CEA 2321 - PARUZ H.

ETUDE DES ALLIAGES URANIUM-PLUTONIUM AUX CONCENTRATIONS COMPRISES ENTRE 0 ET 20 POUR CENT DE PLUTONIUM (1963).

Sommaire :

L'étude porte sur des alliages U-Pu du domaine de la solution solide uranium alpha et du

L'étude porte sur des alliages U-Pu du domaine de la solution solide uranium alpha et du domaine biphasé uranium + phase zeta. Les résultats obtenus concernent en premier lieu l'influence de l'addition de plutanium sur les propriétés physiques de l'uranium (changement des paramètres cristallins, densité, dureté) dans le domaine de la solution solide uranium alpha. Compte tenu des divergences entre les différents résultats publiés en ce qui concerne le diagramme d'équilibre du système U-Pu, on a essayé ensuite de vérifier l'étendue des diffé-rents domaines du diagramme des phases, en particulier du domaine biphasé zeta + uranium alpha. Les examens par micrographie et par diffraction des rayons X des échantillons après différents traitements thermiques (notamment tremps à partir de la phase epsilon et recuits prolongés, ainsi qu'un refroidissement lent étogé à partir de la phase epsilon) confirment les résultats obtenus à Los Alamos et à Harwell.

72 poges

1943

CEA 2321 - PARUZ H.

STUDY OF URANIUM-PLUTONIUM ALLOYS CONTAINING FROM & TO 20 PER CENT OF PLUTONIUM (1963).

Same

The work is carried out on U-Pu alloys in the region of the solid solution uranium alpha and in the two-phase region uranium alpha + the zeta phase. The results obtained concern mainly the influence of the addition of plutanium on the physical properties of the uranium (changes in the crystalline parameters, the density, the hardness) in the region of solid solution uranium alpha. In view of the discrepancies between various published results as far as the equilibrium diagram for the system U-Pu is concerned, an attempt was made to verify the extent of the different regions of the phase diagram, in particular the two-phased region. Examinations carried out on somples after various thermal treatments (in particular guenching from the epsilon phase and prolonged anneolings, as well as a slow cooling from the epsilon phase) confirm the results abtained at Los Alamas and Harwell.

72 pooes

1963

PREMIER MINISTRE COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

ETUDE DES ALLIAGES URANIUM-PLUTONIUM AUX CONCENTRATIONS COMPRISES ENTRE O ET 20 «) DE PLUTONIUM

par

Hanoch PARUZ

Rapport C.E.A. nº 2321

CENTRE D'ÉTUDES NUCLÉAIRES DE FONTENAY-AUX-ROSES

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR-INGÉNIEUR

PAR

Hanoch PARUZ

PREMIÈRE THÈSE

Etude des alliages uranium-plutonium aux concentrations comprises entre 0 et 20 % de plutonium

DEUXIÈME THÈSE

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 30 Mai 1963 devant la Commission d'examen

MM. CHAUDRON Président

Examinateurs

A la mémoire de mes parents, de ma soeur et de mes frères.

•



AVANT-PROPOS

Cette thèse a été préparée au laboratoire de la Section de Métallurgie du Plutonium au C. E. N de Fontenay-aux-Roses.

Je tiens à remercier très vivement Monsieur le Professeur P. Lacombe de l'intérêt qu'il a porté à ce travail qu'il a dirigé et de ses précieux conseils qui m'ont permis de l'orienter favorablement.

Qu'il me soit permis de remercier très sincèrement Monsieur le Professeur G. Chaudron, Membre de l'Institut, de l'intérêt qu'il a bien voulu me témoigner en acceptant de présider le jury de thèse.

Je suis heureux d'exprimer toute ma gratitude à Monsieur F. Sebilleau, Chef du Service des Eléments Combustibles au Plutonium et d'Etudes Radiométallurgiques, pour son intérêt soutenu et ses précieux conseils et encouragements.

Que Monsieur A. Robillard, qui a guidé, il y a quelques années, mes premiers pas dans les différentes techniques de la métallurgie du plutonium, trouve ici l'expression de ma sincère reconnaissance.

Mes remerciements vont également à tous mes collègues, en particulier à MM. R. Boucher et F. Anselin, qui m'ont fait bénéficier de leur aide et de leur expérience, ainsi qu'à tout le personnel du laboratoire.

Je remercie enfin le Commissariat à l'Energie Atomique de m'avoir accueilli et permis de travailler dans ses laboratoires.

INTRODUCTION

1 - Importance des alliages uranium-plutonium.

La production d'énergie nucléaire basée uniquement sur la combustion de l'uranium-235, qui ne constitue qu'une fraction minime de l'uranium naturel, conduirait à une limitation importante de nos ressources énergétiques.

Un accroissement de ces ressources dans de grandes proportions (plus de cinquante fois [1]) est fourni par la possibilité d'utiliser l'uranium-238 contenu dans l'uranium naturel dans la proportion de 99,3%. Bien que l'uranium-238 ne soit pas susceptible d'entretenir une réaction en chaîne et ne soit donc pas un combustible nucléaire au sens propre du mot, il sert de matière première pour l'obtention d'un combustible artificiel : le plutonium.

Les deux conceptions principales d'utilisation du plutonium en tant que combustible nucléaire sont les suivantes :

a) recyclage du plutonium dans les réacteurs à neutrons thermiques, le plutonium servant d'enrichissement ou de combustible d'appoint, à côté de l'uranium naturel,

b) alimentation des réacteurs surgénérateurs à neutrons rapides.

Le plutonium non allié n'est pas directement utilisable dans les réacteurs de puissance à cause de certaines de ses propriétés :

- les discontinuités de dilatation thermique (résultant de cinq transformations allotropiques à l'état solide) et les coefficients de dilatation élevés, parfois négatifs, de certaines phases sont défavorables à la stabilité dimensionnelle ;

- le point de fusion relativement bas (640°C) et la conductibilité thermique faible (0,02 cal/cm. sec. °C à la température ambiante 2) limitent la possibilité d'atteindre une puissance spécifique élevée ,

- l'utilisation de plutonium pur, composé en majeure partie de l'isotope 239 fissile, conduirait dans le cas d'un réacteur thermique à un combustible très concentré en matière fissile, qui devrait pour des raisons de transparence aux neutrons avoir des formes et des dimensions impossibles à réaliser (plaques très minces, aiguilles très fines).

Pour surmonter les difficultés présentées par ces propriétés indésirables du plutonium, en particulier l'allotropie, on peut recourir aux alliages. La dilution du plutonium aide en même temps à résoudre le problème de transfert de chaleur.

Parmi tous les alliages de plutonium, l'importance des alliages uranium-plutonium est bien évidente : l'uranium utilisé comme diluant du plutonium possède en effet d'excellentes caractéristiques nucléaires ; c'est de plus un matériau fertile.

Pour un coeur homogène de réacteur thermique seules les teneurs jusqu'à 2% de plutonium⁽¹⁾ dans l'uranium sont intéressantes. Pour un combustible destiné à un réacteur rapide, on envisage des teneurs de 10 à 20% de plutonium [3].

⁻⁻⁻⁻⁻

⁽¹⁾ A cause des poids atomiques très voisins de l'uranium et du plutonium, la différence entre la teneur en poids et la teneur en atomes est, pour les alliages U-Pu, insignifiante. C'est pourquoi dans notre exposé la concentration des alliages étudiés est indiquée le plus souvent par le pourcentage de plutonium sans indication spéciale.

Ainsi, à part l'importance fondamentale du système U-Pu, l'intérêt technologique se porte essentiellement sur les alliages avant une forte teneur en uranium. C'est pourquoi nous avons entrepris l'étude des alliages uranium-plutonium aux concentrations comprises entre 0 et 20 % de plutonium. Ces alliages peuvent servir de base aux études de fabrication d'alliages combustibles destinés aux réacteurs rapides, comme par exemple l'alliage U-Pu-Mo (Rapsodie [4]) ou l'alliage U-Pu-fissium (EBR II [5]), ainsi qu'aux réacteurs thermiques (recyclage du plutonium, éléments d'enrichissement homogène).

