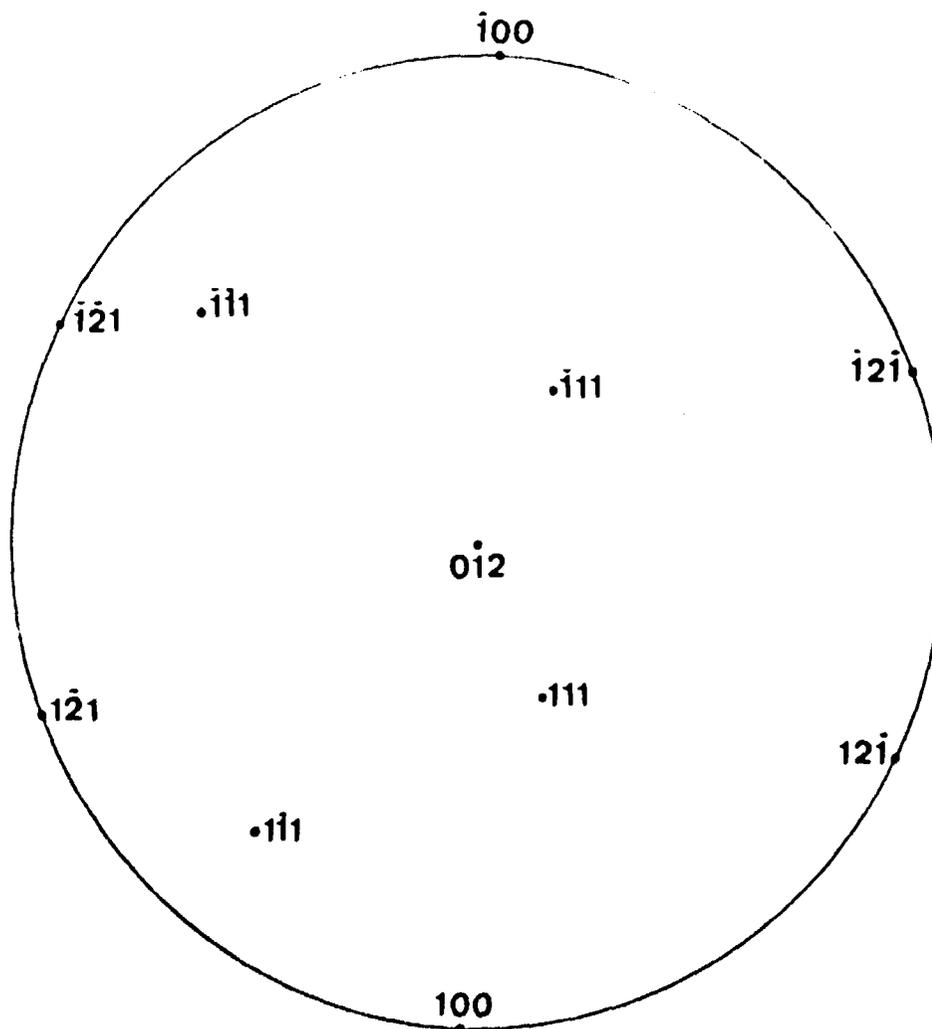
Propriedades das projeções estereográficas:

- 1) A projeção preserva as propriedades de simetria dos eixos perpendiculares ao plano de projeção.
- 2) As relações angulares entre os pólos são preservadas na projeção. Já que o ângulo entre dois planos é igual ao ângulo entre suas normais; a localização dos pólos pode ser usada para determinar o ângulo entre os planos.
- 3) Os ângulos são facilmente medidos por meio da rede de Wulff. O ângulo entre os dois pólos é a diferença na latitude na rede de Wulff, quando os dois pólos estão sobre a mesma longitude (grande círculo).
- 4) A relação angular não muda pela rotação dos pólos sobre o eixo de projeção.
- 5) Os círculos ou arcos circulares na projeção esférica, são projetados como círculos ou arcos de círculos verdadeiros na projeção estereográfica. Grandes círculos da esfera aparecem como arcos de círculos passando através de dois pontos diametralmente opostos.

6) A latitude na projeção não aparece como grande círculo exceto para o círculo E0, entretanto todas as longitudes são grandes círculos.

7) A projeção estereográfica pode ser usada para representar características internas e externas do cristal. Para as internas, por exemplo, problemas de difração, nota-se que um só grande círculo (e seu pólo) é usado para designar planos de índices hkl ; $2h, 2k, 2l; \dots$; nh, nk, nl . Todos esses planos são paralelos e portanto possuem a mesma normal.

