PREMIER MINISTRE
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

C E A - R 2735

ÉTUDE CRISTALLOGRAPHIQUE ET EFFETS DE L'AUTO-IRRADIATION SUR LE PLUTONIUM A BASSE TEMPÉRATURE

par

Pierre SOLENTE

Rapport C E A - R 2735

CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES
DE FONTENAY-AUX-ROSES

CEA—R 2735 — SOLENTE Pierre

ETUDE CRISTALLOGRAPHIQUE ET EFFETS DE L'AUTOIRRADIATION SUR LE PLUTONIUM A BASSE TEMPERATURE

Sommaire.— On présente une étude cristallographique à basse température du plutonium α et stabilisé δ par des additions d'aluminium en vue de vérifier l'existence d'une transformation antiferromagnétique à basse température. L'effet des particules α à 4,2° K sur la longueur d'un polycristal de plutonium α a également été étudié. Il a été déterminé que le plutonium α ne mange pas de phase allotropique jusqu'à 18° K, les coefficients de dilatation des trois axes de la maille semblent rester positifs. Une éventuelle contribution magnétique sur les coefficients de dilatation devrait donc être faible. Une légère anomalie de dilatation de Pu δ a été observée à 100° K ainsi qu'une anomalie d'intensité des raies de diffraction. Aucune raie de surstructure n'a été observée. Le plutonium α s'allonge lorsqu'il est plongé dans l'hélium liquide d'un taux de l'ordre de 5×10^{-6}/heure. Cet effet a été attribuée à la création de paires de Frenkel.

1965 57 p.

Commissariat à l'Energie Atomique — France

CEA—R 2735 — SOLENTE Pierre

CRISTALLOGRAPHIC STUDY AND SELF IRRADIATION DAMAGE ON PLUTONIUM AT LOW TEMPERATURE

Summary.— We have studied the variation of the parameters of α plutonium and aluminium stabilised δ alloys at low temperature, in order to verify the existence of an antiferromagnetic transition at low temperature. The effects of α particles on the length of a polycrystal of α plutonium at 4,2° K are also presented at 18° K α plutonium shows no crystallographic change from its structure at room temperature. The thermal expansion coefficients along the 3 axis seem to be positive at this temperature. Therefore a magnetic contribution on thermal expansion coefficients must be small. A dilatation anomaly of δ Pu has been observed at 100° K, together with an anomaly of the diffraction lines intensity. No surstructure line has been observed at 20° K. The length of α plutonium increases with time at a rate of about 5×10^{-6} per hour when held in liquid helium. This effect is attributed to the creation of Frenkel pairs.

1965 57p.

Commissariat à l'Energie Atomique — France

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du nº 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.

The C.E.A. reports starting with nº 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.

- Rapport C.E.A. n° 2735 -

T H E S E

présentée

A LA FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE PARIS

pour obtenir

Le titre de Docteur 3° Cycle

Spécialité : Métallurgie Spéciale

par

Pierre SOLENTE

Thèse : ETUDE CRISTOLLOGRAPHIQUE ET EFFETS DE L'AUTOIRRADIATION SUR LE PLUTONIUM A BASSE TEMPERATURE

Soutenue le 10 novembre 1964, devant la Commission d'examen

MM. LACOMBE ..... *Président*
FRIEDEL ..... *Examinateur*
CURIEN ..... *Examinateur*

Mai 1965

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au Commissariat à l'énergie Atomique, Section Métallurgie du Plutonium.

Je remercie Monsieur le Professeur Lacombe qui a bien voulu présider cette thèse, Monsieur le Professeur Friedel et Monsieur le Professeur Curien des avis et conseils qu'ils m'ont prodigués.

Je remercie également Monsieur Quéré, chef de la section de Métallurgie du Plutonium, les ingénieurs de la section, en particulier Messieurs Costa et Lallement de l'aide qu'ils m'ont apportée.

Enfin, je remercie Monsieur Testard, du service de Physique du Solide pour ses conseils en ce qui concerne la réalisation des appareillages basse température.

ETUDE CRISTALLOGRAPHIQUE ET EFFETS DE L'AUTOIRRADIATION SUR LE PLUTONIUM A BASSE TEMPERATURE

INTRODUCTION

Les propriétés physiques du plutonium γ entre 20° K et 300° K indiquent une anomalie dans son comportement vers 60° K: chute de résistivité, de pouvoir thermo-électrique, anomalie de module élastique. Les mêmes anomalies se retrouvent dans les plutonium stabilisés dans la phase δ par des additions d'aluminium. Plusieurs théories ont été avancées pour expliquer son comportement à basse température. Un spectre de phonons d'un type particulier, une structure de bande entrainant une transformation électronique et enfin une transformation antiferromagnétique créant un ordre de spins à basse température.

Une analyse cristallographique des deux structures devrait pouvoir permettre de choisir entre ces diverses théories ou du moins d'en éliminer certaines afin d'expliquer le comportement du métal et ses alliages entre 20° K et 300° K.

Enfin, l'analyse de l'influence des défauts créés par autoirradiation à 4,2° K devrait pouvoir apporter une contribution à l'étude des propriétés physiques du plutonium à basse température.

I.- TECHNIQUES EXPERIMENTALES

I.1.- DIFFRACTOMETRE

Un diffractomètre du type servant à l'examen des matériaux irradiés a été utilisé. On peut en voir une vue générale sur la figure I.1 et une vue schématique sur la figure I.2. Déjà décrit par ailleurs, il n'en est que rappelé le principe du fonctionnement. Il est basé sur la méthode de Bragg Brentano.

Un faisceau X, d'une largeur de 8 mm, subit une première diffraction sur l'échantillon E puis une focalisation en F1. Le monocromateur M placé après l'échantillon diffracte et refocalise le faisceau en F2. Un compteur Geiger placé après la deuxième fente permet l'enregistrement automatique des diagrammes.

En vue d'obtenir un rayonnement rigoureusement monochromatique, il a été réalisé un monochromateur utilisant les plans (111) d'un monocristal d'aluminium courbé.

Il a les caractéristiques suivantes :

QR = 350 mm

courbure = 3°

torsion = 30'

Les distances focales données par la relation MF, SM = eR sin ($\theta \pm \alpha$), θ étant l'angle de diffraction, α l'angle de courbure, ont les valeurs suivantes :

MF = 120 mm

SM = 86 mm

Un échantillon de cuivre dans ces conditions a des raies de diffraction de largeur :

$\Delta\theta$ (111) = 9'

$\Delta\theta$ (331) = 20'

Une anticathode de tungstène émet deux rayonnements L^{α} de longueurs d'onde :

$$\lambda L\alpha_1 = 1.4874 \text{ Å}$$

$$\lambda L\alpha_2 = 1.4763 \text{ Å} \quad \text{avec un rapport d'intensité :}$$

$$\frac{I\ L\ \alpha_2}{I\ L\ \alpha_1} = 0,12$$

Ceci permet de séparer parfaitement les deux rayonnements au moyen de la fente F_2 placée après le monochromateur et de ne conserver que le rayonnement L^{α}_1 qui a été utilisé :

- Tension d'utilisation de tube : 40 kV

- Courant d'alimentation : 20 mA.

Dans l'idée de travailler à basse température, la rotation de l'échantillon autour d'un axe perpendiculaire à sa face a été supprimée. Seule a été conservée l'oscillation.

L'erreur commise dans l'estimation de l'angle de diffraction provient essentiellement de l'excentricité du porte-échantillon : $\Delta\theta \sim e \cos\theta$.

Une excentricité de 1/10 mm de la face de l'échantillon entraine une variation de 2 ' aux petits angles, dans la lecture de 2θ, donc une erreur relative de la distance interréticulaire :

$$\frac{\Delta d}{d} \simeq 6 \times 10^{-4} \qquad \text{pour } 2\theta = 50°.$$

Ceci conduit donc à travailler beaucoup plus sur des valeurs relatives que sur des valeurs absolues. Il sera en effet plus précis de suivre une raie ou un groupe de raies en fonction de la tespérature que d'en déterminer la distance interréticulaire exacte en raison de la difficulté d'une mise en place absolument reproductible du porte-échantillon.

I.2.- BASSES TEMPERATURES

Il existe au moins deux possibilités de refroidir un échantillon ; soit par conduction à travers un solide lui-même plongé dans le liquide refroidisseur, soit par contact avec un gaz froid. Deux appareils utilisant respectivement ces principes ont été utilisés. Le premier permet de suivre une raie pendant des temps relativement courts, le second permet des prises de diagrammes plus longues avec une consommation moindre d'hélium liquide.

a) - SIPHON

On voit une vue schématique de l'appareil sur la figure (I.3) et une vue générale sur la figure (I.4) et la figure (I.5). Il est constitué par une ligne de transfert d'hélium liquide. On place, à une des extrémités, des fenêtres en bérylium reliées au siphon par un joint mécanique, joint torique dans le cas de la fenêtre extérieure, joint en téflon pour la fenêtre intérieure.

La chambre ainsi constituée s'adapte sur le porte-échantillon. Deux tubes permettent l'introduction de thermocouples et l'évacuation du gaz d'hélium. Le siphon est plongé dans la bouteille d'hélium liquide. On fait évaporer le liquide au moyen d'une résistance R1. On peut, à volonté, réchauffer le gaz obtenu au moyen d'une résistance R2.

Soit :

W1 la puissance dégagée dans R1

Q1 la quantité d'hélium évaporé par unité de temps

W2 la puissance dégagée dans R2 et la puissance perdue dans le siphon

C_L et $C_{\bar{G}}$ la chaleur de vaporisation et la chaleur spécifique moyenne de l'hélium,

On aura :

$$Q1 = W1 / C_L$$

$$Q1 = W2 / C_G \ \Delta T$$

d'où $$\Delta T = \frac{W2}{W1} \ \frac{C_L}{C_{\bar{G}}}$$

La température sur l'échantillon sera donc pratiquement indépendante de la quantité d'hélium évaporé. Ceci doit donc permettre en réglant et stabilisant convenablement W2 et W1 d'obtenir n'importe quelle température constante. On calcule les pertes de chaleur dans le porte-échantillon et le siphon. On trouve en appelant Q la puissance perdue par unité ue temps

$$Q < 1 \text{ watt}$$

Dans ces conditions, ce siphon doit consommer 1 litre par heure environ en travaillant à 12° K. Vue la faible densité de l'hélium liquide, il est nécessaire pour évacuer le gaz de créer en aval une dépression de quelques grammes au moyen d'une pompe.

Cet appareil permet l'oscillation de l'échantillon autour d'un axe vertical.

b) - CRYOSTAT

Dans le cas du deuxième appareil, le refroidissement de l'échantillon est assuré par conduction. La figure (I.1) représente le cryostat sur le diffractomètre, la figure (I.6) une vue schématique du montage utilisé.

La queue à hélium est en contact avec l'hélium liquide par l'intermédiaire d'une impédance thermique. Un canal entourant la partie basse de la queue permet une circulation contrôlée de l'hélium liquide par une dépression variable. Une résistance chauffante couplée à la circulation d'hélium liquide dans le canal perset d'obtenir des températures stables entre 15° K et 300° K. Une fenêtre en béryllium, collée à la queue extérieure assure le passage du faisceau X avec une absorption minime. Le vase Dewar d'une capacité de 1 litre peut rester environ 7 heures sans remplissage.

I.3.- PORTE-ECHANTILLON, CONTAMINATION

a) - SIPHON

La figure (I.5) montre le porte-échantillon en place. En raison des risques de contamination, les échantillons de plutonium sont placés dans des capsules entre deux feuilles de mylar

de 75 µ d'épaisseur, le tout calé par un anneau. On peut facilement récupérer les pastilles de ce montage. En décontaminant l'échantillon avant l'introduction, il a été possible d'éviter toute contamination et de n'observer qu'une oxydation réduite après quelques heures dans ce dispositif.

b) - CRYOSTAT

La figure (I.6) montre schématiquement le porte-échantillon utilisé.

L'échantillon entouré d'une fine couche de vernis et de graisse est appliqué contre une feuille de mylar de 50 µ d'épaisseur. Le bouchon du porte-échantillon s'applique contre l'autre face et assure ainsi un bon contact thermique. Toutes les surfaces se trouvant à basse température ont été dorées.

Une mesure de contrôle a été effectuée en remplaçant la feuille de mylar par une feuille d'aluminium d'une épaisseur de 10 µ et collant une autre fenêtre d'aluminium de même épaisseur sur l'écran d'azote.

En appelant :

Q°1 : puissance émise par radiation par la fenêtre en béryllium sur l'échantillon à 20° K sans fenêtre en aluminium.

Q°2 : puissance émise par la fenêtre à 77° K sur l'échantillon

Q°3 : puissance évacuée par la fenêtre en aluminium placée sur l'échantillon.

On a :

$$Q°1 < 20 \text{ mW}$$

$$Q°2 < 0,2 \text{ mW}$$

$$Q°3 > 2 \text{ mW / °K}$$

Ce dernier dispositif assure donc une température de l'échantillon similaire à celle du porte-échantillon.

On a pu vérifier l'identité des positions de raies de diffraction à basse température avec et sans ce montage supplémentaire, ce qui montre que l'échantillon dans le premier cas est bien à la température du porte-échantillon.

I.4.- MESURE DE LA TEMPERATURE

Dans les deux cas, un thermocouple Au + 2.11 At% Co, Ag + 0,37% At Au a été utilisé. Ce thermocouple donne une sensibilité de 4 µ V à 4° K et 20 µ V /° K à 20° K, ce qui est encore possible à mesurer. L'alliage constitutif des thermocouples se transformant aux alentours de 100° C, il a été nécessaire de souder les extrémités au moyen d'un alliage de Wood (T. fusion = 72° C).

La température dans les deux cas a été prise sur le porte-échantillon.

La soudure de référence est placée dans un vase Dewar à la température ordinaire : 21° C.

L'étalonnage a été fait en mesurant la tension aux bornes du thermocouple à la température de l'hélium liquide et de l'azote liquide.

1.5.- PRISE DES DIAGRAMMES

Des groupes de raies ont été suivis à différentes températures en vue de limiter l'erreur due à l'excentricité de l'échantillon. On admet que l'échantillon ne se déplace pas au cours d'une même mesure. Des courbes de variation des distances inter réticulaires connues, il devient possible de calculer des paramètres pour certaines températures.

I.6.- PREPARATION DES ECHANTILLONS

Le plutonium α et les alliages de pureté courante ont été fondus à l'arc, polis mécaniquement et électrolytiquement.

Les alliages ont subi un traitement d'homogénéisation de 100 h. à 475°. Un examen micrographique a révélé une structure monophasée et, pensons-nous, homogène.

I.7.- APPLICATIONS

a) - CUIVRE

La figure I.7 montre la variation de paramètre du cuivre électrolytique de haute pureté par examen de la raie (222) entre la température ordinaire et celle de l'azote liquide.

Les mesures de Nix et Mac Nair [2] montrent une contraction de $\frac{\Delta l}{l} = 24.5 \times 10^{-4}$ entre 100° K et 293° K. La mesure évoquée ci-dessus montre une contraction de $\frac{\Delta l}{e} = 23.7 \times 10^{-4}$ ce qui est en assez bon accord.

b) - OR

Une raie parasite du porte-échantillon doré permet de mesurer la variation du paramètre de l'or, variation représentée sur la figure I.7, on trouve $\bar{\alpha}\,{}^{(200°K}_{(100°K} = 14.4 \times 10^{-6}/°K$. Nix et Mac Nair [2] donnent $\alpha\,{}^{(200°K}_{(100°K} = 12.3 \times 10^{-6}/°K$.

c) - URANIUM α

La variation des angles de diffraction des raies (225) (200) (114) (116) est représentée sur la figure I.8 - I.9.

Les mesures de Barret indiquent [3] un coefficient de dilatation négatif des paramètres a et b, positif du paramètre c entre 20° K et 40° K.

Les variations des distances interréticulaires des plans (200 (114) (116) (225) , calculées à partir de ces données est comparée avec les variations mesurées.

	Δd mesuré 45°K / 20°K	Δd calculé 40°K / 20°K
(200)	-40×10^{-4}	-48×10^{-4}
(114)	$+3.6 \times 10^{-4}$	$+3.5 \times 10^{-4}$
(116)	$+6.6 \times 10^{-4}$	$+4 \times 10^{-4}$
(225)	-2.7×10^{-4}	-2×10^{-4}

I.8.- MESURES DE RESISTIVITE

Les résistivités ont été mesurées par la méthode potentiométrique dans un cryostat décrit par ailleurs [4]. Pour faire varier la température des échantillons, ceux-ci ont été placés à des hauteurs variables au-dessus du niveau de l'hélium liquide. Il devient alors possible d'obtenir des températures relativement stables entre 4,2°K et 77°K.

Un électro-aimant procurant un champ magnétique de 10.000 gauss a permis de mesurer la magnétorésistance du Puα à la température de l'azote liquide et de l'hélium liquide.

Il n'a été mesuré que la magnétorésistance transversale, c'est-à-dire $J \perp H$.

I.9.- AUTOIRRADIATION

Des mesures par rayons X des paramètres et d'intensité de raies n'ont eu qu'une durée limitée à 6 h. en raison de la capacité en hélium liquide du cryostat.

Par contre, il a été possible d'évaluer la variation de longueur d'un barreau de plutonium α suite à une autoirradiation de 100 h. dans l'hélium liquide, au moyen d'une jauge de contrainte.