2 - Le diagramme des phases du côté riche en uranium.

Le diagramme de phases du système U-Pu a été présenté à la Conférence de Genève de1958 dans trois communications différentes par Bochvar [6], Coffinherry [7] et Waldron [8]. Seuls Ellinger, Elliott et Cramer [9] en publiant le diagramme américain en 1959 ont donné une description détaillée de leurs travaux.

Les résultats anglais (figure 1) sont très voisins des résultats américains (figure 2), la seule différence importante portant sur l'inclinaison de la limite des domaines η et $\eta + I_{\beta}$.

L'aspect général du diagramme russe (figure 3) est essentiellement le même, mais les limites des domaines de phases sont en revanche souvent très différentes, ainsi que les températures des paliers invariants.

En ce qui concerne le côté riche en uranium, les principales différences entre le diagramme américain (et anglais) et le diagramme russe sont les suivantes :

A - D'après les résultats russes, les solubilités du plutonium dans les phases alpha et beta de l'uranium sont plus élevées.

Solubilité du plutonium dans l'uranium alpha :

	Ellinger	Bochvar
à la température ambiante	12 %	17 %
solubilité maximale	15 %	18, 5 %

Solubilité du plutonium dans l'uranium beta :

	Ellinger	Bochvar
solubilité maximale	20 %	33 🐔

B - Le domaine d'existence de la solution solide zeta est nettement plus étendu dans le diagramme russe, les limites du domaine étant :

	Ellinger	Bochvar
à la température ambiante	34 à 69 % Pu	20 à 75 % Pu

Il existe, de plus, des divergences d'ordre cristallographique entre les deux groupes de résultats. Les anglo-saxons décrivent la phase zeta comme cubique (58 atomes par maille) :

Ellinger : a = 10,692 Å pour 65 % Pu, diminuant à a = 10,651 Å pour 30 % Pu

Waldron : a = 10,65 ± 0,01 Å pour 65 % Pu, diminuant à a = 10,60 ± 0,02 Å pour 30 % Pu

tandis que les russes la considèrent comme quadratique (56 atomes par maille) :

Bochvar : a = 10,73 Å, b = 10,44 Å pour 80 % Pu.

Les propriétés de la solution solide zeta, phase très fragile ayant une tendance à la fissuration, à la désintégration en poudre et à l'inflammation spontanée, ont été indiquées par Kelman [10].

Quelques propriétés de la solution solide du plutonium dans l'uranium alpha ont été décrites par des chercheurs d'Argonne [10], [11], [12], ainsi que par Konobeevsky [13] et Critchley [14]. Les mesures des paramètres cristallins effectuées par Konobeevsky indiquent que l'addition de plutonium aurait le même effet sur l'uranium qu'une augmentation de la température, c'est-à-dire une augmentation des paramètres a_o et c_o et une diminution du paramètre b_o . Biver (cité par Chiswick et col. [12]) constate également que le paramètre b_o paraît diminuer avec la teneur en plutonium, bien qu'il avoue avoir trouvé quelques contradictions pour les faibles teneurs en plutonium et que son étude ne soit pas encore terminée.

3 - But de l'étude.

Dans le présent travail nous nous sommes proposés :

a) d'étudier l'influence de l'addition de plutonium sur les propriétés p-ysiques de l'uranium (dureté, densité, paramètres cristallins) dans le domaine de la solution solide uranium alpha

b) de vérifier l'étendue des différents domaines du diagramme des phases, en particulier du domaine biphasé zeta + uranium alpha.

Notre exposé sera donc divisé en trois parties principales :

Chapitre I - Exposé des méthodes expérimentales.

Chapitre II - Etude de la solution solide uranium alpha.

Chapitre III - Etude du domaine biphasé (zeta + uranium alpha).

CHAPITRE I

EXPOSÉ DES MÉTHODES EXPÉRIMENTALES

1 - Matériaux et élaboration des alliages.

Les alliages ont été élaborés à partir d'uranium électrolytique de haute pureté, préparé au C.E.A. suivant le procédé d'électrolyse de sels fondus [15], refondu sous vide au four à résistance [16], et de plutonium dont la pureté était voisine de 99,9% en poids. La composition type (en ppm) de ces deux métaux est présentée dans le tableau 1.

Tableau 1

	<u>Uranium</u> [16]					Plutonium	1		
Ag	< 0,5	Mn	<	4	Ag		5	Pb		80
AĨ	< 50	Na		5	Al	<	30	Sb	<	5
В	0,15	Ni		4	В	<	0, 1	Si	<	30
Be	0,2	Р	4	50	Ca		30	Sn	<	5
Cd	0,5	РЬ	<	5	Cr		30	Zn	<	50
Co	70	Si		60	Cu		70			
Cr	≼ 4	Мо		80	Fe		100			
Cu	< 10	С		30±10	Mg		80			
Fe	< 10	н		1,7±0,5	Mn		25			
ĸ	< 20	0	<	30	Na	<	50			
Li	< 2	N		2±1	Ni		150			
Mg	50				Р	<	100			

La composition (en ppm) de l'uranium utilisé a été vérifiée uniquement pour le barreau qui a servi ultérieurement à l'élaboration des échantillons destinés aux mesures des paramètres cristallins (tableau 2).

Tableau 2

Ag	A1	В	Ca	Cr	Cu	Fe	Mg	Mn	Ni	Pb	Sb	Si	Sn	Zn	С
< 1	< 20	10	< 100	< 5	30	€ 20	≼ 50	5	< 5	< 10	< 5	≼ 30	< 5	≨ 50	27±2

Tous les alliages ont été élaborés au four à arc sur une sole de cuivre refroidie à l'eau et avec une électrode de tungstène, sous atmosphère d'argon purifié (pression 450 mm Hg). Avant fusion les charges ont été décapées par voie électrolytique pour éviter l'introduction d'oxyde dans les alliages. Pour chaque alliage on a procédé à plusieurs fusions successives en retournant le bouton quatre à six fois pour obtenir une meilleure homogénéisation.

Les échantillons destinés aux mesures de paramètres cristallins ont été préparés directement à partir des "boutons" de four à arc. Pour les autres échantillons de la solution solide uranium alpha (chapitre II) on a coulé les "boutons" de four à arc sous forme de barreaux cylindriques de 5 mm de diamètre et 25 mm de longueur. La coulée à été effectuée dans le four à arc lui-même. Dans ce but, la sole du four possède une alvéole cylindrique dans laquelle est placée une lingotière en cuivre. Le "bouton" est disposé dans l'entonnoir situé à la partie supérieure puis fondu à l'arc et coulé par élévation rapide de l'intensité du courant [17]. Une partie du barreau, de longueur de 5 mm, a été utilisé pour les études micrographiques, l'autre, de longueur de 20 mm, a été réservée aux essais dilatométriques.

Les échantillons à 15, 17,5 et 20 % de plutonium (chapitre III) ont été préparés directement à partir des "boutons" de four à arc par tronçonnage en deux parties.

Les deux métaux ont été pesés pour chaque alliage avec une précision de 0,0001 g. Les pertes de poids à la fusion et à la coulée ayant été insignifiantes, les compositions nominales ont été prises comme valeurs vraies.

2 - Traitements thermiques.

a) Solution solide uranium alpha

Tous les traitements thermiques ont été effectués sous un vide dynamique secondaire de l'ordre de 10⁻⁶ mm Hg.

Les alliages utilisés pour les études micrographiques ont été homogénéisés pendant 15 heures à 900°C, trempés à l'huile et revenus 2 heures à 400°C.