Uma projeção estereográfica padrão é apresentada na Figura 41. Nessa figura tem-se a projeção estereográfica de um monocristal do sistema cúbico, onde apenas uns poucos pólos aparecem. Esta projeção estereográfica padrão é indicada pelo pólo (012) cuja projeção é normal ao plano da figura.



(012)

Figura 41 – Projeção Estereográfica – Sistema Cúbico

ABSTRACT

Textures of hot-rolled aluminum-uranium alloys and aluminum were determined by neutron diffraction. Sheets of alloys containing 8.0, 21.5 and 23.7 wt pct U, as well as pure aluminum, were obtained in a stepped rolling process, 15% reduction each step, 75% total reduction. During the rolling the temperature was 600°C. Alloys with low uranium contents are two phase systems in which an intermetallic compound UAl_4 , orthorhombic, is dispersed in a pure aluminum matrix. The addition of a few percent of Si in such alloys leads to the formation of UAl_3 , simple cubic, instead of UAl_4 . The Al - 23.7 wt pct U alloy was prepared with 2,2 wt pct of Si.

The (200), (040) and (121) pole figures of the phase UAl_4 of the Al-21.5 wt pct U alloy show a high degree of orientation defined as (010) [100]. The (111) reflection of the phase UAl_3 of the Al-23.7 wt pct U alloy showed no preferred orientations. The (111) pole figures of the matrix of the alloys 21.5 and 23.7 wt pct U can be described satisfactorily by the same weakly developed texture, namely $\{113\} \langle 332 \rangle$. The (111) pole figure for the matrix of the Al-8.0 wt pct U alloy has the texture $\{113\} \langle 543 \rangle$, which is an intermediate case between the $\{110\} \langle 112 \rangle$ texture of aluminum and the texture of the higher uranium-bearing alloys. For pure aluminum and the 8.0 pct alloy the degree of the textures is still weak however higher than in the preceding cases. The (200) and (121) pole figures for the UAl_4 of the 8.0 pct alloy show the same texture as the 21,5 pct alloy though with considerable more spread.

The results indicate that the texture of the matrix is more dependent on the uranium concentration than on the texture of the intermetallic phases.

This work also presents an improvement in the technique applied to texture measurements by using a sample fully bathed in the neutron beam. The method takes advantage of the low neutron absorption of the studied materials as well as of the negligible variation in the multiple scattering which occurs in a conveniently shaped sample having a weakly developed texture.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS*

1. AMBROZIO F^o, F. *Microestruturas de solidificação de ligas de alumínio-urânio*. São Paulo, 1973. (Dissertação de mestrado, Escola Politécnica, Universidade de São Paulo).
2. ARNDT U. W. & WILLIS, B. T. M. *Single crystal diffractometry*. Cambridge, Cambridge University, 1966. (Cambridge monographs on physics).
3. AZAROFF, L. V. *Elements of x-ray crystallography*, sem local, McGraw-Hill, 1966.
4. BACON G. E. *Neutron diffraction*. 2.ed. Oxford, Clarendon, 1962.
5. BAFFIGO, V. & DOMENICI, M. The determination of texture on nuclear materials by means of x-ray and neutron diffraction. *Atompraxis*, 13(3):121-5, 1967.
6. BARRET, C. S. & MASSALSKI, T. B. *Structure of metals: crystallographic methods, principles, and data*. 3.ed. New York, N. Y., McGraw-Hill, 1966. (McGraw-Hill series in materials science and engineering).
7. BORIE, JR., B. S. *The crystal structure of UAl_4* . Oak Ridge, Tenn., Oak Ridge National Lab., Sept. 1950. (ORNL-810).
8. BOUCHER, R. Etude des alliages aluminium-uranium application a la transformation a l'état solid UAl_3 UAl_4 . *J. nucl. Mater.*, 1:13-27, 1959.

(* As referências bibliográficas relativas a documentos localizados pelo IEA foram revistas e enquadradas no NB-66 da ABNT.