Une jauge constituée par un fil résistant collé sur le barreau à étudier transmet les allongements du barreau par la variation de sa résistance. La résistance de la jauge est comparée à une résistance étalon au moyen d'un pont de Wheastone.

On a :

$$\frac{\Delta R}{R} = K \frac{\Delta l}{l}$$

A la température de l'hélium liquide K n'est pas connu avec précision, sa valeur est voisine de 1.9.

D'autre part la résistivité de la jauge varie fortement en fonction de la température dans ce domaine ce qui implique d'effectuer les mesures à température constante (4.2° K).

Une variation de la pression atmosphérique de 7 gr. entraine une variation de 1/100° K de la température d'ébullition de l'hélium liquide. La résistance de la jauge varie de $\frac{\Delta R}{R} = 2 \times 10^{-6}$. Comme autre source d'erreur, il peut y avoir la dérive du pont avec le temps ($\frac{\Delta R}{R} < 30 \times 10^{-6}$), et la variation de la résistance étalon avec la température extérieure. On peut donc admettre une erreur de 4×10^{-5} sur l'estimation de la résistivité de la jauge, ce qui entraine une erreur de 2×10^{-6} dans l'appréciation des variations de longueur.

Pour éviter toute contamination, le barreau de plutonium a été placé dans un tube de cuivre fermé à une de ses extrémités par un filtre en laine de verre et coton. Le tout a été plongé dans un vase Dewar à hélium liquide.

II.- RESULTATS

II.1.- Pu γ

a) - R X

La figure II.1 représente une partie du diagramme de diffraction du plutonium γ à la température ordinaire.

La maille, telle qu'elle a été déterminée par Zachariasen [5] , est monoclinique et de paramètre :

$$a = 6.183 \ \mathring{A}$$

$$b = 4.822 \ \mathring{A}$$

$$c = 10.963 \ \mathring{A}$$

$$\beta = 101°79$$

groupe spatial : P2m.

Les mesures de variation des paramètres sur le diagramme de diffraction sont rendues très délicates du fait de l'impossibilité d'indexer avec certitude des raies en retour. Leur intensité reste trop faible et il se forme des paquets de raies.

Les raies dont l'angle θ de diffraction se situe entre 13° et 45° ont seules pu être analysées.

Pour les faibles angles de diffraction (θ = 35 °), une erreur de 2' sur la lecture de l'angle 2 θ entraine une erreur de 0.5×10^{-3} sur $\frac{\Delta d}{d}$. La largeur de raie est alors de 10' environ.

La variation d'une distance interréticulaire sur un écart de température de 20° en supposant un coefficient de dilatation moyen $\alpha = 30 \times 10^{-6}$ serait :

$$\frac{\Delta d}{d} = 30 \times 20 \times 10^{-6} = 0,6 \times 10^{-3}$$

On voit donc que le coefficient de dilatation des paramètres mesuré par cette méthode ne peut être qu'une indication de sa valeur. Une mesure précise nécessiterait un monocristal et l'analyse de raies en retour, chose qui n'a pu encore être réalisé.

La figure II.2 montre le diagramme de diffraction du plutonium γ à 20° K.

Le tableau II.3 montre la variation des vecteurs hkl en fonction de la temperature.

Les raies (024) (22$\bar{3}$) (32$\bar{2}$) (215) (125) (41$\bar{1}$) (41$\bar{2}$) (31$\bar{6}$) (231) (040) (50$\bar{5}$) (208) (52$\bar{5}$) ont été suivies entre 20° K et 300° K.

A partir des courbes représentatives de la variation de longueur des vecteurs hkl, le calcul a donné les valeurs des paramètres à 20° K, 40° K, 69° K, 84° K, 123° K, 160° K et 220° K par la méthode des moindres carrés, en partant des valeurs de Zachariasen [5] données ci-dessus.

La figure II.4 montre l'évolution des paramètres en fonction de la température.

Le tableau II.5 montre la valeur de ces paramètres.

N.T. Chebotarev et A.V. Beznosikova [6] ont trouvé les valeurs de ces paramètres à la température de l'azote liquide, en partant également des valeurs données par Zachariasen.

a = 6.118

b = 4.768

c = 10.932

β = non donné

VARIATION DES DISTANCES INTERRETICULAIRES DE PU γ

EN FONCTION DE LA TEMPERATURE

TABLEAU · II.3

	300°K	220°K	160°K	123°K	81°K	69°K	40°K	20°K
(024)	1.7933	1.7892	177852	1.782S	1.7807	1.7795	1.7784	1.7795
(223)	1.7633	1.7582	1.7548	1.7526	1.7499	1.7489	1.7478	1.7484
(322)	1.5529	1.5470	1.5441	1.5425	1.5400	1.5396	1.5384	1.5380
(215)	1.5211	1.5178	1.5155	1.5139	1.5123	1.51118	1.5107	1.5103
(125)	1.4943	1.4891	1.4869	1.4853	1.4835	1.4835	1.4831	1.4827
(415)	1.4692							
(412)	1.4678	1.4635	1.4606	1.4587	1.4570	1.4566	1.4559	1.4555
(316)	1.4315	1.4277	1.4253	1.4243	1.4229	1.4225	1.4222	1.4222
(231)	1.3901	1.3846	1.3802	1.3780	1.3751	1.3745	1.3730	1.3718
(040)	1.2055	1.2001	1.1968	1.1952	1.1932	1.1925	1.1912	1.1906
(505)	1.16 7	1.1577	1.1552	1.1542	1.1530	1.1526	1.1522	1.1520
(208)	1.1429	1.1395	1.1368	1.1355	1.1341	1.1337	1.1331	1.1333
(525)	1.0458	1.0421	1.0397	1.0383	1.0374	1.0371	1.0365	1.0361

VARIATION DES PARAMETRES DE LA MAILLE DE PLUTONIUM

DE 20°K à 300°K

RESULTATS DU CALCUL DES MOINDRES CARRES

	300°K	220°K	160°K	123°K	81°K	69°K	40°K	20°K
a	6.183	6.157	6.142	6.134	6.125	6.122	6.118	6.116
b	4.822	4.801	4.788	4.782	4.774	4.772	4.768	4.767
c	10.963	10.959	10.940	10.931	10.919	10.916	10.910	10.908
-	101°74	101°80	101°75	101°70	101°64	101°63	101°62	101°61
V $Å^3$	320.01	317.10	315.00	313.91	312.70	312.33	311.70	311.47
$\Delta 1/1 \times 10^4$	0	33	52	63,5	76	80	88	88.6

Tableau II-5

On voit qu'à 80°K l'accord est bon.

La dilatation linéaire d'un polycristal sans texture calculée à partir des paramètres données plus haut, est représentée sur la figure II.6.

Cette courbe de dilatation s'accorde assez bien avec celle de Sandenaw [7] à la différence qu'aucun pic n'a pu être observé après des traitements thermiques. Elle diffère des mesures effectuées par Lallement [4], notamment en ce qui concerne un coefficient de dilatation négatif à basse temperature.

Il convient cependant de remarquer que certaines distances interréticulaires semblent augmenter lorsque la température diminue. Les résultats calculés par la méthode des moindres carrés indiquent pourtant une diminution du paramètre avec la température.

Il n'a été remarqué aucun changement des intensités et paramètres en laissant l'échantillon 1 heure à 40° K puis en refroidissant lentement à 20°K.

b) - MAGNETORESISTANCE :

Aucune variation de la résistivité à une précision de 10^{-3} n'a pu être observée sous un champ magnétique de 10.000 gauss et à des températures comprises entre 4,2°K et 77°K.

c) - RESISTIVITE APRES TRAITEMENTS THERMIQUES

Après avoir trempé un échantillon de plutonium α à la température de l'hélium liquide recuit successivement 10 minutes aux températures de 10°K, 20°K, 30°K, et 40°K, puis trempé à nouveau à la température de l'hélium liquide, il n'a été constaté aucun changement de la résistivité à une précision de 10^{-3}. Un recuit d'une heure à 40°K n'a pas eu plus d'effet. Cette mesure a été faite dans l'idée de voir si les effets de trempe de l'uranium se retrouvaient dans le cas du plutonium.

Etait recherchée également la possibilité d'une transformation allotropique suite à des traitements thermiques.

d) - AUTOIRRADIATION

La courbe II.7 montre l'allongement relatif d'un barreau de plutonium jusqu'à 100 heures d'autoirradiation à 4,2°K. Le résultat d'une autre mesure après 200 heures d'autoirradiation est représenté sur la figure II.8.

Le barreau s'allonge linéairement de 5.25×10^{-6} par heure d'autoirradiation. Il semblerait qu'il y ait une légère incurvation de la courbe à partir de 50 heures d'autoirradiation, mais la précision de la mesure ne permet pas d'affirmer la présence d'une saturation après ce temps.

On peut attribuer la différence entre les deux valeurs à une variation du paramètre K d'une jauge à l'autre.

Les mesures de résistivité [32] après autoirradiation montrent un accroissement linéaire de celle-ci jusqu'à 200 heures. Une saturation semble donc bien improbable.

e) - CONCLUSION EXPERIMENTALE

Il ressort de ces expériences que :

1° - le plutonium α ne change pas de phase cristallographique en dessous de 60°K, ce qui confirme l'expérience effectuée par Lallement [8] et Roof [9].

2° - les positions moyennes atomiques restent sensiblement les mêmes ainsi qu'en témoignent les intensités des raies de diffraction.

3° - le coefficient absolu de dilatation ne semble pas négatif en dessous de 40°K.

4° - le plutonium α s'allonge de 50×10^{-6} / heure d'autoirradiation à 4,2°K.

II.2.- PLUTONIUM STABILISE δ

Les alliages à 5 et 8% d'aluminium restent CFC jusqu'à la température de l'hélium liquide.

La variation du paramètre de ces alliages a été étudiée entre 20°K et 300°K en suivant la raie (531). Elle est representee sur la figure II.9.

On voit sur la figure II.10 la variation de l'intensité des raies de diffraction (531) (511) (420) (400) (331) (311) de l'alliage PuAl 5% at. ainsi que la variation de l'intensité de la raie (531) de l'alliage PuAl 8% at, figure II.11.

On peut voir sur ces courbes :

- une anomalie de dilatation des alliages PuAl 5 et 8%. at.

- une anomalie d'intensité des raies de diffraction de l'alliage PuAl 5%.

Aucune raie de surstructure n'a été observée à basse température dans ces alliages. Une mesure d'autoirradiation de 5 h1/2 de PuAl 5% at à 20°K n'a montré aucun changement décelable sur la position et l'intensité des raies (531) (420) (311) (200). Une plus longue autoirradiation a été rendue impossible par la capacité du cryostat reduite à 1 litre d'hélium liquide.

III.- INTERPRETATION DES RESULTATS

III.1.- RAPPEL DES PROPRIETES PHYSIQUES DU PLUTONIUM α A BASSE TEMPERATURE

Les courbes représentant les variations de la résistivité, chaleur spécifique, susceptibilité magnétique [10], pouvoir thermo-électrique [4], module élastique [11], résistivité sous pression [12] sont représentées sur la figure III.1.

Il existe une anomalie des propriétés physiques du plutonium α vers 60°K; chute de la résistivité et pouvoir thermo-électrique, diminution du module élastique, anomalie de chaleur

spécifique, diminution de la température de transition avec la pression. Il n'y a aucune anomalie de susceptibilité magnétique. Une mesure de diffraction de neutrons n'a pas révélé de surstructure magnétique [9].

La figure III.2 montre la variation de la résistivité des alliages PuAl 2,5 et 8% at. en fonction de la température. Cette mesure [13] suggère que les structures électroniques de Pu^{δ} et Pu^{γ} sont similaires puisque la courbe de la résistivité de $Pu^{\delta} + Pu^{\gamma}$ est parallèle à celle de Pu^{δ}.

On peut donc supposer que les mécanismes entrainant les anomalies du plutonium γ et δ sont similaires.

III.2.- PLUTONIUM γ

La courbe de variation des paramètres du plutonium γ ne semble aux erreurs expérimentales près, n'accuser aucune anomalie. Il convient cependant de noter que les effets d'une transformation du second ordre ne sont pas incompatibles avec cette mesure.

On peut en effet calculer d'un point de vue purement thermodynamique la variation du coefficient de dilatation à la transformation :

$$\Delta\left(\frac{dV}{dT}\right) = 0 \text{ ou } \Delta\left(\frac{\partial V}{\partial T}\right)_P + \Delta\left(\frac{\partial V}{\partial P}\right)_T \frac{dP}{dT} = 0$$

ce qui entraîne :

$$\Delta\gamma = -\frac{1}{3}\,\Delta X\,\frac{dP}{dT}$$

avec X = compressibilité

On sait que :

$$\frac{dP}{dT} = -6{,}5 \times 10^{+7} \text{ Newton/m}^2$$

$$E_{65°K} = 12 \times 10^{10} \text{ Newton /m}^2$$

$$\frac{\Delta E}{E} \text{ à la transition} = 2{,}7\ \%$$

En prenant le coefficient de Poisson $\nu = 0.3$ (en général $0 < \nu < 0.5$) et $0 < \frac{\Delta \nu}{\nu} < 5\%$, $X = \frac{3}{E}(1-2\nu)$, on obtient une variation des coefficients de dilatation

$$-20 \times 10^{-6}/\,°K < \Delta\gamma < 5.4 \times 10^{-6}/°K$$

On peut calculer à partir des mesures de chaleur spécifique à haute température [14], un coefficient de dilatation théorique, en supposant le paramètre de Grüneisen constant. On trouve :

$$\gamma = 23 \times 10^{-6} / °K \text{ à } 60° K$$

La mesure à cette température montre un coefficient de dilatation $\gamma = 25 \times 10^{-6}$ ce qui est en bon accord.

Une transformation du second ordre, d'un point de vue purement thermodynamique entrainerait un coefficient de dilatation linéaire calculé à 60°K

$$3 \times 10^{-6} / °K < \gamma < 17.6 \times 10^{-6} / °K$$

Celui-ci passant à 20°K aux valeurs extrêmes.

$$-14 \times 10^{-6} / °K < \gamma < 0.6 \times 10^{-6}$$

La mesure des paramètres du plutonium γ montre donc uniquement que le coefficient de dilatation total ne semble pas négatif jusqu'à 20°K, mais n'indique pas de manière catégorique l'absence d'une transformation du second ordre.

Cette transformation n'entraine pas de changement atomique, important puisque les intensités des raies de diffraction restent sensiblement les mêmes à 20°K et à 300°K.

III.3. - PLUTONIUM δ

Les mesures sur les alliages plutonium-aluminium beaucoup plus précises que sur le plutonium α , puisque faites sur des raies en retour, ont montré des anomalies de dilatation et d'intensité plus nettes. La présence d'une transformation du second ordre semble conformée.

1) - DILATATION

La courbe de dilatation des alliages PuAl 5 et 8% at. montre une anomalie de dilatation précisément aux températures d'anomalies de résistivité, c'est-à-dire vers 100°K. Le même mécanisme est supposé régir les anomalies de dilatation et de résistivité.

Aux alentours de la température ambiante, les coefficients de dilatation ont la valeur :

$$\text{PuAl 5\%} \quad \gamma = 10.1 \times 10^{-6} \text{°K}$$

$$\text{PuAl 8\%} \quad \gamma = 11.1 \times 10^{-6} \text{°K}$$

Les valeurs données par Elliott [15] à température ambiante sont :

$$\text{PuAl 5\%} \quad \gamma = 8 \times 10^{-6}/\text{°K}$$

$$\text{PuAl 8\%} \quad \gamma = 9 \times 10^{-6}/\text{°K}$$

Ces valeurs ont été trouvées par des mesures à haute température. Le coefficient de dilatation commence par être négatif puis devient positif lorsque la température décroit. Il est donc normal de trouver des valeurs légèrement supérieures à partir de mesures effectuées à basse température.

2) - ANOMALIE D'INTENSITE

En supposant la température de Debye Θ_D fixe, par examen de la variation de l'intensité en fonction de la température, le calcul conne une valeur moyenne de cette constante. En effet, la valeur de l'intensité est donnée par la relation :

$$I \sim \exp(-2M) \qquad \text{avec}$$

$$M = \frac{\sin^2 \gamma}{\lambda^2} \quad \frac{6h^2}{m h \Theta_D} \left[\frac{1}{4} + \frac{T}{\Theta_D} \; \Phi\left(\frac{\Theta_D}{T}\right) \right.$$

$$\Phi\left(\frac{\Theta_D}{T}\right) = \frac{T}{\Theta} \int_0^{\Theta/T} \frac{y \, dy}{\exp. \; y - 1}$$

θ_D : température de Debye

K : constante de Boltzmann

h : constante de Plank

θ et λ : angle de diffraction et longueur d'onde

PuAl 5% = 229

PuAl 8% = 222.2

La résolution graphique de ces équations permet de calculer des températures de Debye moyennes d'environ 120°K et 125°K respectivement.

D'autre part, connaissant les vitesses de propagation du son dans les alliages PuAl 5% et 8% at. [16] on peut calculer les températures de Debye à partir de la relation :

$$\theta_D = \left[\frac{h}{K} \frac{4\pi\Omega_o}{9} \left(\frac{1}{C_l^3} + \frac{2}{C_t^3} \right) \right]^{-1/3}$$

C_L : vitesse longitudinale

C_t : vitesse transversale

Ces vitesses ont les valeurs suivantes :

PuAl 5% at.	C_l = 1.924 m/sec.	C_t = 1.083 m/sec.
PuAl 8% at.	C_l = 1.936 m/sec.	C_t = 1.106 m/sec.

ce qui donne des températures de Debye égales respectivement à 124°K et 127°K.