Les alliages destinés aux mesures de paramètres cristallins ont été homogénéisés pendant 100 heures à 800°C, trempés à l'huile et revenus 2 heures à 400°C. La durée du recuit d'homogénéisation a été fixée a une valeur très supérieure à celle qu'indiquent les auteurs anglais et américains de façon à être certain que l'état d'équilibre était atteint. Il était d'autre part impossible d'homogénéiser les alliages par écrouissage, le laboratoire ne disposant pas de laminoir en boîte à gants. Dans le cas d'uranium pur, et pour obtenir une structure à grains fins, l'échantillon a été recuit 2 heures à 700°C (phase beta), trempé à l'huile et revenu également 2 heures à 400°C.

Les alliages réservés aux essais dilatométriques ont été homogénéisés pendant 15 heures à 900°C et refroidis dans le four.

b) Domaine biphasé uranium alpha + phase zeta

Tous les traitements thermiques d'homogénéisation en phase epsilon (uranium gamma), de trempe à l'huile, de refroidissement étagé et les revenus de courte durée (2 heures à 400°C) ont été effectués sous un vide dynamique secondaire de l'ordre de 10⁻⁴ mm Hg.

Les recuits de longue durée (de 25 jusqu'à 1600 heures à 400°C) ont été effectués sur des échantillons enveloppés dans des feuilles minces de tantale et encapsulés, evec un "getter" en zirconium, dans des capsules en pyrex scellées sous atmosphère d'argon purifié.

3 - Examen micrographique.

Toutes les préparations pour l'examen micrographique ont été effectuées dans les boîtes à gants contenant une atmosphère d'air [18].

On a utilisé des techniques classiques c'est-à-dire : polissage mécanique et électrolytique, attaque électrolytique, usage de la lumière naturelle et polarisée.

Le polissage mécanique des échantillons enrobés a été effectué sous huile, d'abord sur papier, puis sur diamant jusqu'au quart de micron.

a) Conditions pour la solution solide uranium alpha :

Polissage électrolytique dans le bain suivant [19] :

acide orthophosphorique (D 1,71 - 60°Bé)	100	ml
acide pyrophosphorique solidifié	40	g
anhydride chromique	2	g
eau distillée	50	ml
éthanol	75	ml

Tension 5 Volts, durée 30-60 sec, cathode en acier inoxydable.

Attaque électrolytique dans le bain suivant [20] :

acide citrique	2 g
acide nitrique (D 1, 33 - 36° Bé)	10 ml
eau distillée	90 ml

Densité du courant 15 mA/cm², durée 20 sec, cathode en acier inoxydable.

b) Conditions pour le domaine biphasé uranium alpha + phase zeta :

Attaque électrolytique dans le bain suivant [9]:

acide tetraphosphorique	7	ml
2-ethoxyethanol	57	ml
eau distillée	36	ml

Densité du courant 100-200 mA/cm², durée 20 sec, cathode en acier inoxydable.

4 - Mesures des paramètres du réseau cristallin.

Les paramètres du réseau cristallin ont été mesurés sur des échantillons massifs, à l'aide d'un diffractomètre à grand angle (Norelco) à compteur Geiger-Müller, en utilisant le rayonnement Cu K_a filtré (λ Cu K_{al} = 1,54051 Å).

Le diffractomètre utilisé est un appareil standard sans modifications. Les échantillons actifs contenant du plutonium sont enfermés dans un porte-échantillon étanche fermé par une fenêtre en Mylar d'épaisseur 60^a. Par construction, la surface de l'échantillon passe par l'axe de rotation du goniomètre [21].

Une précision plus élevée dans les mesures des paramètres cristallins aurait pu être obtenue par exemple en utilisant le rayonnement K_s du fer. On a estimé toutefois que pour la simple comparaison des différents alliages, la précision atteinte était tout à fait suffisante. On n'a pris en considération qu'une vingtaine de raies, de mêmes indices pour tous les alliages, mais dont la résolution était très nette.

5 - Identification des phases.

Pour identifier les différentes phases on a utilisé une chambre à focalisation asymétrique (montage Seeman-Bohlin) par réflexion avec le rayonnement monochromatique du chrome) et la technique des porte-échantillons étanches [21].

Les phases identifiées sont : la solution solide uranium alpha, la solution solide uranium beta et la phase zeta.

Une réglette préparée d'avance et comportant pour chacune de ces phases la position des raies recherchées (figure 4) a facilité beaucoup notre tâche. Elle a été calculée à partir des données suivantes :

a) Solution solide uranium alpha

La position des raies sur le diagramme obtenu avec le rayonnement du chrome a été calculée (tableau 3) d'après le diagramme obtenu au diffractomètre à compteur avec le rayonnement du cuivre pour un alliage U-Pu à 15 % de Pu.

On a :

$$\frac{\sin \vartheta_{cr}}{\sin \vartheta_{cu}} = \frac{\lambda_{cr}}{\lambda_{cu}}$$

hkl	⁹ cukal	sin ϑ_{Cusal}	sin G _{CrK a}	Crka	4 Crka
020	15,24	0,26275	0,39052	22, 98	91, 92
110	17,425	0,299457	0,44508	26,43	105, 72
021	17,765	0,305114	0,45349	26, 97	107,88
002	18,07	0,310179	0,46102	27,45	109, 80
111	19,70	0,337095	0,50102	30,07	120, 28
022	24,00	0,40674	0, 604 54	37,20	148, 80
112	25, 545	0,431223	0,64093	39, 87	159,48
130	28, 525	0,477542	0,70977	45,22	180, 88
131	30,12	0,501813	0,74584	48,23	192, 92
040	31,715	0,52572	0,78138	51,38	205, 52
023	32, 315	0,53460	0,79458	52,62	210,48
200	32, 555	0,538109	0,79978	53, 12	212,48
041	33,23	0, 548001	0,81449	54, 53	218, 12
113	33, 59	0,553246	0,82229	55, 32	221, 28
132	34,69	0,569136	0,84591	57,77	231,08
220	36,9	0,60042	0, 89240	63, 18	252,72
042	37,605	0,610214	0, 90696	65,08	260, 32
221,004,202	38,215-38,32	0,61864-0,62001	0,91948-0,92152	66,85-67,15	267, 4-268, 6

Raies de diffraction de la solution solide uranium alpha, contenant 15 % de Pu, à la température ambiante, calculées pour le rayonnement K_a du chrome

b) Solution solide uranium beta

On a calculé la position des raies pour les différents plans (hkl) (tableau 4) à partir des paramètres de la maille élémentaire quadratique :

publiés par Ellinger [9] pour l'uranium beta à la température ambiante contenant 15 % de Pu et en utilisant l'équation :

$$\sin^2 \theta = \frac{\lambda^2}{4a^2} \left[h^2 + k^2 + \left(\frac{a}{c}\right)^2 1^2 \right]$$

et $\lambda = 2,29$ Å (rayonnement K_a du chrome).

c) Phase zeta

Comme dans le cas précédent on a calculé la position des raies appartenant aux différents plans (hkl) (tableau 5) à partir du paramètre :

$$a = 10,651$$
 Å

publié par Ellinger [9] pour la phase zeta contenant 30 % de Pu et en utilisant l'équation :

$$\sin^2 = \frac{\lambda^2}{4 a^2} (h^2 + k^2 + 1^2)$$

et $\lambda = 2,29$ Å (rayonnement K_e du chrome).