9. BRAGG, R. H. & PACKER, C. M. Quantitative determination of preferred orientation. *J. appl. Phys.*, 35(4):1322-8, 1964.
10. CINTRA, S. H. L.; GENTILE, E. F.; HAYDT, H. M.; CAPOCCHI, J. D. T. *Desenvolvimento de placas combustíveis contendo núcleo de ligas Al-U (20%) e Al-U(20%) – Si(0,8%)*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, 1968. (IEA-Pub-173).
11. CONTERNE, J. C. *Analyse quantitative des textures développées dans une plaque de zirconium filee a chaud*. sem local, editor, 1967. (CEA-RB-127).
12. CULLITY, B. D. *Elements of x-ray diffraction*. Reading, Mass., Addison-Wesley, 1967. (Addison-Wesley series in metallurgy and materials).
13. EDER, O. J. & KLEMENCIC, R. Textures of cold-rolled pure aluminum measured by neutron and x-ray diffraction. *J. appl. Crystallogr.*, 8:628-35, 1975.
14. GENTILE, E. F. *Metalografia de ligas Al-U*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, 1968. (IEA-Pub-164).
15. HAYDT, H. M. & CINTRA, S. H. *Nota preliminar sobre a fabricação de elementos combustíveis planos contendo núcleo de ligas Al-U*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, 1968. (IEA-Pub-156).
16. HORN, K. R. van. *Aluminium, v.1: Properties, physical metallurgy and phase diagrams*. Metals Park, Ohio, American Society of Metals, 1967.
17. JETTER, L. K. & BORIE, JR., B. S. A method for the quantitative determination of preferred orientation. *J. appl. Phys.*, 24(5):532-5, May 1952.
18. JOHARI, O. & THOMAS, G. *The stereographic projection and its applications*. New York, N. Y., Interscience, 1969. (Techniques of metals research, v.2A).
19. KAJAMAA, J. Determination of cold rolling and recrystallization textures in copper sheet by neutron diffraction. *Trans. metall. Soc. A.I.M.E.*, 242:973-7, Jun. 1968.
20. MACGILLAYRY, C. H.; RIECK, G. D.; LONSDALE, K., editores. *International tables for x-ray crystallography, v.3: Physical and chemical tables*. Birmingham, International Union of Crystallography, 1962.
21. NEWKIRK, J. B. & BRUCE, L. Rapid x-ray determination of a complete pole figure. *J. appl. Phys.*, 29(2):151-7, Feb. 1958.
22. NORTON, J. T. A technique for quantitative determination of texture of sheet metals. *J. appl. Phys.*, 19:1176-8, Dec. 1948.
23. OLÉS, A.; SZPUNAR, J.; SOSNOWSKA, I. Neutron diffraction method for sheet texture determination. *Nukleonika*, 13(2):171-4, 1968.
24. PARENTE, C. B. R. *Difração múltipla de nêutrons em um cristal de alumínio*. São Paulo, 1972. (Tese de doutoramento. Instituto de Física. Universidade de São Paulo).
25. PEISER, H. S.; ROOKSBY, H. P.; WILSON, A. J. C., editores. *X-ray diffraction by polycrystalline materials*. London, Institute of Physics, 1960. (Physics in industry series).

26. QUADROS, N. F. *Propriedades mecânicas de ligas de alumínio-urânio e alumínio comercialmente puro em várias temperaturas*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, dez. 1976. (IEA-Pub-451).
27. ROUGH, F. A. & BAUER, A. A. *Constitutional diagrams of uranium and thorium alloys*. Reading, Mass., Addison-Wesley, 1958.
28. RUNDLE, R. E. & WILSON, A. S. The structures of some metal compounds of uranium. *Acta crystallogr.* 2:148-50, 1949.
29. SCHWARTZ, M. Method for obtaining complete quantitative pole figures for flat sheets using one sample and one sample holder. *J. appl. Phys.*, 26(12):1507-13, Dec. 1955.
30. SZPUNAR, J. Texture and neutron diffraction. *Atom. Energy Rev.*, 14(2):199-261, Jun. 1976.
31. SZPUNAR, J.; OLES, A.; BURAS, B.; SOSNOWSKA, I.; PIETRAS, E. Texture studies of coarse. Grain metal sheets by means of neutron diffraction. *Nukleonika*, 13:11-2, 1968.
32. THURBER, W. C. & MCHARGUE, C. J. Deformation textures in aluminium-uranium alloys. *Trans. metall. Soc. A.I.M.E.*, 218:141-4, 1960.
33. UENO, S. I.; FOTEDAR, H. L.; OLÉS, A.; PARENTE, C. B. R. *Preferred orientations in niobium determined by neutron diffraction*. São Paulo, Instituto de Energia Atômica, jan. 1977. (IEA-Pub-461).
34. WOLLAN, E. O. & SHULL, C. G. The diffraction of neutron by crystalline powders. *Phys. Rev.*, 75(8):830-40, Apr. 1948.
35. WOOD, E. A. *Crystal orientation manual*. New York, N. Y., Columbia University, 1963.

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal, 11049 -- Pinheiros
CEP 05508
01000 -- São Paulo -- SP

Telefone: 211-6011
Endereço Telegráfico -- IEATOMICA
Telex -- 011-23592 IENA BR