L'anomalie d'intensité observée sur PuAl 5% peut avoir deux origines :

- une variation de l'oscillation moyenne des atomes autour de leur position d'équilibre, donc une anomalie du spectre de phonons.

- une variation des positions moyennes des atomes par rapport au noeud du réseau.

La mesure d'intensité de R.X ne permet pas de séparer ces deux effets.

A partir de la relation :

$$\exp.\ (-2M) \;=\; I \;=\; \exp.\ \left(\frac{-16\,\pi^2\,\sin^2\nu}{\lambda^2}\right)\ \frac{\overline{\Delta x}^2}{3}$$

le calcul montre une variation : $|\overline{\Delta x}|$ 1.2 x 10^{-1} Å c'est-à-dire environ 3,5% de la distance interatomique. Une telle anomalie, si elle existe, n'a pu être observée sur PuAl 8% at. Il faut noter que l'anomalie de résistivité de PuAl 8% est beaucoup faible que sur PuAl 5%.

3) - AUTOIRRADIATION

En comparant les résultats de l'autoirradiation sur Pu^{γ} et Pu^{δ} , il semble que les effets des défauts créés à basse température soient en dehors de la précision expérimentale d'une mesure aux rayons X. Il faudrait pouvoir réaliser des autoirradiations d'au moins 100 heures pour déceler un changement.

III.4.- INTERPRETATION GENERALE

Quatre hypothèses sont avancées pour expliquer les anomalies des propriétés physiques du plutonium γ et δ à basse température.

1° - Transformation de phase [17]

2° - Transformation électronique [18] venant d'un modèle à 2 bandes 5 f et 6 d 7 s faisant passer à basse température des électrons du type s d dans la bande f et à haute température des électrons f dans la bande s d.

3° - Un spectre de phonons d'un type particulier entrainant certaines anomalies [18].

4° - Transformation antiferromagnétique à 60°K pour Pu^{γ}, 100°K pour Pu^{δ} entrainant un ordre de spins [19] [20].

1) - CHANGEMENT DE PHASE

Le plutonium γ ne change pas de phase à basse température, donc cette hypothèse est à rejeter.

2) - TRANSFORMATION ELECTRONIQUE DUE A UNE STRUCTURE DE BANDES PARTICULIERES

Les valeurs de la résistivité, pouvoir thermoélectrique , susceptibilité magnétique suggèrent une forte densité d'état au niveau de Fermi.

La variation du coefficient de Hall avec la température, d'après Brodsky [21] indiquerait une bande 5 f 6 d étroite et une bande 7 s d large.

La variation du niveau de Fermi avec la température ou autre origine de transformation électronique, pourrait faire augmenter fortement le nombre d'états 5 f à la température croissante et par voie de conséquence faire croitre la résistivité, la forte valeur de celle-ci étant due aux interactions des électrons libres avec les niveaux 5 f.

L'écrantage produit par les électrons f diminuant le potentiel des noyaux sur les électrons d et donc augmentant le volume atomique, provoquerait un léger réarrangement des atomes. Ceci pourrait éventuellement expliquer une anomalie d'intensité de diffraction aux rayons X et de dilatation à 100°K des Pu^{δ}.

En partant de l'anomalie observée sur Pu^{δ} , il est possible de se faire une idée quantitative sur la validité de cette théorie.

On suppose donc une augmentation de volume vers 100°K suite à une transformation électronique faisant passer des électrons s d dans le niveau f . Celle-ci est de l'ordre de $6°/_{oo}$. Cunningham et Wullmann [22] en appliquant aux actinides un modèle similaire à celui des terres rares ont calculé les variations de volume associées au passage d'un électron f dans le continuum des états libres. Cette variation, très importante, est égale à 15%. Il faut donc admettre une transformation entrainant le passage de 0.006/0,15 = 0,04 électrons sp dans la bande f.

Soit donc un modèle tel qu'il est représenté sur la figure III.3.

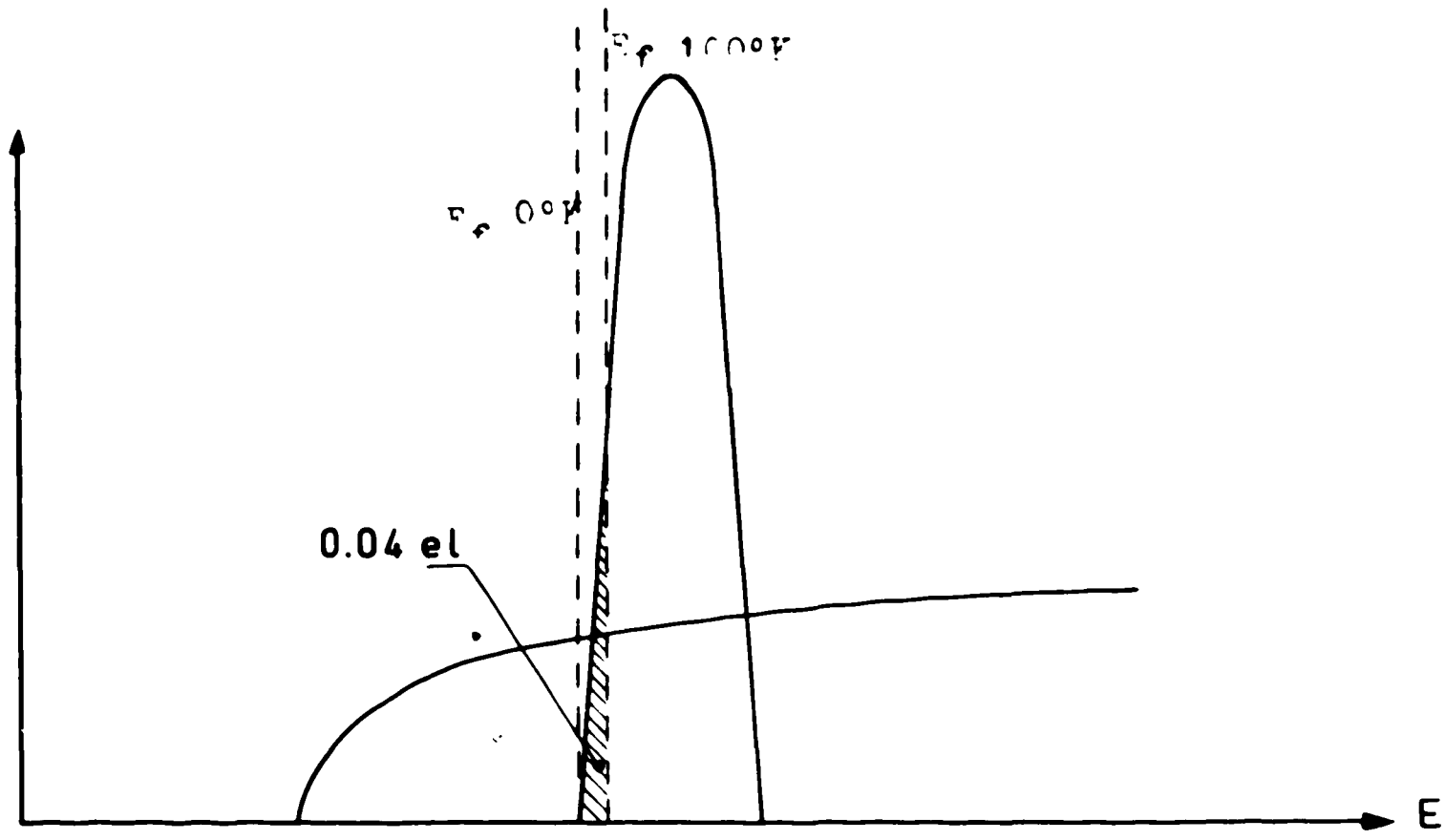


Figure III.3 : Exemple de transformation électronique pouvant expliquer le comportement du plutonium à basse température.

A 0°K, le niveau de Fermi est supposé au pied de la bande, situation la plus favorable à cette théorie.

En assimilant n(E) à une parabole, et en supposant la largeur de cette bande, $\Delta E = 0,2$ eV, c'est-à-dire un niveau du type niveau lié virtuel similaire à celui des terres rares [19], on trouve que le passage de 0,04 électron dans la couche f déplace le niveau de Fermi de telle sorte que :

n (F) = 2 el/eV si la bande f comprend 1 électron

n (E) = 2,5 el/eV si la bande f comprend 2 électrons.

Cette transformation pourrait donc relier l'anomalie de résistivité à une anomalie de dilatation. En effet, le nombre d'électrons f augmentant l'interaction de ceux-ci avec les électrons libres amène un fort accroissement de la résistivité.

Dans le cas du Pu γ , où l'anomalie de résistivité est plus importante, il faut supposer une anomalie de dilatation plus intense. Celle-ci serait encore dans les limites de la précision expérimentale.

Cependant, une addition faisant légèrement déplacer le niveau de Fermi devrait faire disparaitre totalement ce phénomène, aussi bien une anomalie de dilatation que de résistivité.

L'anomalie de résistivité est encore très bien marquée jusqu'à une addition de 10% at. d'aluminium ou 15% at. de Cerium. D'autre part, cette transformation devrait être liée à la position respective des atomes dans la maille . Une chute de température devrait avoir les mêmes effets à basse température qu'une augmentation de la pression, ce qui n'est pas le cas

Se trouvant à température assez basse, la susceptibilité magnétique devrait elle aussi accuser une anomalie décelable, ce qui n'est pas le cas.

3) - ANOMALIES DUES AU SPECTRE DE PHONONS

Schmoluckowski [18] suggère une variation exponentielle de la résistivité du plutonium à basse température en raison de la loi de conservation des moments dans la diffusion électrons-phonons. A une température plus élevée, une inter-diffusion entre les bandes 6 d 7 S et 5 f expliquerait par la loi de Mott le coefficient négatif de résistivité.

De même des anomalies de dilatation peuvent provenir d'un spectre de phonons dans lequel les modes de vibration transversaux deviennent importants.

Le paramètre de Grüneisen :

$$\gamma = \frac{\alpha V}{\chi C_v} = \sum \gamma_j \text{ avec } \gamma_j = - \partial \ln \nu_j \; / \; \partial \ln V$$

peut varier et même devenir négatif.

Des anomalies de dilatation dues à cette cause ont été calculées par Baron [23] et Laval [24] sur des structures cubiques et cubiques diamant.

Mais aussi bien dans le cas de la résistivité que le paramètre de Grüneisen, l'influence du spectre de phonons se fait sentir jusqu'à des températures au maximum égales à $0,2\ \Theta_D$. Si on peut admettre une croissance importante de la résistivité jusqu'à 60°K. obéissant à une loi en T^5 ou en $e^{-\Theta/T}$ (Θ_D Pu γ 200°K) dans le cas du Puγ, celle-ci ne pourrait plus s'appliquer

à Pu$^{\zeta}$ où la température de Debye est de 120°K. L'anomalie de dilatation ayant lieu à 100°K environ, on se trouverait dans la zone de la température de Debye. Le spectre de phonons n'a plus alors tellement d'influence sur le comportement des propriétés physiques du métal. Des anomalies de dilatation ont été bien observées à des températures comprises entre 0,1 et 0,3 θ_D (25, 26, 27, 28). Il semble donc bien qu'un effet de ce genre ne puisse s'appliquer au plutonium.

c) - TRANSITION MAGNETIQUE

Une transition anti-ferromagnétique a été suggerée par certains auteurs pour expliquer le comportement du plutonium γ et stabilisé [19], [4], à basse température. On peut alors bien rendre compte de la forte valeur de la résistivité, celle-ci venant d'une diffusion sur des spins désordonnés à haute température, chute de résistivité et du pouvoir thermoélectrique, l'anomalie du module élastique s'expliquent par une mise en ordre de spins.

La théorie de Rocher prévoit 2 bandes étroites 5 f légèrement séparées en énergie et de spins opposés. Le niveau de Fermi convenablement placé permet de rendre compte d'une susceptibilité magnétique faible et d'une variation non mesurable de la susceptibilité à la transition. les interactions entre électrons entrainant tout de même un ordre magnétique à basse température.

De même, il serait normal de ne pas voir une surstructure magnétique par diffraction de neutrons, l'intensité des raies étant alors trop faible.

Cependant cette théorie en appliquant l'approximation du champ moléculaire et des spins classiques prévoit un coefficient de dilatation négatif égal à :

$$\Delta\gamma = \frac{1,5\ \zeta\ Tc}{\zeta\ P} \qquad \frac{K}{V_o\ T_c}$$

K constante de Boltzmann. C'est-à-dire à :

$$\Delta\gamma = -\ 260 \times 10^{-6}\ /°K$$

Ceci serait donc en contradiction avec la mesure de paramètres. Cependant cette approximation peut conduire à des erreurs, car elle suppose des spins grands ce qui n'est pas le cas du plutonium.

Dans le cas de Pu δ, les courbes ne sont pas en contradiction avec une transformation de ce genre. FeO, CoO, NiO [20] montrent des anomalies similaires au moment de la transformation antiferromagnétique.

La mesure de magnétorésistance n'est pas non plus en contradiction avec une transformation magnétique. En effet, les énergies mises en jeu au cours de cette transformation doivent être très faibles, ainsi qu'en témoigne une récente mesure de chaleur spécifique du Pu γ [31].

La magnetoresistance observée par Griffiths et Coles [30] sur Mn γ est égale à son maximum à $\frac{R}{R} = 1 \times 10^{-4}$. La précision de la mesure sur Pu γ est peut être insuffisante pour déterminer une magnétoresistance entre 4,1° et 77°K.

III.5.- AUTOIRRADIATION

Il semble bien que l'autoirradiation sur le plutonium γ crée des paires de Frenkel.

Le mecanisme exact de l'effet de la formation de ces paires n'est pas bien expliqué.

Le recul du noyau U^{235} peut créer un volume perturbé et le noyau se loge en position interstitielle ou substitutionnelle. Le volume perturbé ne serait plus sensible au recul d'un second noyau.

La particule γ après un certain parcours pourrait se loger en position substitionnelle. Le passage du noyau et de la particule γ crée un grand nombre de paires de Frenkel.

Cependant l'influence d'un défaut sur les propriétés physiques du plutonium γ est certainement plus complexe que l'influence d'une simple impureté.

En effet, en admettant une structure magnétique ordonnée à basse température, l'effet de l'autoirradiation serait de deplacer les atomes porteurs de moments localisés et donc de détruire l'ordre magnétique. Donc, pour se faire une idée de la variation de volume associée à l'autoirradiation du plutonium γ à 40°K, il faut introduire du moins ces deux effets :

- augmentation de volume associé aux paires de Frenkel.

- eventuellement diminution de volume associé à un désordre magnétique.

On peut par la théorie des formation de défauts en cascade évaluer le nombre de paires de Frenkel créé par désintégration à 1800. Le volume perturbé serait, d'après Wigley [32] égal à celui occupé par 1.6×10^{-5} atomes. Il y aurait donc environ 1% de paires par unité de volume perturbé. Ceci se trouve en accord avec la règle de Walker [33], vérifiée pour l'argent, le cuivre, l'aluminium et le titane.

En admettant une augmentation de volume de 1 volume atomique par paire de Frenkel et connaissant la période de désintégration du plutonium γ (22360 années), on calcule facilement l'augmentation de volume entrainée par la création de ces défauts.

$$\frac{1}{V}\frac{\Delta V}{\Delta t} = \frac{1.800 \times p \times V\,at}{V\,at}$$

avec p = probabilité de désintégration = 9.6×10^{-3} / sec.

On aura :

$$\frac{1}{l}\frac{\Delta l}{\Delta t} = \frac{1}{3}\frac{1}{V}\frac{\Delta V}{\Delta t} = 5.7 \times 10^{-10} / \text{sec.}$$

Les mesures de résistivité à basse température permettent de se faire une idée de la contribution magnétique. La grande augmentation de résistivité du plutonium γ suite à une autoirradiation dans l'hélium liquide, mise en évidence Elliott, Olsen et Wigley [32], (0,06 $\mu\Omega$ cm / heure) peut être attribuée à une mise en désordre magnétique. Ceci permet de calculer un "taux de mise en désordre" en connaissant la variation de résistivité suite à la transformation magnétique (120 $\mu\Omega$ cm). On aura τ : $\frac{0.06}{120}$ / heure.

En admettant un coefficient de dilatation magnétique de l'ordre de -20×10^{-6} / °K entre 5°K et 45°K comme il a été dit plus haut, la mise en désordre entrainerait une variation en volume de $3 \times 20 \times 40 \times 10^{-6} = 2.4 \times 10^{-3}$.

Inversement la variation en volume due à la mise en désordre serait :

$$\frac{1}{V}\frac{\Delta V}{\Delta t} = -\tau \times 24 \times 10^{-4}$$

$$\simeq -3.3 \times 10^{-10} / \text{sec.}$$

et

$$\frac{1}{l}\frac{\Delta l}{\Delta t} = -1.1 \times 10^{-10} / \text{sec.}$$

On arrive ainsi en rendant compatibles les différentes données du plutonium γ à une augmentation linéaire théorique de :

$$\frac{1}{l}\frac{dl}{dt} = (5\text{-}7\text{-}1.1)\ 10^{-10}/\text{ sec.}$$

$$= 1.7 \times 10^{-6}\ /\text{heure}$$

Ce calcul n'est naturellement valable que dans le cas d'une autoirradiation sans saturation, c'est-à-dire relativement courte, ce qui est le cas de la mesure effectuée.