hkl	sin ² ∜ _{cr#a}	^Э сек _а	4 . Cr Ka
301	0, 146487	22, 41	89, 64
320	0, 151346	22, 89	91, 56
311	0, 158129	23, 43	93, 72
002	0, 166835	24,11	96,44
400	0, 186272	25, 57	102, 28
112	0, 190119	25, 85	103, 40
410	0, 197914	26,415	105,66
330	0,209556	27,25	109, 00
202	0,213403	27, 515	110,06
212	0,225045	28,315	113,26
411	0, 239623	29, 31	117, 24
331	0,251265	30,09	120,36
222	0, 25997 1	30,655	122,62
312	0, 283255	32, 155	128, 62
322	0, 318181	34,33	137,32
431, 501	0,332759	35, 23	140, 92
520	0,337618	35, 525	142, 10
511	0, 344401	35, 935	143, 74
402	0,353107	36,46	145,84
432, 502	0,457885	42, 58	170, 32
223	0,468514	43, 195	172,78
512	0,469527	43,25	173,00
611	0,472463	43, 425	173, 70
540	0,477322	43,70	174,80
303	0,480156	43,865	175,46
522	0, 504453	45,26	181,04
621	0, 507389	45, 425	181, 70
541	0, 519031	46,09	184,36
532	0, 562663	48,60	194,40
631	0, 565599	48,77	195, 08
413	0, 573292	49, 22	196,88
333	0, 584934	49, 89	199, 56
602	0, 585947	49,945	199, 78
612	0, 597589	50,63	202, 52
720	0,617026	51,765	207,06
551,711	0,623809	52, 17	208, 68
622	0,632515	52,68	210,72
542	0,644157	53, 38	213, 52
641	0,647093	53, 55	214,20
004	0,667338	54,775	219, 10
730	0,675236	55,26	221,04
314	0,783758	62, 29	249, 16
820	0,791656	62,84	251,36
013	0,000132	03,87	400,40 072 04
414	U, 003232	00,40	613,04 200 02
002	U, 911923	14,13	230, 32
194,812	0, 343303	13,33	290, 00 206 12
103	0, 34 3030	70,00	300, 14
400,110	0,531410	70,10	316,90
046	U, 200491	10, 24	312,30

Raies de diffraction de la solution solide uranium beta, contenant 15 % de Pu, à la température ambiante, calculées pour le rayonnement K_a du chrome.

Raies de diffraction de la solution solide zeta, contenant 30 % de Pu, à la température ambiante, calculées pour le rayonnement K_s du chrome.

hkl	sin ² 9 _{crss}	8 cr×a	4 Scen
222	0, 1387	21, 87	87,48
320	0, 1503	22,80	91, 20
321	0, 1618	23,72	94, 88
400	0, 1850	25,47	101, 88
410,322	0, 1965	26,32	105, 28
411,330	0, 2081	27,15	108,60
331	0,2196	27,95	111,80
420	0,2312	28,75	115,00
421	0,2428	29, 52 20, 20	118,08
332	0,2343	30,20	121,12
4 <i>66</i> 500 4 30	0,2114	32 52	130 08
510 431	0,2050	33, 25	133 00
511.333	0.3121	33, 62	134.48
520, 432	0,3352	35, 38	141.52
521	0, 3468	36,08	144, 32
440	0, 3699	37,47	149, 88
522,441	0, 3815	38, 15	152,60
530, 433	0, 3930	38, 82	155, 28
531	0,4046	39, 50	158,00
600, 442	0, 4162	40, 17	160, 68
610	0,4277	40,85	163,40
611, 532 200	0,4393	41,52	166,08
620 691 F40 440	U, 4624	42,85	171,40
021, 34 0, 443	0,4/40	43,36	1 (4, Uð 176 69
04 I 592	V, 4033	44,11	170,00
622	0,7811	45 50	182 00
630 542	0 5202	46 17	184 68
631	0, 5318	46,82	187.28
444	0, 5549	48, 15	192.60
700, 632	0, 5664	48, 82	195, 28
710, 550, 543	0, 5780	49,4B	197, 92
711, 551	0, 5896	50,15	200, 60
640	0,6011	50, 83	203, 32
720, 641	0, 6127	51, 50	206, 00
721, 633, 552	0, 6242	52,20	208, 80
64Z	0, 5474	53, 57	214,28
722, 544	U, 6589	54,27	217,08
13U 721 559	V, 0/V3	04,31	413,00 222 ED
(31, 333 650 643	0,0020	57 12	222,00 228 AR
732,651	0.7167	57, 85	231.40
800	0. 7398	59, 33	237, 32
810, 740, 652	0, 7514	60,08	240, 32
811, 741, 554	0,7630	60, 87	243, 48
733	0,7745	61, 65	246, 60
820, 644	0,7861	62,45	249, 80
821, 742	0, 7976	63, 27	253,08
653	0, 8092	64, 10	256,40
822, 660	0, 8323	65, 83	263, 32
830, 661	0,8439	66,72	266, 88
831, 750, 743	0,8554	67,65	270,60
751	0,8670	68,62	474,40
602 832	U, 8786	09,60	418,40
0J <i>4</i> 654	0,0301	70,00	404, DU 286 02
752	0,5017	79 87	200, <i>32</i> 901 AQ
840	0 9248	74 10	296 40
010	V, 3470	(7,10	690, W

6 - Dilatométrie.

On a utilisé un dilatomètre du type Chèvenard qui fonctionne sous un vide de 2 à 5.10^{-6} mm de morcure pour éviter l'oxydation des alliages. Les courbes dilatométriques ont été enregistrées avec une tête VHS (de coefficient d'amplification $K_1 = 310$ et $K_2 = 300$) et un étalon de pyros de longueur 20 mm. Vitesse de chauffe employée : $100^{\circ}C$ /heure.

7 - Mesures de densité.

Les densités des alliages bruts de coulée ont été déterminées par la méthode de poussée hydrostatique dans le bromobenzène avec une erreur absolue égale à \pm 0,02 g/cm³.

8 - Mesures de dureté.

La dureté Vickers a été mesurée à l'aide de l'appareil Testwell (Dia Testor 2 R) en utilisant un diamant à 136° sous une charge de 10 kg.

9 - Conditions de travail avec des alliages de plutonium.

Le plutonium étant un élément radioactif alpha, hautement toxique, la manipulation de ce métal exige que des précautions extrêmes soient prises afin d'éviter la formation et l'inhalation de particules fines. La dose maximale permise dans le corps humain est de l'ordre de 0,6 microgrammes. Les difficultés se trouvent accrues par les propriétés chimiques du plutonium, notamment à cause de sa grande affinité pour l'oxygène. Il s'oxyde rapidement dans l'air, en particulier en présence d'humidité, formant des oxydes pulvérulents, ce qui provoque la dispersion de particules fines dans l'atmosphère. Le plutonium en forme divisée est pyrophorique et son inflammation spontanée peut causer une contamination sérieuse de l'entourage.

Les alliages uranium-plutonium contenant au moins 20 % de plutonium sont encore plus difficiles à manipuler que le plutonium pur à cause de leur tendance à la désintégration en poudre et de la pyrophoricité dans certaines conditions. Cette propriété n'a pas été encore expliquee. Elle peut être attribuée à la présence de la phase fragile zeta.

Notre expérience a montré qu'un alliage à 20 % de plutonium, élaboré au four à arc et stocké dans l'air, s'est désintégré entièrement au bout d'une quinzaine de jours. Un autre échantillon, enrobé dans l'araldite pour faciliter le polissage, s'est désintégré au bout de quelques mois. Un autre échantillon de ce même alliage, recuit sous vide secondaire à 850°C pendant 100 heures et refroidi dans le four, s'est rompu immédiatement en petits morceaux et est tombé en poudre. Un troisième alliage, conservé dans air dans un tube fermé, s'est désintégré lui aussi en poudre. Quand on a ouvert le tube, la poudre s'est enflammée spontanément, ce qui suggère qu'elle est peut-être composée de sous oxydes. Kelman [10] a signalé que les alliages uranium-plutonium élaborés au laboratoire d'Argonne, contenant plus de 15 % de plutonium, se sont désintégrés, même en étant conservés dans une atmosphère d'hélium.