Expérimentalement, la dilatation $\frac{1}{l}\frac{dl}{dt}$ est égale à 5.25×10^{-6} /heure.

Compte tenu des hypothèses envisagées, il ressort que l'accord est assez bon puisque le résultat expérimental est trois fois plus grand que le résultat prédit.

Le nombre de paires de Frenkel créé par désintégration reste approximatif ainsi que l'augmentation de volume associée à la création d'une paire.

Il ressort également que la contribution magnétique ne saurait être très importante et donc le coefficient de dilatation magnétique resterait faible.

IV. - CONCLUSION

Le plutonium γ et stabilisé δ ne change pas de phase jusqu'à 20°K.

L'examen des courbes de dilatation du Pu γ indique la présence d'une transformation du second ordre vers 100°K. Ce genre de transformation n'est pas incompatible avec la variation des paramètres de Pu γ.

Un barreau de plutonium plongé dans l'hélium liquide s'allonge de façon notable. La formation de paires de Frenkel au cours des désintégrations ainsi qu'une mise en désordre magnétique semblent bien représenter les causes de cet allongement.

Parmi les différentes théories tentant d'expliquer le comportement du plutonium à basse température, une transition antiferromagnétique semble concilier le maximum de données expérimentales en faisant le minimum d'hypothèses sur la structure électronique du plutonium. Il faut cependant bien admettre que les propriétés physiques du plutonium et des actinides sont calculées à partir de relations valables pour des séries antérieures qui ne seraient pas toujours applicables à cette série.

B I B L I O G R A P H I E

(1) J. BLOCH - C.R. C.F.A. -° 1449

(2) F.C. NIX et D. MAC NAIR - Physical Review - 1941, 60 p. 597

(3) C.S. BARRETT Phys. Rev. Letters Abstr. Décembre 1962

(4) R. LALLEMENT J. Phys. Chem. Solids - 1963, 24, 1617 - 1624

(5) ZACHARIASEN (1963) Acta Crystallographica (à paraître)

(6) H.T. CHEBOTAREV, A.B. BEZNOSIKOVA. At. Energ. 7, 68-9 (1959)

(7) SANDENAW T.H. Plutonium 60, E. GRISON, W. LORD et R. FOWLER éditeurs. Cleaver Hume Press.

(8) R. LALLEMENT Cryogenics Letters - March 1963

(9) R.B. ROOF. Jr. Los Alamos Report LA 2912

(10) Plutonium 60, E. GRISON, W. LORD et R. FOWLER éditeurs. Cleaver Hume Press.

(11) R. LALLEMENT. Physics Letters 513, 1963

(12) R. LALLEMENT. Physic Letters 8, 166, 1963

(13) R.O. ELLIOTT, C.E. OLSEN, James LOUIE. Phys. and Chem. of solids 1962, 23, 1029-44

(14) A.E. KAY and R.G. LOASBY. Phil. Mag. 9, 97, p. 37, 1964

(15) K.A. GSCHNEIDNER, R.O. ELLIOTT LADC 5466.

(16) Communication privée

(17) T.A. SANDENAW. J. Phys. Chem. Solids 23, 1241 (1962)

(18) R. SCHMOLUKOWSKI. Phys. Rev. 125, 1577 (1962)

(19) ROCHER. Advances in Physics vol 11, NR 43, p. 233 (1962)

(20) M.T. BEAL Rapport C.E.A. n° 2304 , 1963

(21) M.B. BRODSKY . Physical Review. Vol 131 n°1 p. 136-140 (1963)

(22) CUNNINGHAM et WALLMANN. J. Inorg. Chem. 1964

(23) T.H.K. BARON. Phil. Mag. 46, 720, 1955

(24) LAVAL. C.R. Académie des Sciences - 1963, 257 (20) 2922-2927

(25) D.F. GIBBONS

(26) G.K. WHITE

(27) K. ANDRES

(28) P.P.M. MLINCKE et G.M. GRAHAM

8ème Congrès international de Londres Low Temperature Physics.

(29) Belov Magnetic Transition p. 136 - Traduit par Fury.

(30) D. GRIFFITHS et B.R. COLES. Proc. Phys. Soc. 1963, Vol 32, 127

(31) A.E. KAY et R.G. LOASBY (Communication privée)

(32) WIGLEY A.E.C. Thèse, Université d'Oxford

(33) P.G. LUCASSON, R.M. WALKER ; Phys. Rev. 127, 1130 (1962)

MANUSCRIT REÇU LE 4 DECEMBRE 1964

T A B L E D E S M A T I E R E S

	Page
INTRODUCTION	1
I. - TECHNIQUES EXPERIMENTALES	2
I.1.- Diffractomètre	4
I.2.- Basses températures	6
a) - Siphon	6
b) - Cryostat	7
1.3.- Porte-échantillon, contamination	7
a) - Siphon	7
b) - Cryostat	8
1.4.- Mesure de la température	9
1.5.- Prise des diagrammes	9
1.6.- Préparation des échantillons	9
1.7.- Applications	10
a) - Cuivre	10
b) - Or	10
c) - Uranium α	10
1.8.- Mesures de résistivité, magnétorésistance	11
1.9.- Autoirradiation	11

II. - RESULTATS 13

II.1.- Pu α 13

a) - Rayons X 13

b) - Magnétorésistance 17

c) - Résistivité 17

d) - Autoirradiation 18

e) - Conclusion expérimentale 18

II.2.- Pu stabilisé δ 19

III. - INTERPRETATION DES RESULTATS 19

III.1. - Rappel des propriétés physiques des Puα et δ à basse température 19

III.2.- Puα 20

III.3. - Pu δ 21

1) - Dilatation 22

2) - Intensité 22

3) - Autoirradiation 24

III.4. - Interprétation générale 24

1) - Changement de phase 25

2) - Transformation électronique 25

3) - Anomalies dues au spectre de phonons 27

4) - Transition magnétique 28

III.5. - Autoirradiation 29

IV. - CONCLUSION 31

BIBLIOGRAPHIE 33

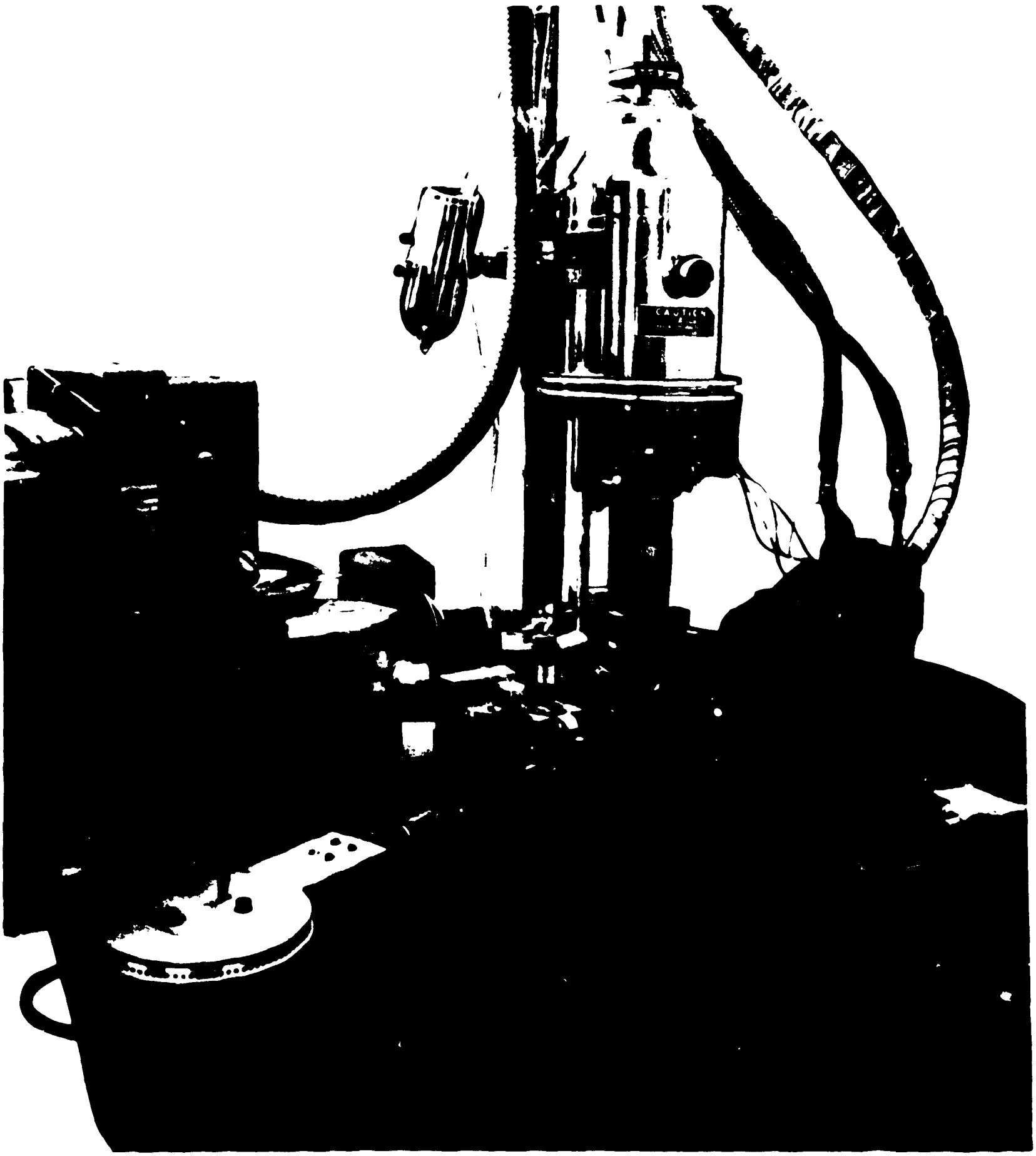


Figure I-1 Vue générale du diffractiomètre

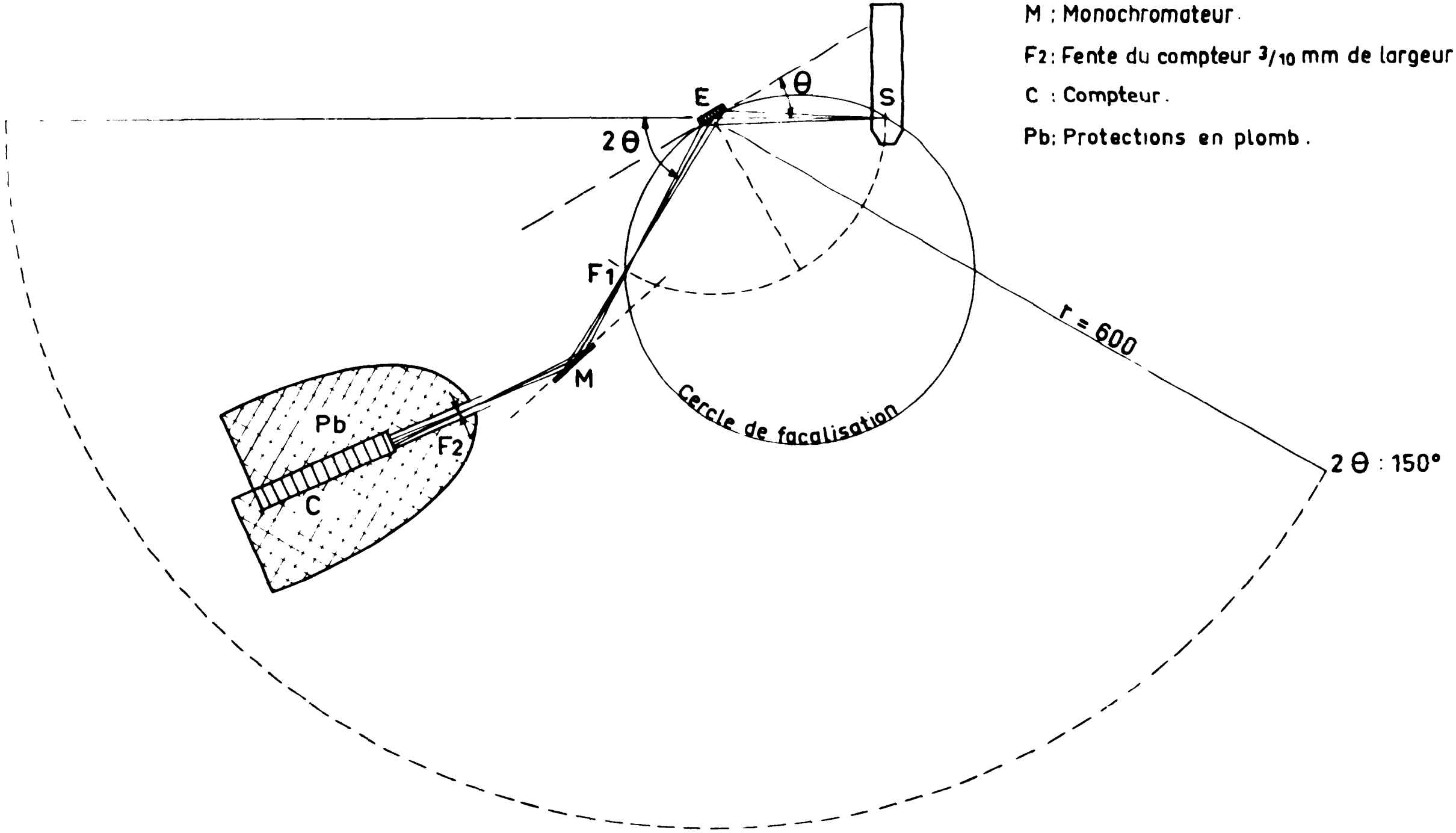


Figure I.2 : Vue schématique du diffractomètre

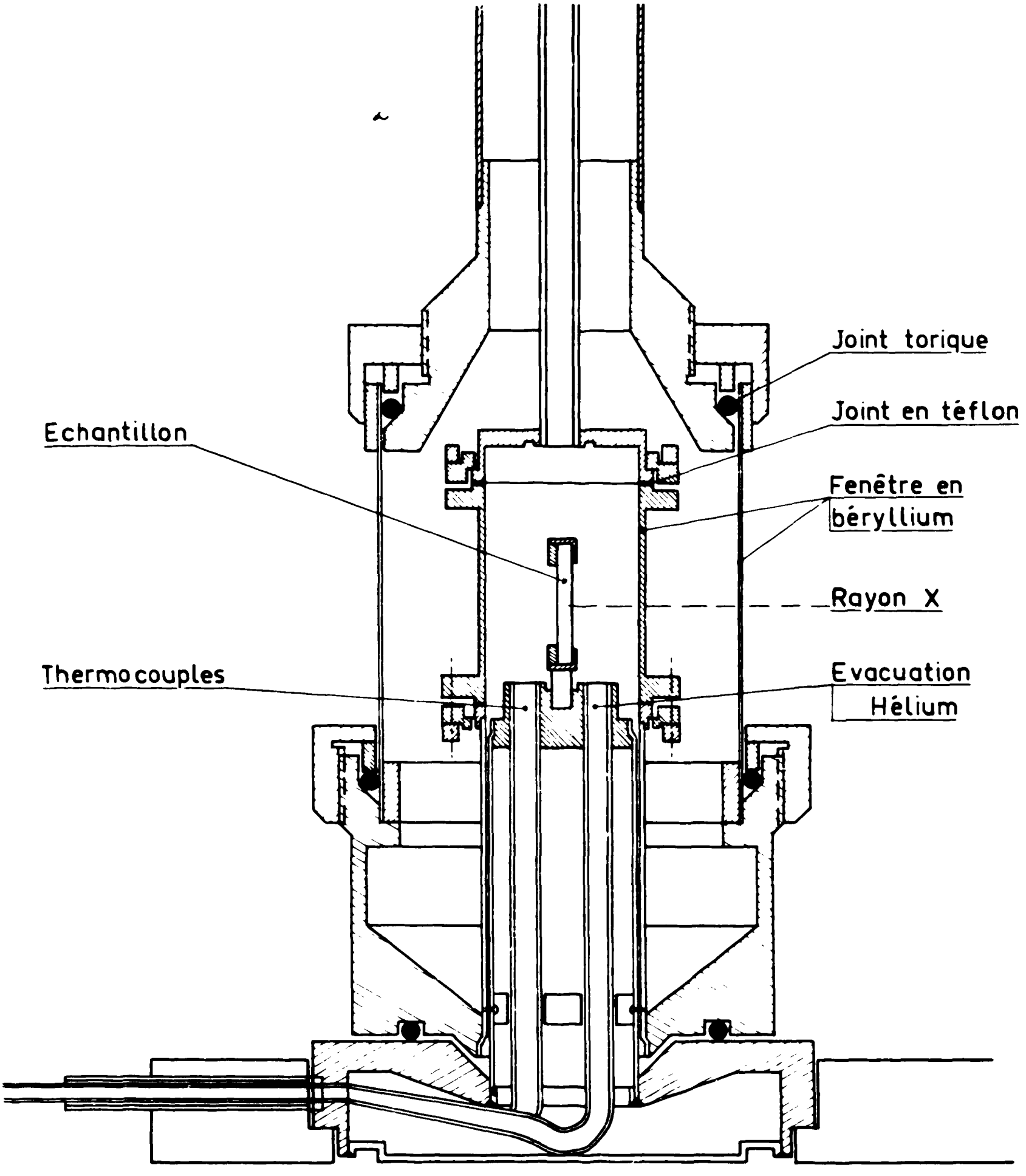


Figure I.3 : Vue schématique de l'appareil à hélium gazeux pour diffraction de rayons X à basse température.