Afin d'éviter la contamination des expérimentateurs, toutes les opérations sur le plutonium et ses alliages sont faites dans des boîtes à gants étanches, très bien ventilées, à l'intérieur desquelles on maintient en permanence une pression légèrement négative par rapport à la pression atmosphérique. Les techniques de travail dans les boîtes à gants sont décrites dans plusieurs publications [29], [30]. Un des aspects importants de ces techniques est la lenteur qu'elles introduisent dans toute expérience : on doit compter pour une opération en boîte à gants une durée double ou triple de l'opération faite dans les conditions habituelles.

2

CHAPITRE II

ÉTUDE DE LA SOLUTION SOLIDE DU PLUTONIUM DANS L'URANIUM ALPHA

En vue d'étudier l'influence de l'addition du plutonium sur les propriétés physiques de l'uranium, on a examiné une série d'alliages binaires U-Pu du domaine de la solution solide uranium alpha. Les résultats présentés dans ce chapitre concernent la densité, l'aspect micrographique, la dilatation thermique, les paramètres du réseau cristallin, la dureté, les observations sur l'élaboration et sur la résistance à la corrosion.

1 - Densité.

La densité des différents alliages de la solution solide du plutonium dans l'uranium alpha, bruts de coulée, mesurée à 25°C, est présentée dans le tableau 6. On y a reporté également la densité théorique, calculée d'après les données cristallines (paragraphe 4 de ce chapitre).

Teneur en Pu % en poids	Densité en gr/cm³ à 25℃ (pesée hydrostatique)	Densité en gr/cm³ à la température ambiante (Rayons X)
0	19,04	19, 02
1	18, 92	
2	18,97	
3	18, 95	
4	18, 95	
5	18, 95	19,00
10	18, 95	18, 99
(15)	(18, 93)	(18, 97)

Tableau 6

Les résultats sont comparables à ceux de Kittel et Kelman [11] et de Critchley [14].

2 - Aspect micrographique.

On a examiné des échantillons contenant 1, 2, 3, 4, 5 et 10 % de plutonium en poids. L'aspect micrographique de ces alliages est tout à fait comparable à celui de l'uranium pur. L'examen en lumière polarisée après polissage électrolytique des alliages bruts de coulée révèle des grains et des sous grains identiques à ceux de l'uranium alpha brut de coulée : très déchiquetés et comportant des mâcles thermiques (planche 1). En lumière ordinaire on est en présence d'une phase homogène et comme dans le cas de l'uranium non allié on y trouve des inclusions provenant de la précipitation des différentes impuretés. On peut distinguer deux sortes de précipités affectant parfois une forme dendritique. Un de ces précipités, après polissage électrolytique, a une couleur grisclair, l'autre, une couleur brun sombre. La forme dendritique n'apparaît pas dans le "bouton" élaboré au four à arc, mais elle apparaît dans le lingot coulé à partir de ce "bouton" (planche 2). Cette forme dendritique disparaît après une homogénéisation à haute température pour donner un aspect plus compact (coalescence) (planche 3). On a tenté de vérifier la nature de ces inclusions à l'aide du microanalyseur à sonde électronique (sonde de Castaing). On a choisi pour ce but un alliage contenant 4 % de plutonium. Les résultats de cet examer sont présentés dans le tableau 7.