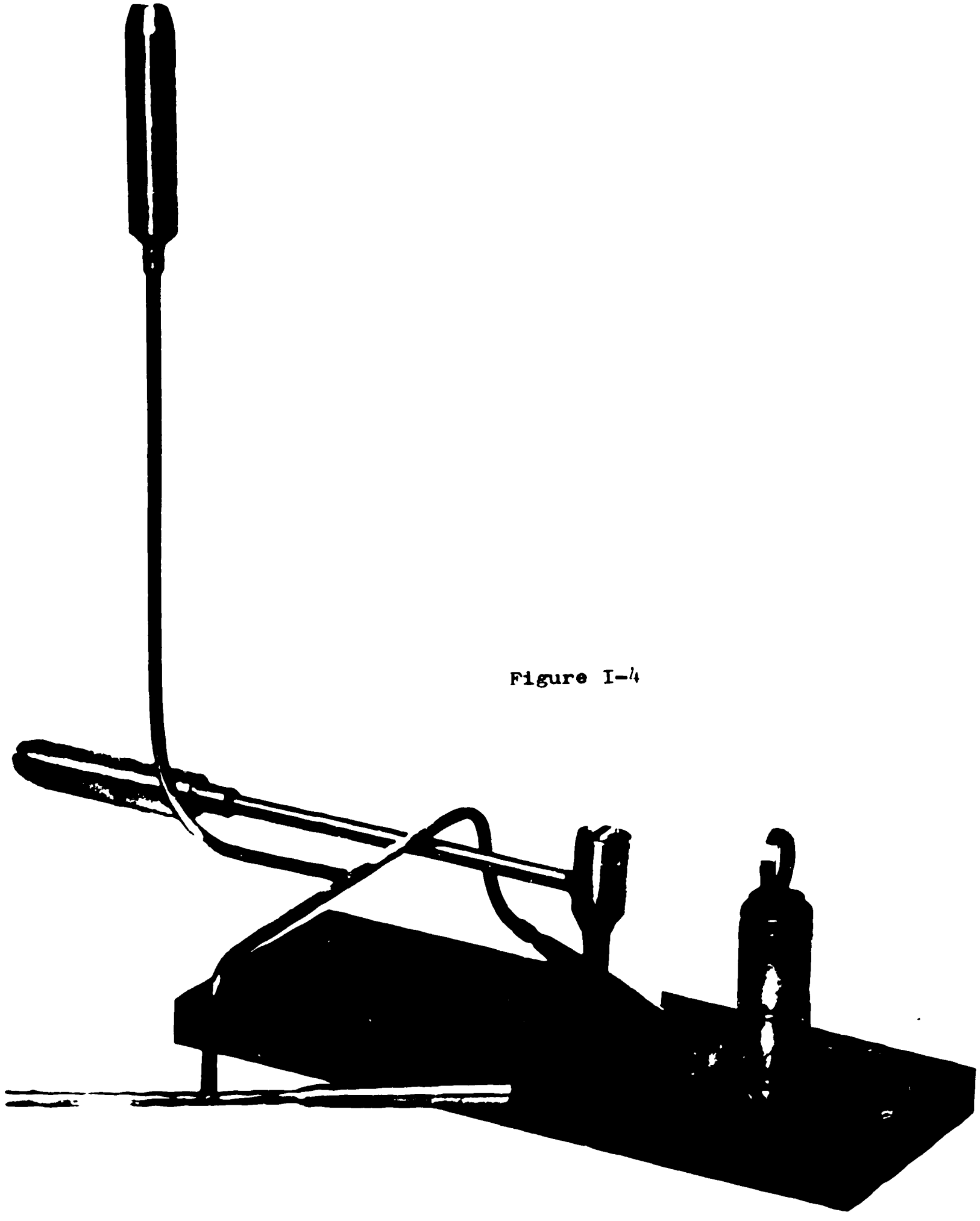


Figure I-4

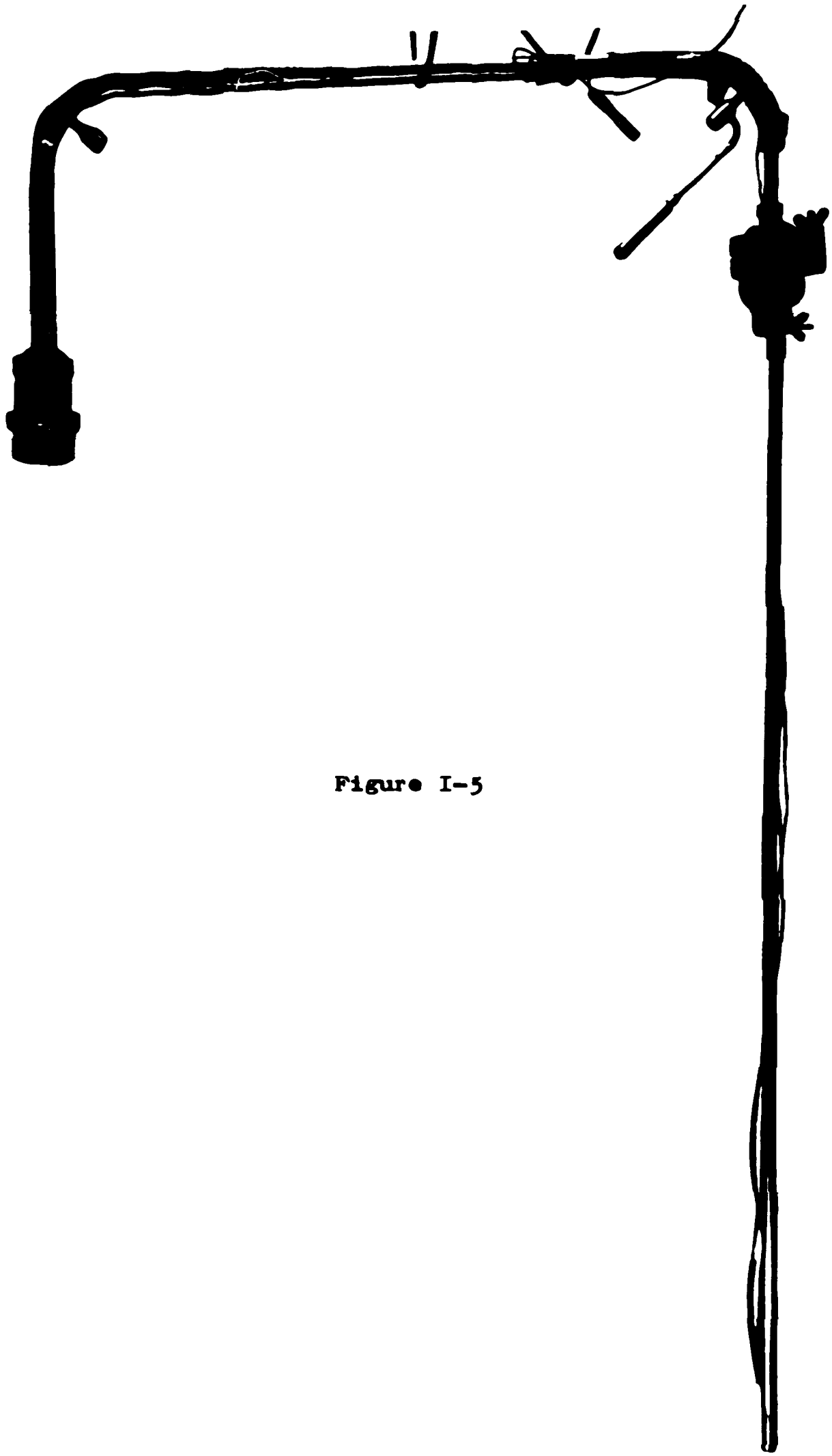


Figure I-5

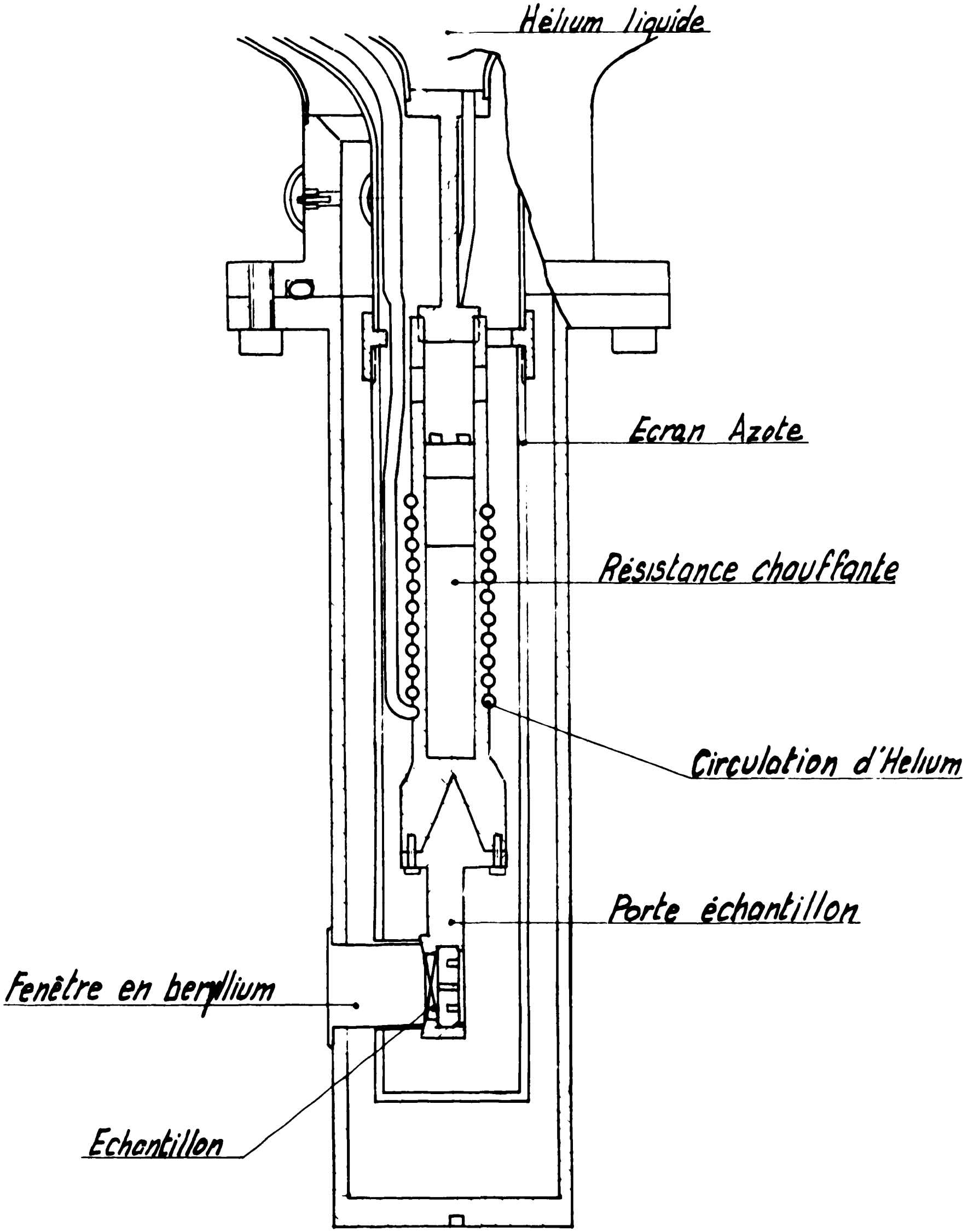


Figure I.6 : Vue schématique du Vase Dewar Cofman

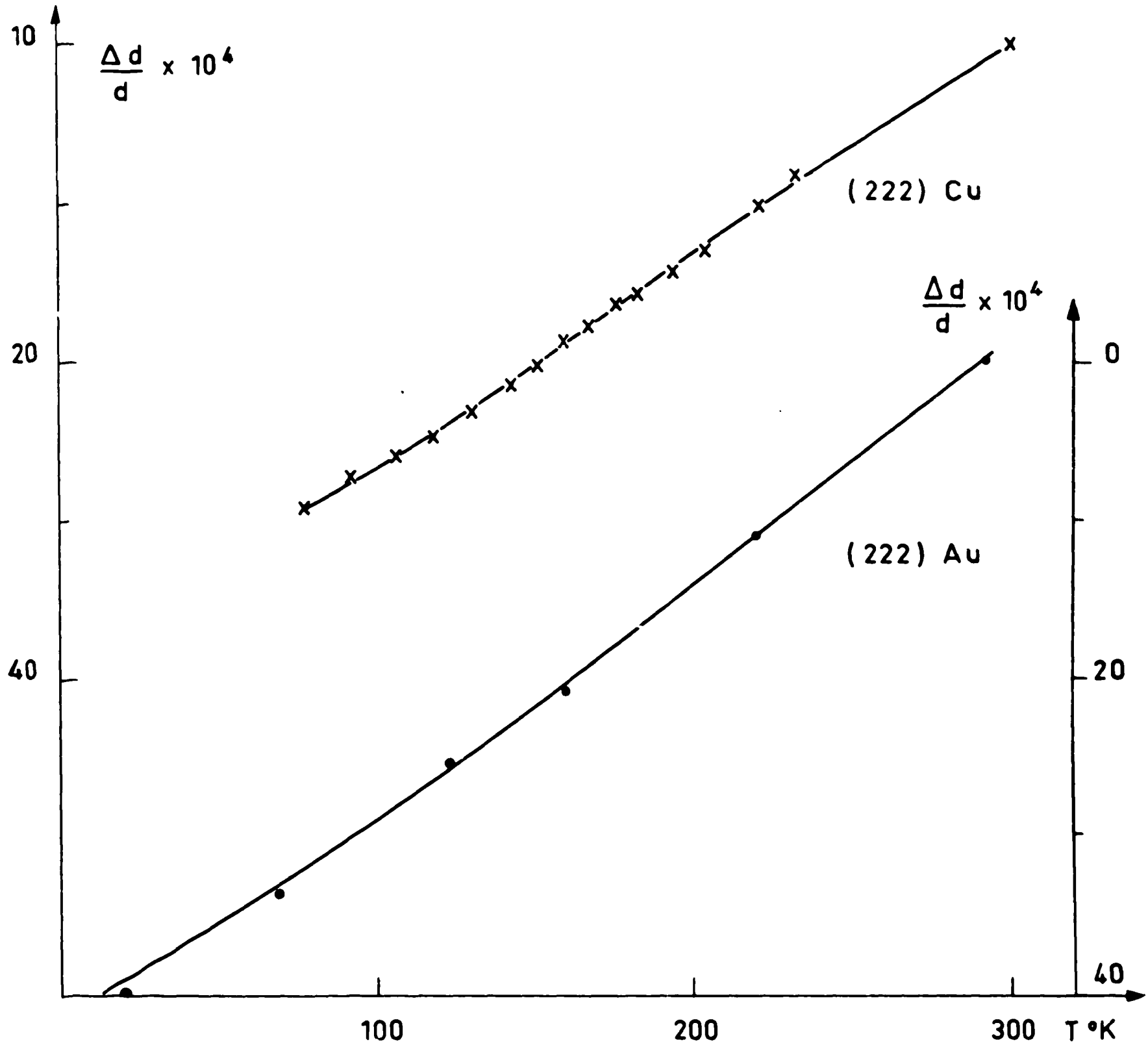


Figure I.7 : Variation des paramètres du cuivre et de l'or en fonction de la température.

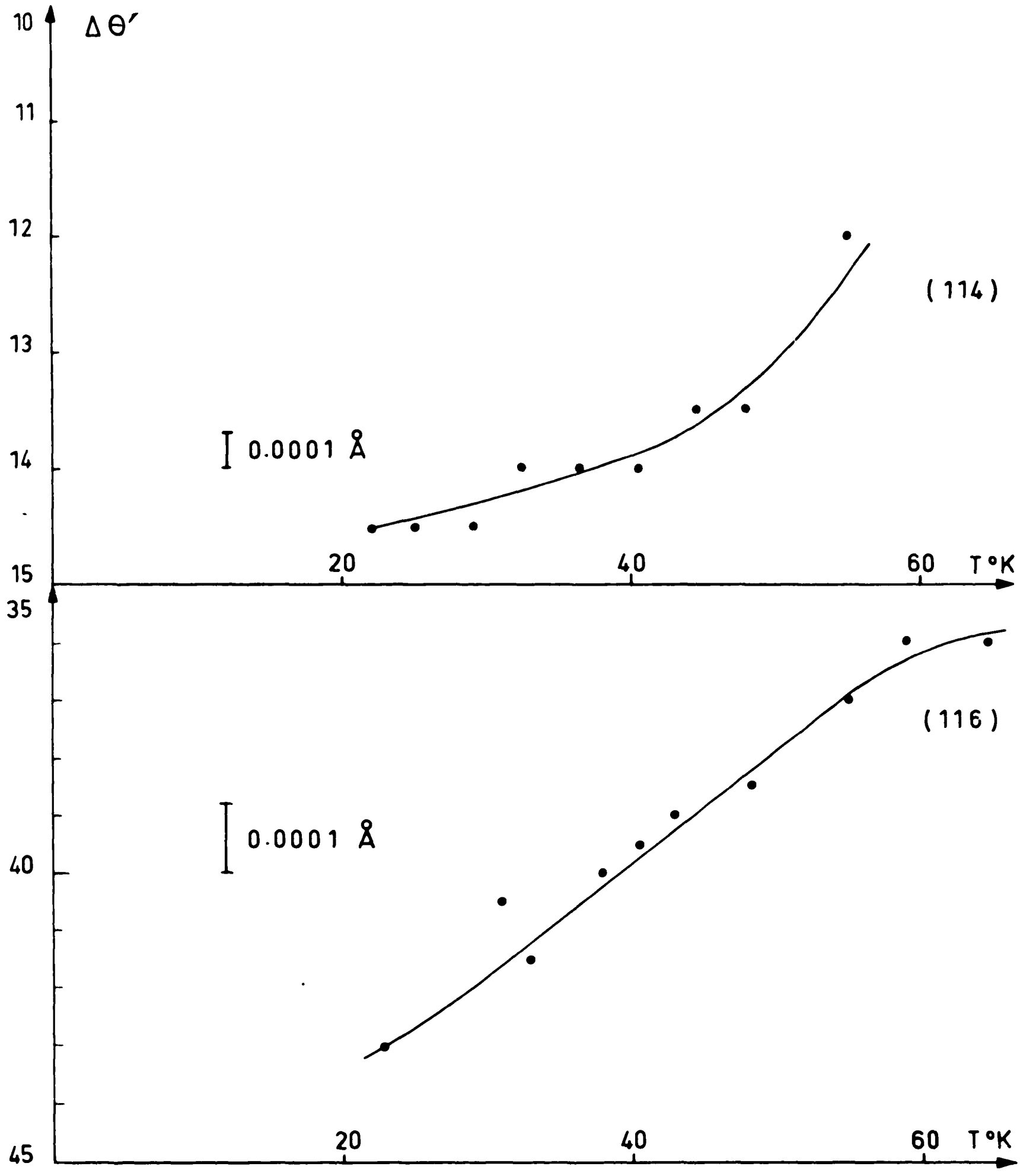


Figure I.8 : Evolution des paramètres de l'uranium α en fonction de la température.

Raies (114) et (116)

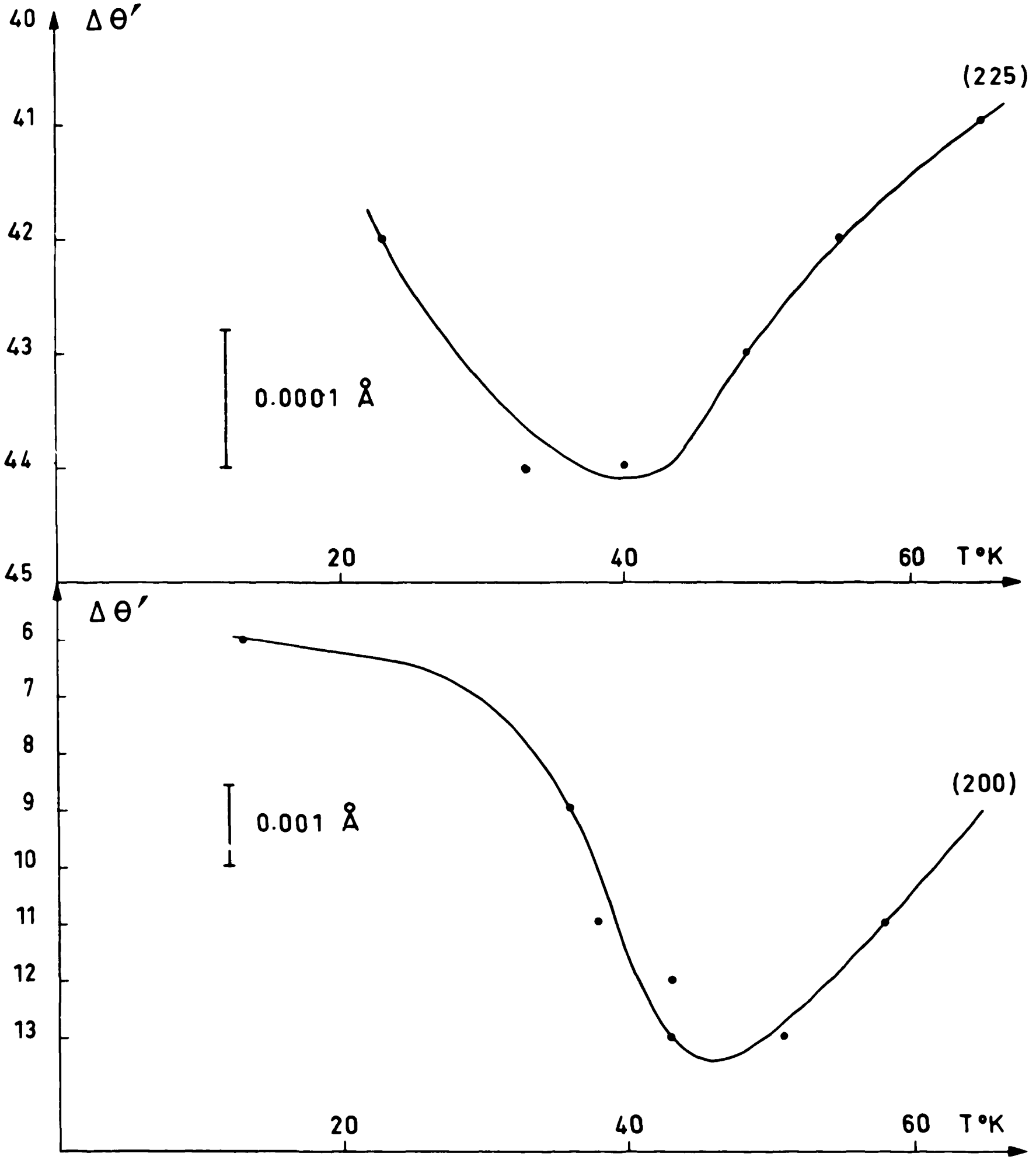


Figure I.9 : Evolution des paramètres de l'uraniumα en fonction de la température.

Raies (200) et (225)

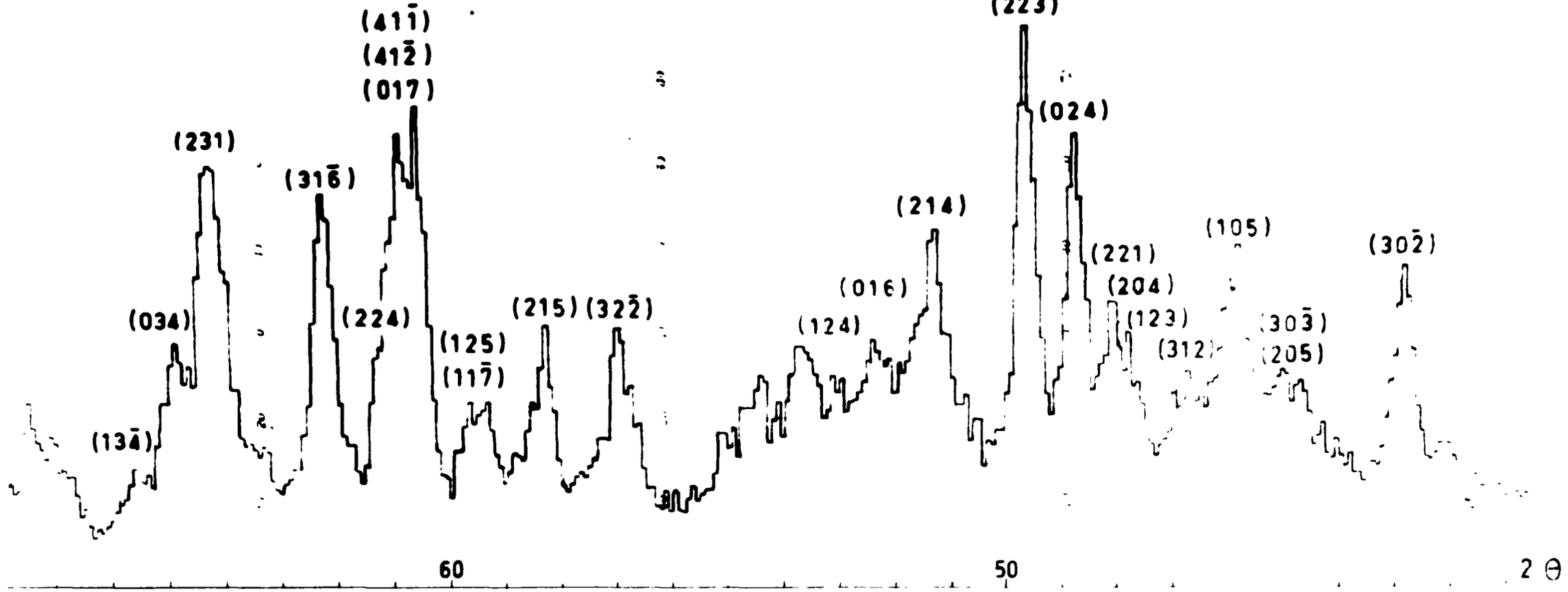


Figure.II 1: Diagramme partiel de diffraction de Pu α
T = 300 °K

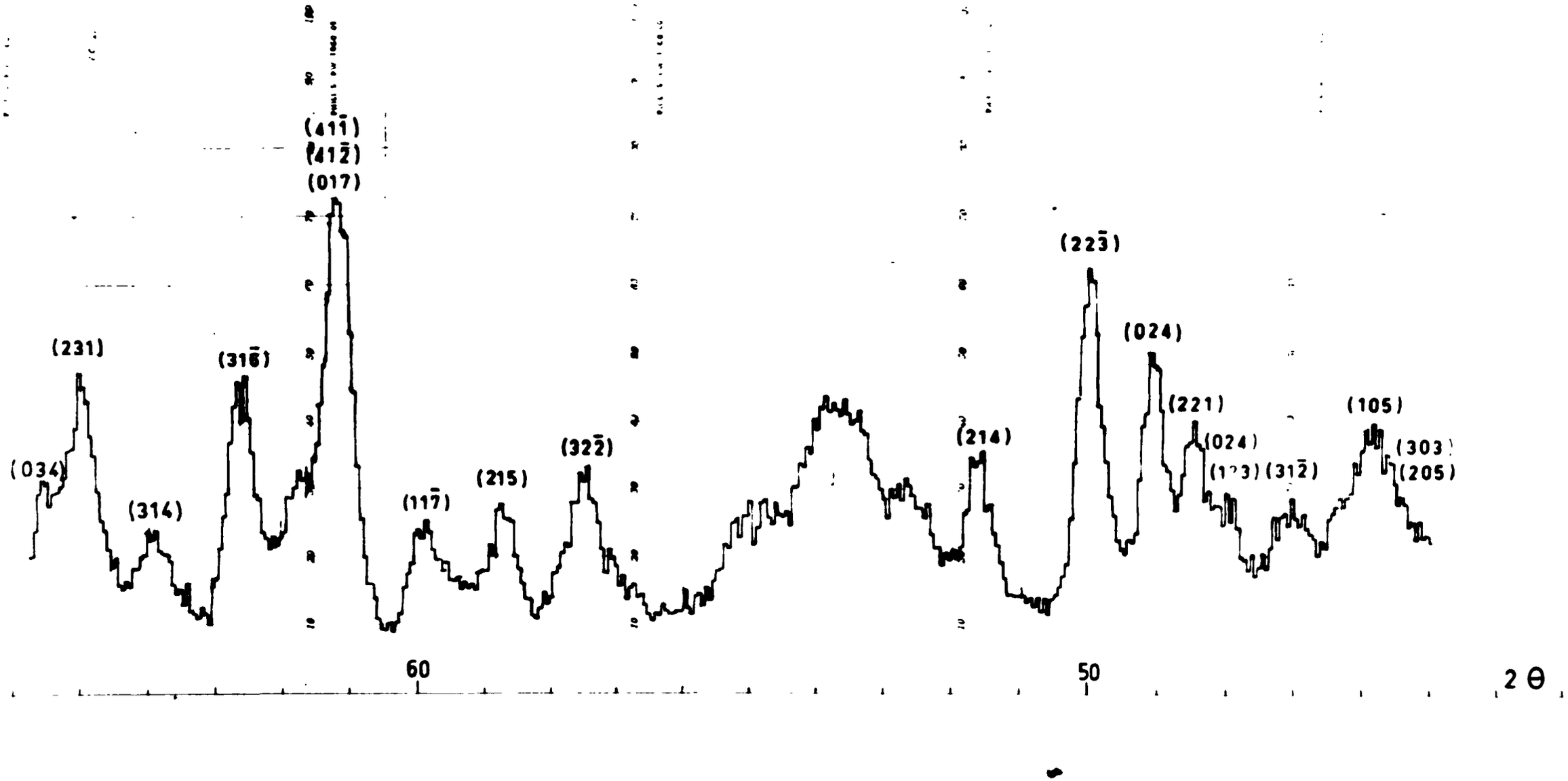


Figure II 2 : Diagramme partiel de diffraction de Pu α

T = 20 °K

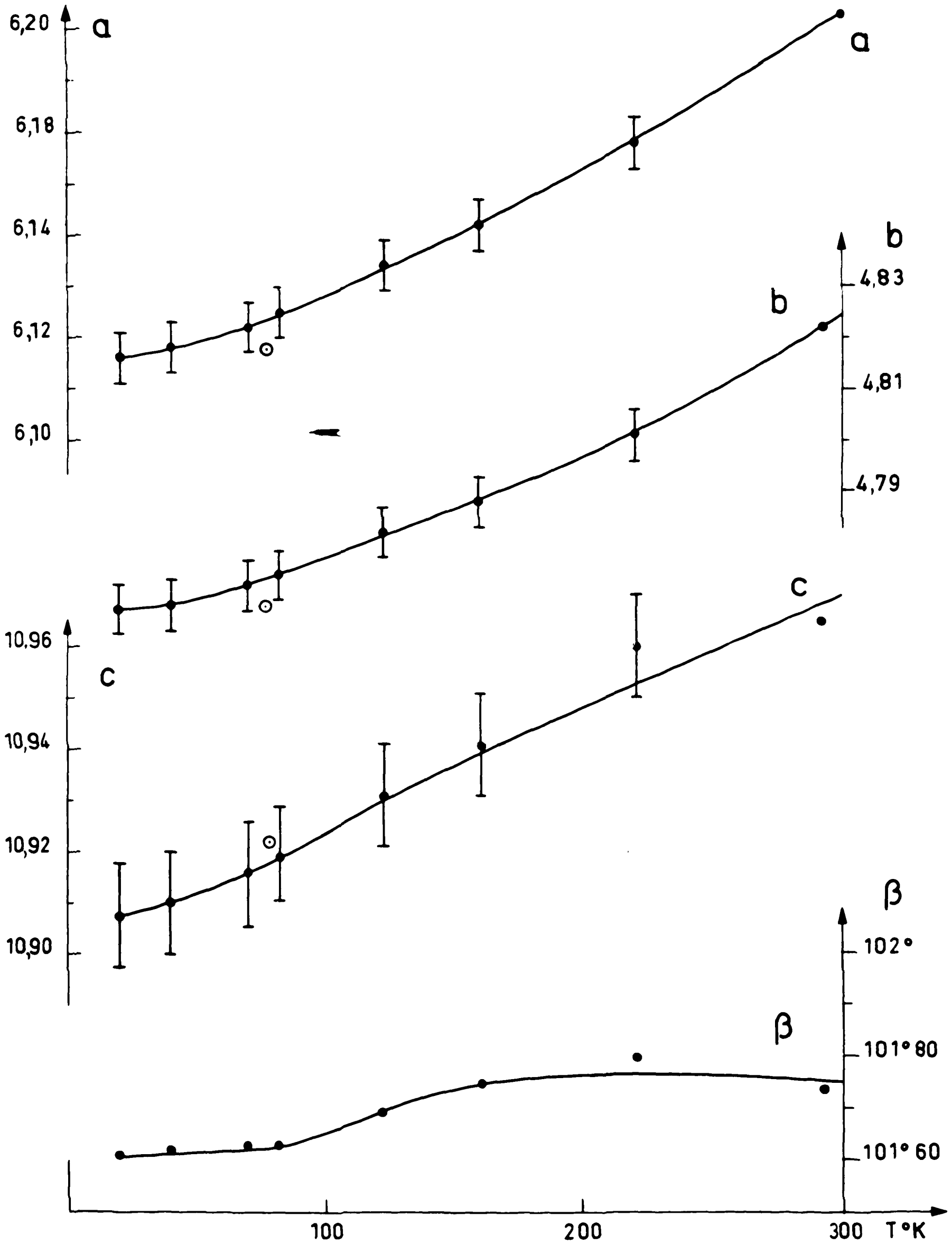


Figure II$_c$4 : Variation des paramètres du plutonium α en fonction de la température.