Та	ե1	eau	7
		~~~~	

	Teneur en U % (pond.)	Teneur en Pu % (pond.)	Pemarques
Fond	96	4	
Précipité gris	73 à 76	5 <b>à 6</b>	On n'a pas décelé d'élément courant de
Précipité brun	78 à 85	3,5 à 4	numéro atomiqu <b>e su-</b> périeur ou ég <b>al à 20</b>

Ces résultats ne permettent pas d'identifier les inclusions avec certitude. Compte tenu de la teneur en U et en Pu on pourrait suggérer que le précipité brun est le composé  $(U, Pu)(O_2)$ .

La préparation métallographique nécessaire pour révéler ces inclusions est la même que celle qu'on utilise pour révèler les différentes inclusions non métalliques dans l'uranium non allié. Leur aspect sous le microscope est comparable à celui des inclusions dans l'uranium, identifiées par plusieurs auteurs [31], [32], [33], [34], comme étant des carbures (UC), des nitrures (UN), des composés U(C, N), des oxydes (UO) ou (UO₂). On pourrait ainsi supposer que les inclusions décelées sont des composés du type (U, Pu) (C, N, C).

L'attaque dans le bain citrique nitrique révèle, déjà à un grossissement 200, un précipité ayant la forme de plaquettes orientées, très peu abondantes sur l'ensemble de l'échantillon. Dans chaque groupe de plaquettes on distingue toujours deux directions perpendiculaires (planche 4). La longueur de ces plaquettes est de l'ordre de  $10\mu$ , l'épaisseur moyenne étant de  $1\mu$ . On n'a pas réussi à déceler ces plaquettes dans l'uranium non allié, qui a subi simultanément les mêmes traitements de fusion et de coulée au four à arc. Par contre on les a décelées dans tous les alliages U-Pu étudiés, bruts de fusion ("boutons") et bruts de coulée (lingots), dans ces derniers, les plaquettes étant plus abondantes. Ces plaquettes disparaissent totalement après un recuit sous vide. L'er amen d'une plage contenant des plaquettes par diffraction de rayons X (utilisant la réflexion asymétrique du rayonnement K_a du chrome dans une chambre focalisante de type Seeman-Bohlin) n'a révélé aucune trace d'une phase autre que la solution solide uranium alpha, sans doute à cause de la trop petite quantité de ces plaquettes.

Anselin, Boucher, Robillard [22] ont observé des plaquettes semblables dans les alliages ternaires uranium-plutonium-molybdène, identifiées par eux comme étant l'hydrure du type Pu H₂.

L'attaque électrolytique des échantillons bruts de coulée, ainsi que des échantillons ayant subi un recuit à 900°C suivi d'une trempe à l'huile, permet la mise en évidence d'une sous-structure qui superpose son réseau à celui des joints et sous-joints de la structure actuelle alpha, sans qu'il y ait de relation apparente entre les deux structures : les joints de cette sous-structure traversent sans discontinuité les joints de grains alpha (planche 5). Il semble que l'on soit en présence d'une sous-structure analogue à celle qu'a signalée Blumenthal [20] dans l'uranium pur et interprété par Robillard, Calais et Lacombe [35] comme représentant la polygonisation de la phase  $\beta$ , par suite du passage de la transformation allotropique  $\gamma \longrightarrow \beta$ .

L'attaque électrolytique révèle aussi la présence d'un réseau polygonal de "joints blancs", exempt de précipité (planche 6), qui vraisemblablement est un vestige des joints de l'ancienne structure ; [35].

### 3 - Dilatation thermique.

Le comportement dilatométrique des alliages coulés U-Pu à faible teneur de Pu ressemble à celui de l'uranium coulé non allié (figure 5). L'addition du Pu abaisse les températures de transformations (tableau 8), ce qui est bien connu d'après le diagramme d'état (figure 6).

T	abl	ea	u	8
---	-----	----	---	---

				Teneur en plutonium en poids "						
			0		0 5		10		15	
			cycle 1	cycle 2	cycle 1	cycle 2	cycle 1	cycle 2	cycle 1	cycle 2
Température	a — 9	début	668	668	631	631	603	605	560	558
de transformation au chauffage (en °C)		fin			640	640	612	614	564	561
	3 <b>x</b>	début	774	774	758	758	745	737	717	728
	P4	fin	1		760	763	753	747	720	737

Les coefficients de dilatation thermique de l'alliage contenant 5 pds % de Pu sont les suivants :

Solution solide  $U_{\alpha} = 13. \ 10^{-6} \ /^{\circ}C$ Solution solide  $U_{\beta} = 23. \ 10^{-6} \ /^{\circ}C$ Solution solide  $U_{\gamma} = 24. \ 10^{-6} \ /^{\circ}C$ 

A cause de l'anisotropie du réseau cristallin de l'uranium  $\alpha$  orthorhombique et de l'uranium 5 quadratique, leur coefficient de dilatation thermique dépend des directions cristallographiques. D'après Konobeevsky et coll. [13] l'addition de Pu augmente encore davantage l'anisotropie de la dilatation thermique de la phase alpha. Ainsi les valeurs mesurées à l'aide d'un échantillon polycristallin dépendent du mode de fabrication, des traitements thermiques antérieurs et de la direction dans laquelle on mesure.

### 4 - Paramètres du réseau cristallin.

Les données de diffraction des différents alliages, étudiés à la température ambiante, correspondant aux raies dont la résolution était la plus nette, sont présentées dans le tableau 9.

	% Pu en poids				
	0	5	10	15	
P41		2	9	- <b>1</b>	
110	34, 89	34, 98	34, 93	34, 85	
021	35, 51	35, 57	35, 59	35, 53	
002	36, 21	36,27	36,21	36, 14	
111	39,46	39,53	39, 50	39,40	
112	51, 22	51,21	51, 13	51,09	
130	57,01	57,06	57,03	57,05	
131	60,25	60, 30	60, 28	60, 24	
200	65,33	65, 31	65, 20	65, 11	
041	66, 32		66,44	66,46	
113	67, 30	67,33	67, 27	67, 18	
132	69,47	69,48	69,46	69,38	
042	75, 19	75,26	75, 26	75,21	
133	83, 69	83,73	83,67	83, 62	
114	87, 26	87,26	87, 17	87,07	
150	90, 38	90,47	90,43	90,42	
223	98, 86	98, 78	98, 76	98, 57	
152	101,45	101,47	101, 52	101, 55	
312	122, 59	122, 33	122, 21	121, 93	
243	124, 55	124, 54	124,43	124, 33	
	-,	· ·	-	1	

Tableau 9

Pour une symétrie cristalline orthorhombique, les méthodes existantes d'extrapolation (graphiques et analytiques) en vue d'éliminer les principales erreurs systématiques et accidentelles deviennent plus difficiles à employer. On a choisi la méthode analytique d'extrapolation de Cohen [36] [37], basée sur la méthode des moindres carrés, la fonction d'extrapolation étant cos  $\oplus$  cotg  $\oplus$ . On a préféré cette fonction parmi les autres possibles, parce qu'elle s'est révélée la mieux adaptée à la correction des erreurs dues à l'imprécision sur la position de l'échantillon par rapport au cercle de focalisation.

Les résultats sont présentés dans le tableau 10.

### Tableau 10

### Paramètres du réseau cristallin, volume de la maille élémentaire et densité calculée des alliages U-Pu en fonction de la teneur en Pu.

ő Pu	% Pu	Paramètres du réseau cristall en Å		au cristallin	Volume de la maille	Densité calculée
en poids	en atomes	a,	b	C o	en A ³	en g/cm ³
0	0	2,854	5, 872	4,959	83, 11	19,023
5	4, 98	2,859	5, 869	4,961	83, 24	18, 99 ₆
10	9, 97	2,860	5, 867	4,964	83, 29	18, 98 ₈
15	14, 95	2, 864	5, 863	4,967	83,40	18,96,

Pour avoir une idée de la précision de la méthode choisie, on a comparé les valeurs obtenues pour l'uranium pur avec les valeurs publiées par d'autres auteurs, comme le montre le tableau 11.

On a porté les données du tableau 10 dans les figures 7 et 8.

Les résultats obtenus s'approchent très nettement de ceux de Konobeevsky et coll. [13]. Les courbes de variation des différents paramètres cristallins en fonction de la teneur en plutonium ont la même allure que celles de la variation de ces mêmes paramètres en fonction de la température.

Les résultats décrits dans ce paragraphe et publiés en 1962 [38] se trouvent confirmés dans une publication récente de Berndt [39], qui a adopté une méthode très soignée de mesure des paramètres cristallins des alliages U-Pu, élaborés sous forme d'aiguilles minces et en se servant d'une chambre à chambre à diffraction Debye-Sherrer.

Il est intéressant de comparer à la loi de Vegard la variation des rayons atomiques moyens de ces alliages en fonction de la teneur en soluté. On a pris comme rayon atomique le rayon d'une sphère dont le volume est égal au volume moyen occupé par un atome (tableau 12).

On a porté les données du tableau 12 dans la figure 9 en ajoutant à titre de comparaison :

a) la droite représentant la loi de Vegard pour la solution solide uranium-alpha-plutonium alpha

b) la même droite corrigée par la formule de Friedel [40] tenant compte de la différence de compressibilité des deux composants

c) les droites analogues à a) et b) pour la solution solide uranium alpha-plutonium beta.

Les corrections imposées par la formule de Friedel