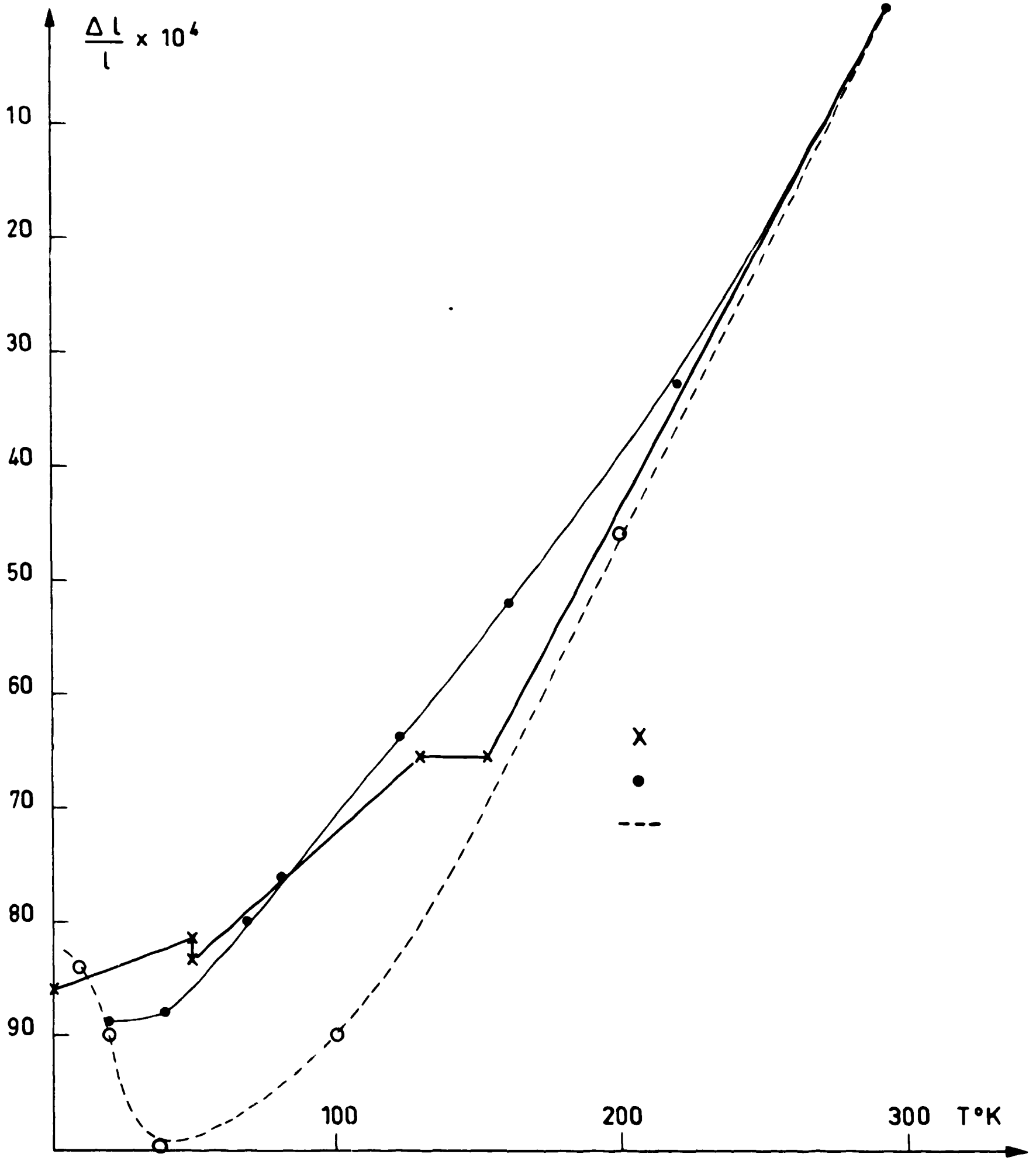


Figure II.6 : Dilatation linéaire d'un polycristal de plutonium en fonction de la température.

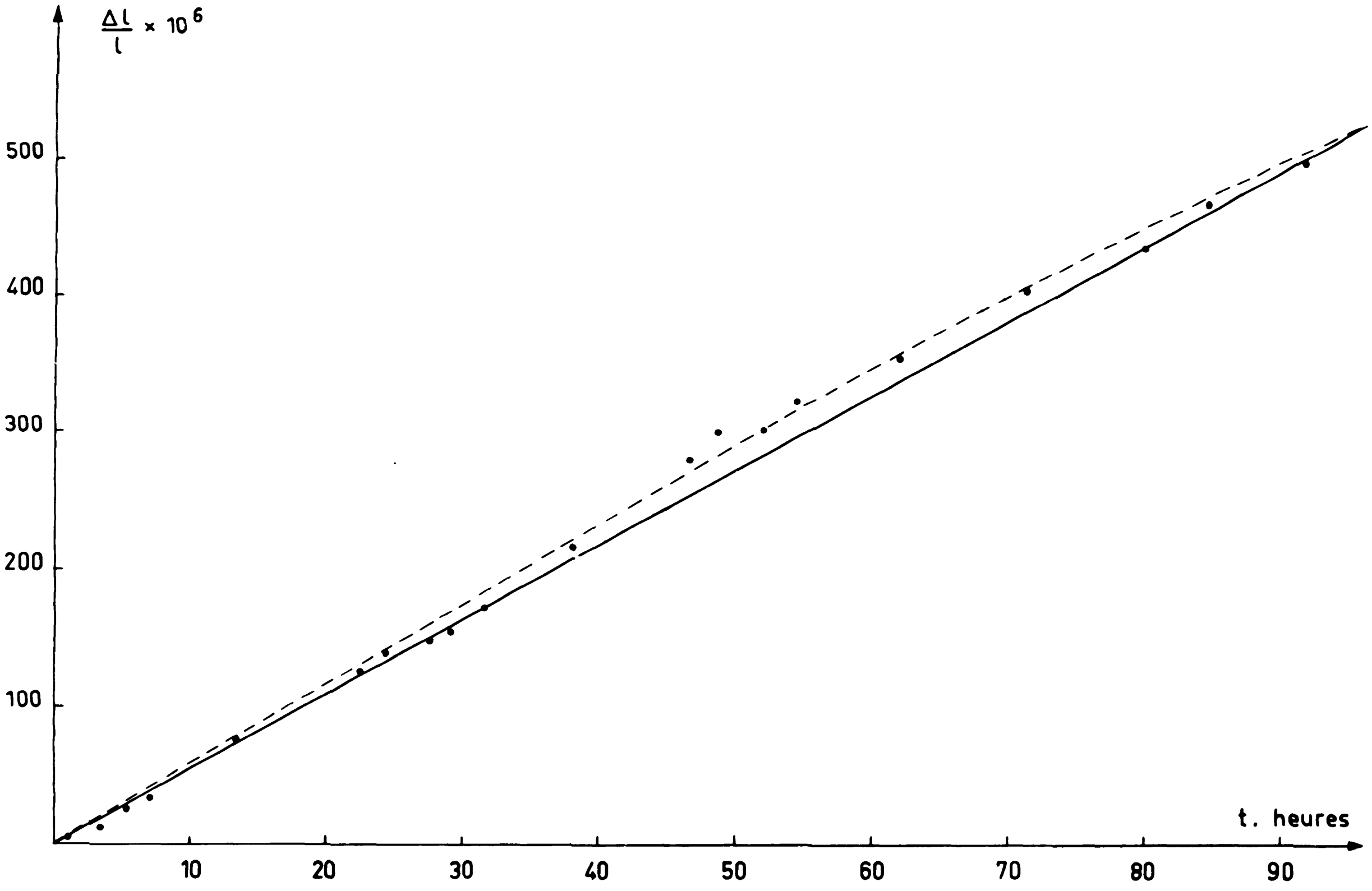


Fig. II.7 : *Allongement relatif en fonction du temps d'un* barreau de plutonium plongé dans l'hélium liquide.

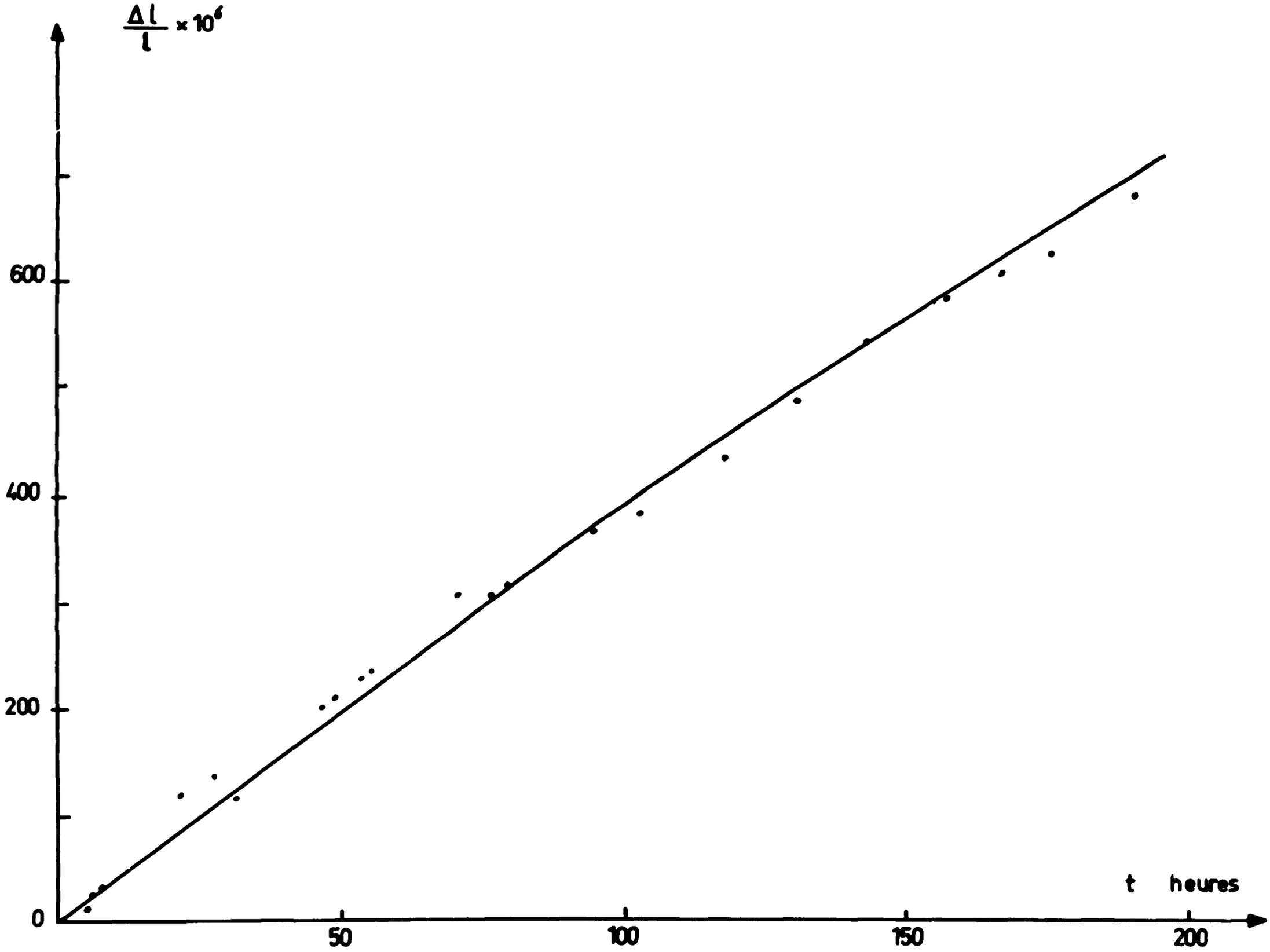


Fig. II. 8 : Allongement relatif en fonction du temps
d'un barreau de plutonium α plongé dans l'hélium liquide.

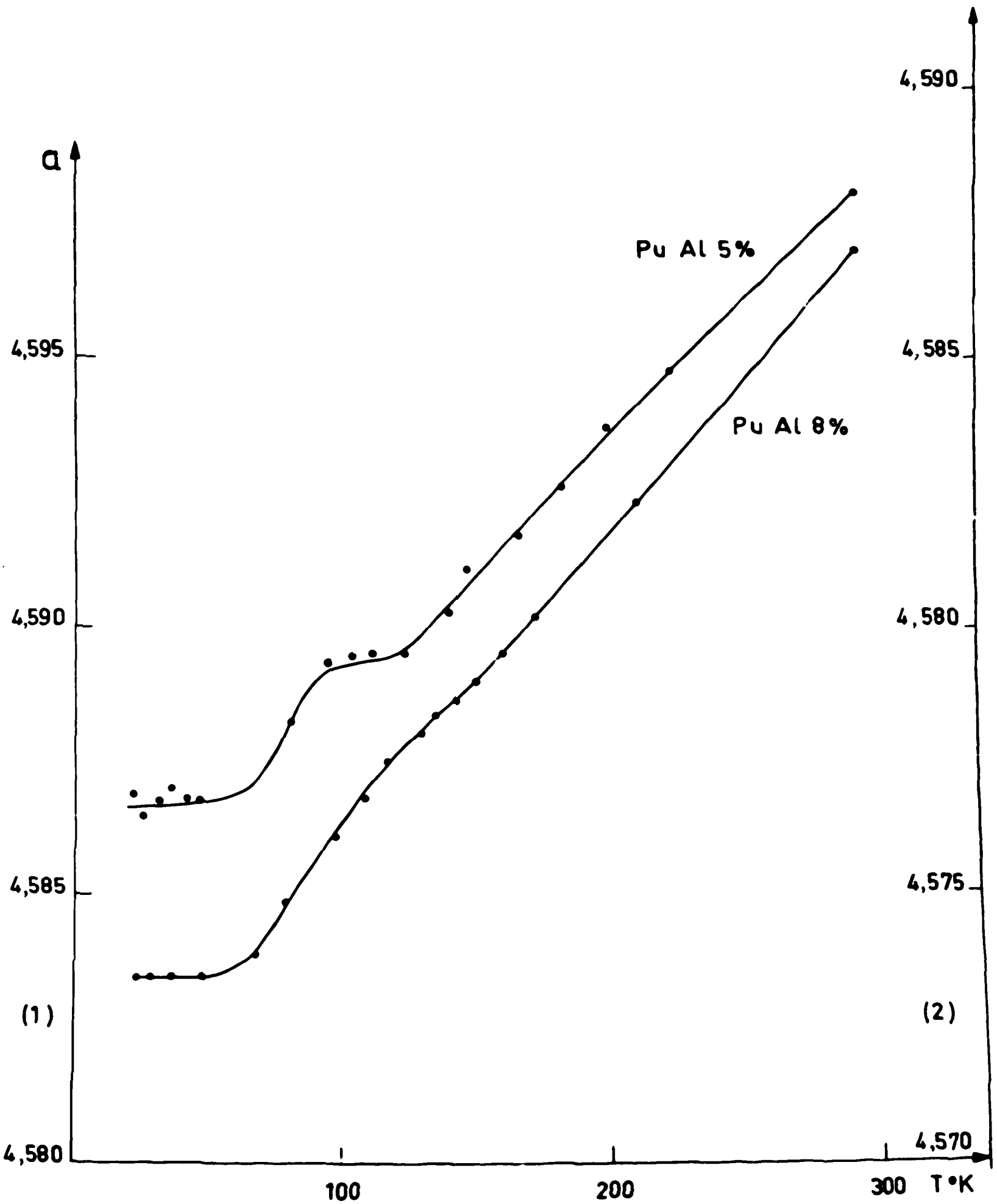


Figure II.9 : Variation des paramètres de Pu-Al 5 et 8% at. en fonction de la température.

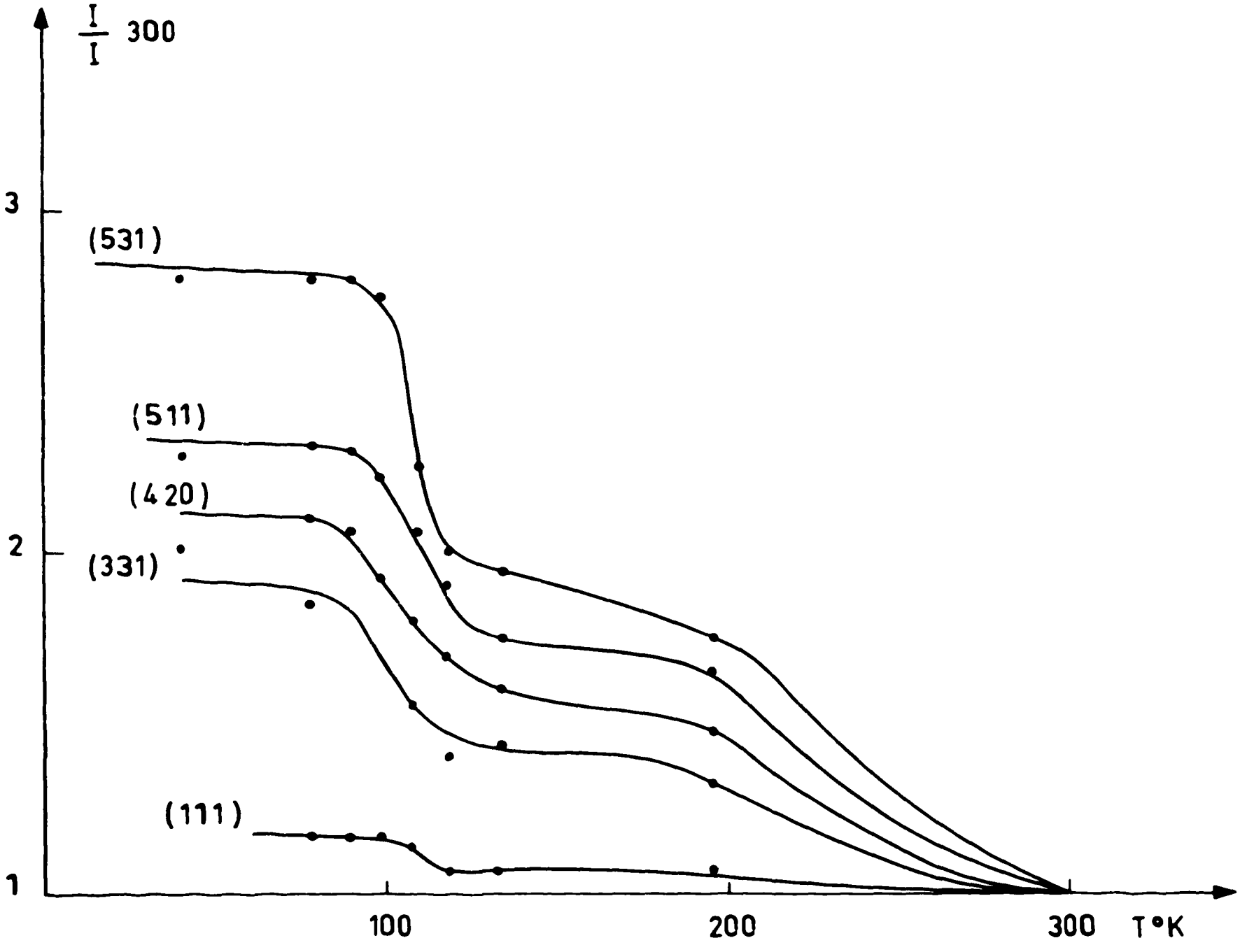


Figure II.10 : Variation de l'intensité des raies de diffraction de l'alliage Pu-Al 5% at. en fonction de la température.

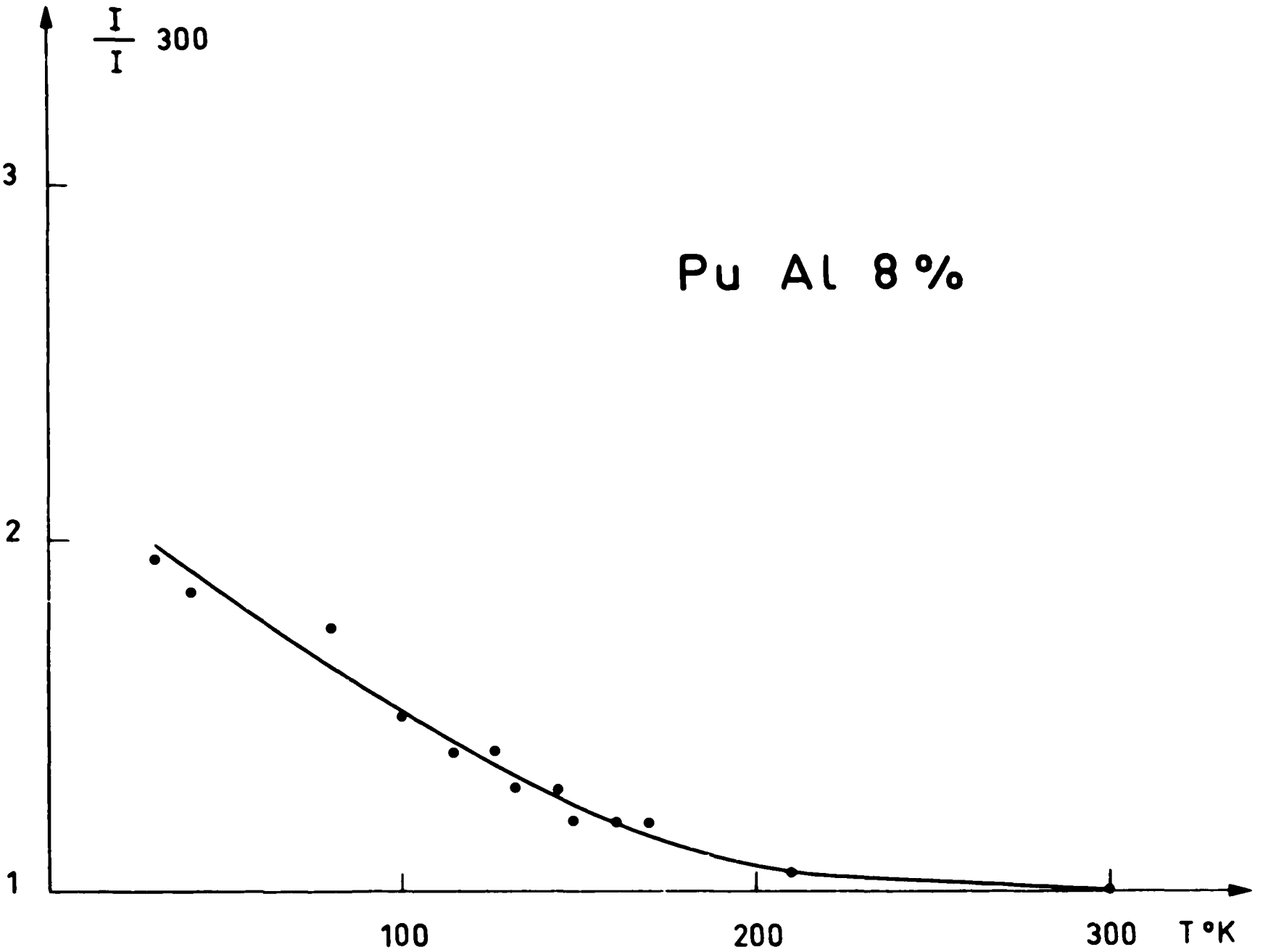
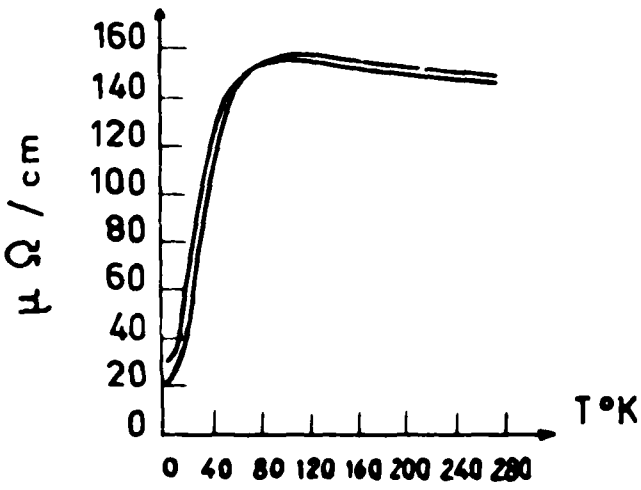
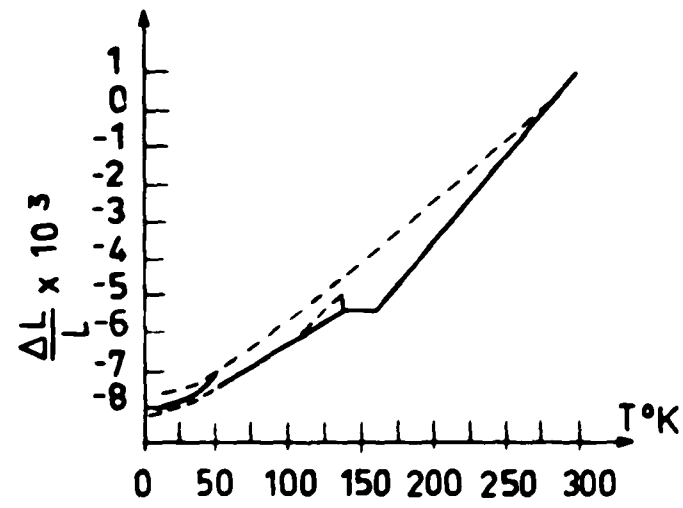
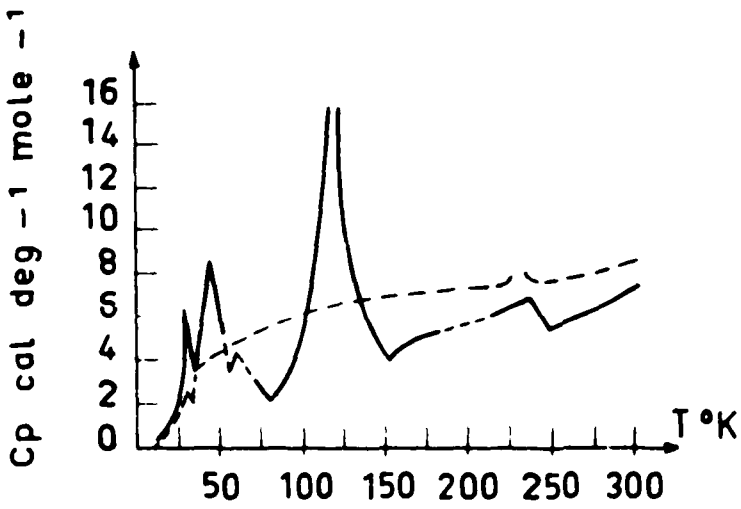
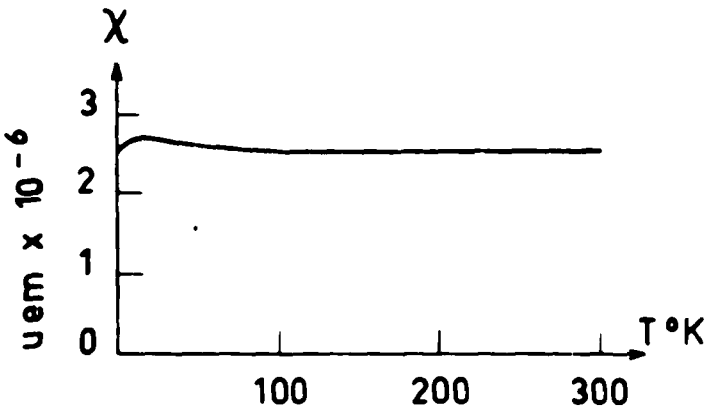


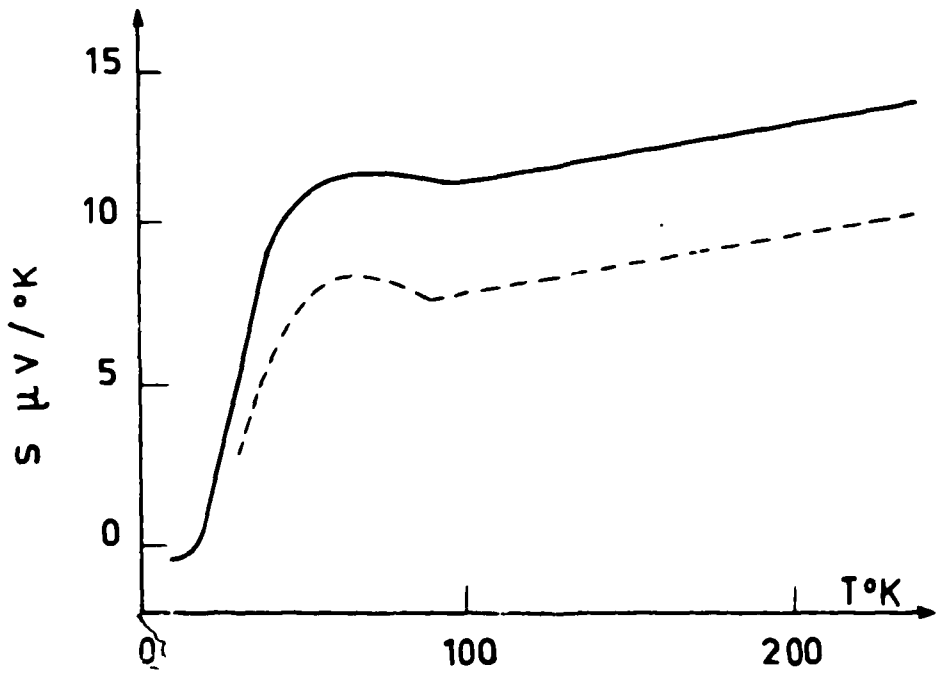
Figure II.11 : Variation de l'intensité de la raie de diffraction (531) de l'alliage Pu-Al 8% at., en fonction de la température.











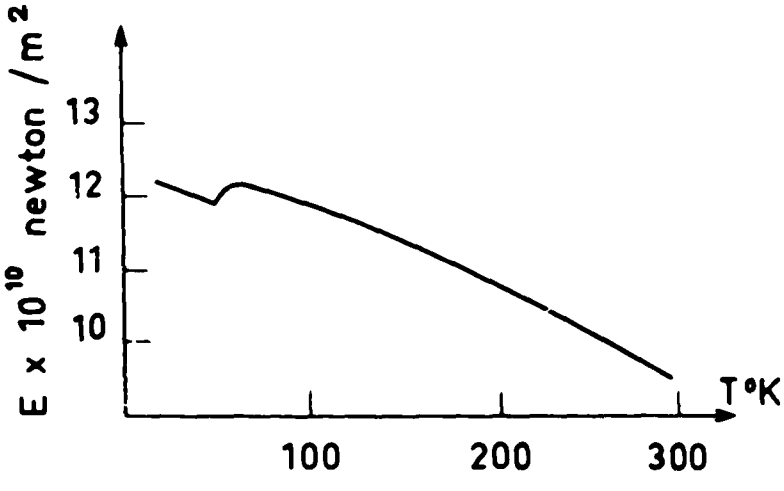


Figure III.1 : Propriétés physiques du plutonium à basse température. D'après Lallement et Plutonium 60.

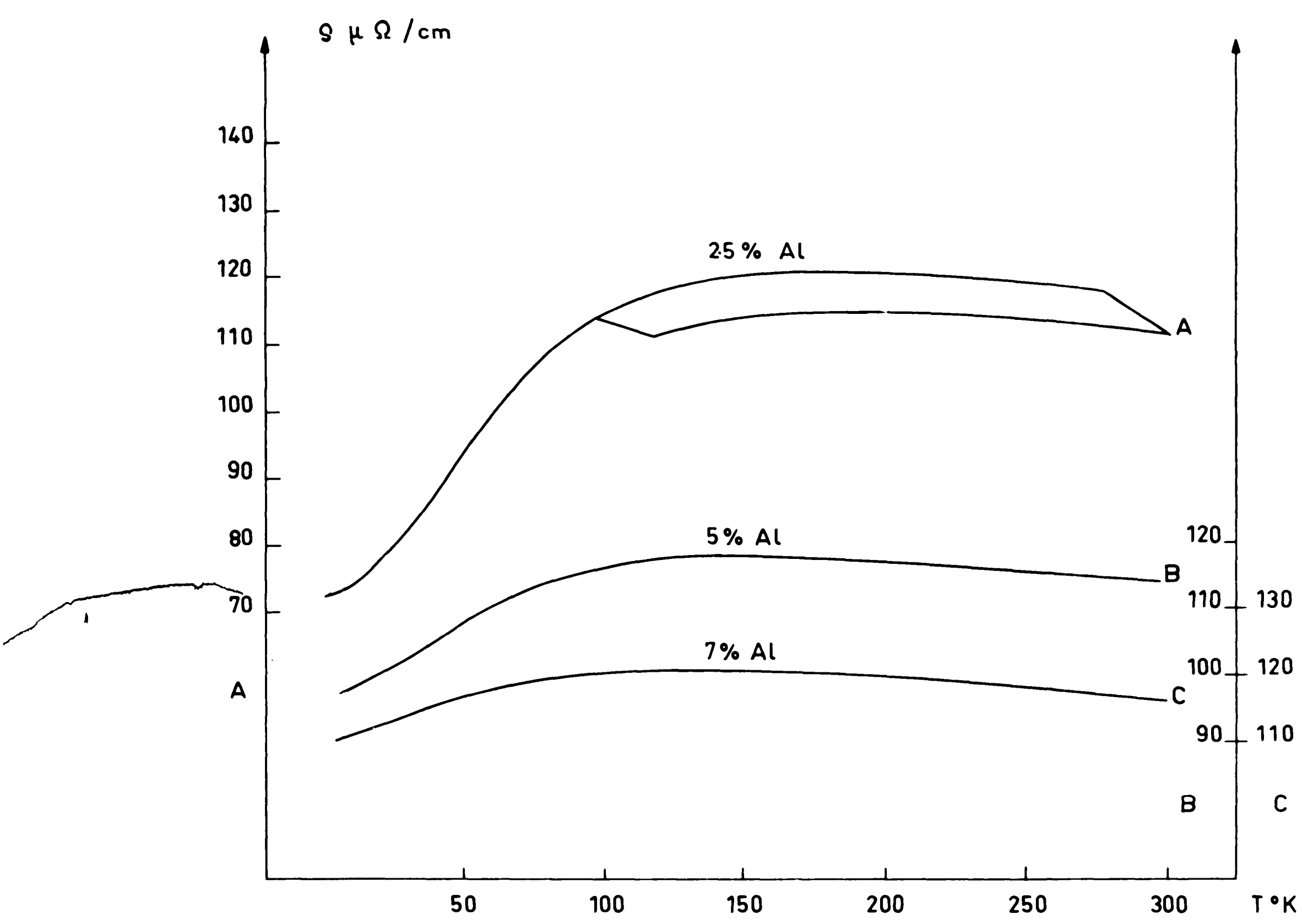


Figure III.2 : Variation de la résistivité d'alliages Pu-Al en fonction de la température.

FIN