y = c₂ (r₂ - r₁) 
$$\left(\frac{\chi_1}{\chi_2} - 1\right) / \left[\frac{(1 + \nu)\chi_1}{2(1 - 2\nu)\chi_2} + 1\right]$$

(l'indice l se rattache au solvant et l'indice 2 au soluté, c représente la concentration atomique, r le rayon atomique moyen,  $\chi$  la compressibilité et  $\nu$  le coefficient de Poisson) ont été calculées à partir des données indiquées par Laquer [41] :

Paramètres du réseau cristallin en Å				
Auteurs	â.,	b,	с,	Méthode utilisée
Jacob et Warren [23]	2, 85 ⁸⁽¹⁾	5,877 ⁽¹⁾	4,955 ⁽¹⁾	Chambre D. S. Diagramme de poudre.
Gordon [24]	2, 8540	5, 8683	4,9576	Chambre en retour symétrique. Montage focalisant.
Mueller (25)	2,8541 ±0,0003	5,8692 ± 0,0015	4,9563 ± 0,0004	
Bridge, Schwartz et Vaughan [26]	2,854 1 2,855 1 2,853 1	5,869; 5,868; 5,865;	4,954 4,957 4,957	Chambre D. S. à haute température. Diagramme de poudre.
Konobeevsky [13]	2,853	5, 366	4,955	
Chiotti, Klepfer et White [27]	2,853,	5, 864 ₈	4, 9543	Diffractomètre à haute température. Echantillon massif.
Ellinger, Elliott et Cramer [9]	2,8542 ± 0,0008	5,8667 ± 0,0002	4,9540 ± 0,0009	Chambre en retour symétrique. Montage focalisant.
Sturcken et Post [28]	2,854 ±0,001	5,869 ± 0,001	4,955 ± 0,001	Diffractomètre. Echantillon massif.
Cette étude	2, 854	5, 872	4,959	Diffractomètre. Echantillon massif.
<ul> <li>(1) Les valeurs publiée:</li> <li>a, = 2,852, b, = 5,86</li> <li>et non pas en Å, construction</li> </ul>	s par Jacob et Warr 65 et c _o = 4,945 étai omme l'indiquent po	en en 1937 : lent sans doute en ar erreur certains	unités X auteurs.	

### Paramètres du réseau cristallin de l'uranium

### Tableau 12

Teneur en Pu (%)	Volume de la maille élémentaire en Å ³	Volume par atome en Å ³	Rayon atomique moyen en Å
0	83, 11	20, 778	1, 7085
5	83, 24	20, 810	1, 7093
10	83, 29	20, 823	1, 7099
15	83,40	20, 850	1, 7104

	Uranium alpha	Plutonium alpha
Coefficient de Poisson	0,23	0, 15
Compressibilité	0, 79. 10 ⁻⁶ /bar	2, 14. 10 ⁻⁶ /bar

La compressibilité du plutonium beta a été indiquée par Shonfeld [41] :

2,3 ± 1.10⁻⁶ /bar à 200°C.

Les rayons atomiques du plutonium alpha et du plutonium beta à la température ambiante sont 1,69 et 1,74 respectivement [42].

La conclusion tirée de cette comparaison est que le plutonium dissous dans l'uranium alpha se comporte comme si ses atomes avaient le volume atomique qu'ils possèdent dans la phase beta.

### 5 - Propriétés diverses.

Les alliages U-Pu du domaine de la solution solide uranium alpha se prêtent facilement à l'élaboration au four à arc et à la coulée de petits lingots cylindriques exempts de microfissures.

Un essai de laminage croisé à chaud entre 400°C et 600°C d'un "bouton" d'alliage à 5% de Pu (le préchauffage et les recuits intermédiaires ont été effectués dans un four à atmosphère d'argon) a provoqué la formation de nombreuses fissures et la rupture de l'échantillon.

La dureté de ces alliages est un peu plus élevée que celle de l'uranium pur, comme le montre le tableau 13.

% Pu en poids	Dureté HV ₁₀	
0	213	Brut de coulée
1 2 3 5	247 239 224 238	Brut de coulée
1 5 10 (15)	242 245 232 243	Après traitement thermique ⁽¹⁾

### Tableau 13

 Homogénéisation pendant 15 h à 900°C, trempe à l'huile et revenu pendant 2 h à 400°C.

Critchley et coll. [14] ont publié des valeurs un peu plus élevées (pour des alliages bruts de coulée) :

% Pu en pds	0	3	4,5	6
Dureté HV	250	256	284	264

Contrairement aux alliages dont la teneur en plutonium est plus élevée, les alliages étudiés ne montrent pas de tendance à se transformer en poudre. Leur résistance à la corrosion dans l'air est semblable à celle de l'uranium non allié.

### 6 - Conclusion.

Les alliages uranium-plutonium dans le domaine de la solution solice uranium alpha se prétent facilement à l'élaboration et à la coulée. Leur dureté est un peu plus élevée que celle de l'uranium non allié. La densité est plus faible.

L'aspect micrographique ainsi que le comportement dilatométrique sont tout à fait comparables à ceux de l'uranium pur. La grosseur de grains n'est pas modifiée. L'addition du plutonium abaisse les températures des transformations allotropiques.

Enfin, les mesures des paramètres cristallins indiquent très nettement une augmentation des paramètres a_o et c_o et une diminution du paramètre b_o.

Ainsi nous pouvons conclure, que dans une étude consacrée à la mise au point d'un combustible nucléaire à base de la solution solide uranium alpha, il n'y a pas à prévoir de difficultés technologiques particulières autres que celles dues aux propriétés de l'uranium non allié. Bien entendu, restent les inconvénients découlant de la nécessité du travail en boltes étanches à cause de la présence du plutonium.

### CHAPITRE III

## ÉTUDE DU DOMAINE BIPHASE ZETA + URANIUM ALPHA

L'étude de ce domaine a été faite sur trois alliages différents, de teneurs 15, 17,5 et 20 % de plutonium. D'après le diagramme des phases russe (figure 3) ces alliages devraient se trouver à la température ambiante respectivement : dans le domaine monophasé de la solution solide uranium alpha, le domaine biphasé uranium alpha plus phase zeta et le domaine monophasé de la solution solide intermédiaire zeta. D'après les diagrammes des phases américain (figure 2) et anglais (figure 1) ces trois alliages devraient se trouver par rapport à l'uranium respectivement : dans le domaine hypoeutectolde, l'eutectolde et le domaine hypereutectolde uranium alpha plus phase zeta.



Figure 1 - Pu-U - Diagramme anglais.

Divers échantillors de ces alliages ont été soumis aux différents traitements thermiques, puis examinés par voie micrographique, ainsi que par diffraction des rayons X et soumis à des mesures de la dureté. Les résultats de cette étude sont présentés ci-dessous.

### 1 - Alliage uranium-plutonium à 15 % de plutonium.

a) Un échantillon de cet alliage a été homogénéisé pendant 100 heures à 850°C (dans le domaine de la phase epsilon, solution solide mutuelle continue des deux métaux constituants) et ensuite trempé à l'huile.



Figure 2 - Pu-U - Diagramme américain.



Figure 3 - Pu-U - Diagramme russe.

Le diagramme de diffraction de rayons X révèle des raies de l'uranium beta et quelques traces de la phase zeta. L'aspect micrographique après une attaque électrolytique est représenté par la figure a) de la planche 7. La dureté Vickers  $H_{v_{10}} = 275$ .

Un revenu à 400°C pendant 2 heures transforme l'uranium beta en uranium alpha, ce qui est confirmé par le diagramme de rayons X. La dureté diminue à  $H_{V10} = /240$ . L'aspect en lumière polarisée après un polissage électrolytique présente des grains d'uranium alpha (planche 8). Un examen en lumière ordinaire après une attaque électrolytique révèle la précipitation de la phase zeta (planche 8).

Un recuit prolongé de 1600 heures à la même température provoque uniquement la coalescence du précipité zeta (planche 9).

b) Un autre échantillon a été homogénéisé à 900°C pendant 65 heures, refroidi ensuite dans le four jusqu'à 650°C (domaine de la phase uranium beta), maintenu à cette température pendant 50 heures, puis refroidi dans le four jusqu'à 500°C (au-dessous de la transformation eutectoïde), puis maintenu à cette température pendant 50 heures et refroidi dans le four jusqu'à la température ambiante (figure 10).

D'après le diagramme de diffraction de rayons X on se trouve en présence de deux phases : l'uranium alpha et la phase zeta. La phase zeta, en forme classique d'amas de lamelles eutectoides perlitiques est dispersée dans la matrice constituée par l'uranium alpha proeutectoide (planches 10 et 11).

Après un recuit de 250 heures à 400°C, on constate une coalescence des lamelles zeta (planche 12). La dureté est égale à  $H_{y,10} = 245$ .

c) Un troisième échantillon a été homogénéisé à 900°C pendant 100 heures et ensuite refroidi dans le four jusqu'à la température ambiante. Comme dans le cas précédent, la phase zeta se présente sous forme de lamelles eutectoïdes dans la matrice d'uranium alpha proeutectoïde, mais ces lamelles sont plus fines et en quantité moindre (planche 13). A l'aide de la diffraction des rayons X on n'a décelé que la phase uranium alpha. Il est intéressant de remarquer sur les micrographies la structure en bandes du constituant eutectoïde, résultant de la ségrégation dans la phase uranium beta au cours de sa formation pendant le refroidissement dans le four de la phase homogène uranium gamma (plutonium epsilon).

d) Un échantillon de ce même alliage, homogénéisé à 800°C pendant 100 heures et trempé à l'huile a présenté le même aspect micrographique que l'échantillon refroidi dans le four, les lamelles de la phase zeta étant cependant encore plus fines et en quantité moindre (planche 14). On peut penser que la trempe a été moins brutale en comparaison du cas a) et que la vitesse du refroidissement a été intermédiaire entre les cas a) et c) décrits dans ce paragraphe. La diffraction des rayons X a décelé la phase uranium alpha seule, la quantité de phase zeta ayant été sans doute trop petite. La dureté  $H_{v_{10}} = 245$ .

Après un revenu de 2 heures à 400°C, le diagramme de rayons X révèle des traces de la phase zeta. L'aspect micrographique montre qu'il y a eu une certaine coalescence des lamelles de cette phase (planche 14).

e) Les résultats de différents traitements thermiques effectués sur cet alliage sont réunis dans le tableau 14.

### 2 - Alliage uranium-plutonium à 17,5% de plutonium.

a) Un échantillon de cet alliage, qui a subi les mêmes traitements thermiques et en même temps que l'échantillon du paragraphe (1 a), a donné à la diffraction de rayons X et à l'observation au microscope des résultats semblables à ceux qui sont décrits dans le paragraphe cité : à l'état brut de trempe - phase uranium beta + phase zeta ; après un revenu à 400°C - phase uranium alpha + phase zeta (planches 7 et 15). La quantité de la phase zeta étant plus grande, la dureté est plus élevée que dans le cas de l'alliage à 15% de Pu :  $H_{v_{10}} = 365$  à l'état brut de trempe,  $H_{v_{10}} = 270$  après un recuit prolongé à 400°C.

b) Un recre échantillon qui a été soumis à une homogénéisation à 900°C pendant 65 héures et à un refroidissement étagé, en même temps que l'échantillon du paragraphe (1 b) (figure 10) présente un aspect micrographique témoignant que l'on se trouve à la composition presque exacte de l'eutectoide (planches 16 et 17). Le diagramme des rayons X révèle les phases uranium alpha et zeta. Après un recuit de 240 heures à 400°C, on constate une légère coalescence des lamelles de zeta. La dureté  $H_{v_{10}}$  est égale à 320.

Tableau	14
---------	----

Traitement thermique		Aspect micrographique	Résultats par dif- fraction des rayons X	Dureté Vickers sous charge 10 kg H _{Y10}
Homogénéisation en phase epsilon et trempe à l'huile	Brut de trempe	Inclusions très fines de zeta dispersées dans la matrice uranium beta $U_{\beta}$ traces de zeta		275
	Après un reve- nu à 400°C pendant 2 heures	Précipité zeta dans la matrice U _a uranium alpha		245
	Après un re- cuit à 400°C pendant 1600 heures	Précipité zeta coa- lescé dans la matri- ce uranium alpha	Ua	235
Homogénéisation en phase epsilon et refroidissement dans le four		Lamelles eutectoides de zeta dans la ma- trice uranium-alpha. Structure en bandes.	U _a	245
Homogénéisation en phase epsilon et refroidisse- ment étagé par des recuits intermédiaires isothermes	Brut de re- froidissement jusqu'à la température ambiante	Lamelles eutectoldes formant des amas $(U_a + \zeta)$ dans la matrice de l'uranium alpha	<b>U</b> α + ζ	
	Après un re- cuit à 400°C pendant 250 heures	Coalescence des lamelles zeta dans la matrice uranium alpha		245

c) En même temps que l'échantillon du paragraphe (1 c) un troisième échantillon a été homogénéisé à 900°C pendant 130 heures et refroidi dans le four jusqu'à la température ambiante. Le diagramme de diffraction des rayons X confirme la présence de deux phases : l'uranium alpha et la phase zeta. L'aspect micro raphique est donné par les figures de la planche 13. On distingue dans la matrice constituée par la solution solide uranium alpha des flots de la phase zeta ainsi que des amas eutectoïdes.

Etant donné la complexité du diagramme des phases, il serait difficile de reconstruire la séquence exacte des transformations, souvent partielles et n'atteignant pas l'équilitre, qui aboutit à une structure donnée. On est tenté de croire que la transformation de la phase epsilon en phase uranium beta, qui se produit loin de l'état d'équilibre, entraîne la formation d'îlots de solution solide intermédiaire eta dans la matrice de la phase uranium beta. Au cours du refroidissement postérieur, c'est la phase zeta qui se forme : partiellement par la réaction péritectoide  $\eta + U_\beta \rightarrow \zeta$  et pour la plus grande part directement à partir de la phase eta. On constate sur les micrographies que les îlots de la phase zeta sont entourés d'une auréole plus claire. Il est probable que ces auréoles sont constituées par la phase zeta péritectoîde, tandis que les îlots plus foncés représentent la phase zeta qui s'est formée aux températures situées au-dessous de la réaction péritectoîde. La ségrégation dans la phase beta est à l'origine de la structure en bandes, que l'on aperçoit sur la photo.

d) Une structure semblable, comprenant des 11ots de la phase zeta entourés de zeta péritectoïde, apparaît dans un échantillon homogénéisé à 800°C pendant 100 heures et refroidi par une trempe moins brusque que celle du paragraphe (2 a), (planche 18).

Les micrographies de la même planche montrent la structure micrographique de cet échantillon après un revenu de 2 heures à 400°C. La phase zeta correspondant au péritectoil de n'étant pas stable à 400°C, on voit s'amorcer à partir des couches extérieures des ilots de zeta, la précipitation de la phase alpha.

On retrouve la même structure après un recuit de 25 heures à la même température.

e) On a réuni les résultats des différents traitements thermiques effectués sur cet alliage dans le tableau 15.

Traitement thermique		Aspect micrographique	Résultats par dif- fraction des rayons X	Dureté Vickers sous charge 10 kg H _{v10}
Homogénéisation en phase epsilon et trempe à l'huile	Brut de trempe	Inclusions fines de zeta dispersées dans la matrice uranium beta $U_{\beta} + \zeta$		365
	Après un re- cuit à 400°C	Précipité zeta dans la matrice uranium alpha	Ua + ζ	270
Homogénéisation en phase epsilon et refroidissement dans le four		Phase zeta sous for- me d'llots auréolés ainsi que des lamel- les eutectoïdes dans la matrice de l'uranium alpha. Structure en bandes.	Ua + G	260
Homogénéisation en phase epsilon et refroidisse- ment étagé par des recuits intermédiaires isothermes	Brut de re- froidissement jusqu'à la température ambiante	Eutectolde ( $U_{\alpha} + \zeta$ )	Ua + Ç	
	Après un re- cuit à 400°C pendant 250 heures	Coalescence des lamelles zeta dans la matrice uranium alpha		320

Tableau 15

### 3 - Alliage uranium-plutonium à 20% de plutonium.

a) Un échantillon a été homogénéisé pendant 100 heures à 850°C et trempé à l'huile. Le diagramme de diffraction de rayons X montre que l'on est en présence de la phase zeta. La dureté est très élevée,  $H_{v_{10}} = 380$ . L'aspect micrographique est donné par les micrographies de la planche 19. On y aperçoit le début de l'apparition de cristaux en forme d'aiguilles, vraisemblablement uranium alpha. Cette précipitation semble être déjà terminée après un revenu de 2 heures à 400°C (planche 20). La solution solide uranium alpha précipite en forme des plaquettes parallèles orientées par rapport à la phase mère zeta, produisant une structure de Widmanstätten. Le diagramme de diffraction de rayons X indique  $\zeta + U_a$ . L'aspect reste le même après 250 heures, 800 heures et 1600 heures de recuit (planche 20). La dureté après recuit est  $H_{v_{10}} = 305$ . b) Un autre échantillon, homogénéisé pendant 65 heures à 900°C, a subi un refroidissement étagé (figure 10). Le diagramme de rayons X révèle l'existence des phases zeta et uranium alpha. L'aspect micrographique est indiqué par les figures de la planche 21. On y aperçoit la phase zeta (gris foncé), la phase uranium alpha (gris clair) et l'eutectoïde (lamelles de phase zeta sur le fond d'uranium alpha).

On peut interpréter cet aspect en remarquant qu'à la température du recuit de 650°C on est en présence de la phase uranium beta (hétérogène à cause de la ségrégation au passage  $\leftarrow - U_{\beta}$ ) et de la phase eta. Le refroidissement, relativement rapide, jusqu'à 500°C provoque la transformation de la phase beta en phase alpha + eutectoïde et de la phase eta en phase zeta. On voit sur les photos que le constituant uranium alpha de l'eutectoïde est relié sans discontinuité à l'uranium alpha, libre qui l'entoure.

Après un nouveau recuit à 400°C pendant 250 heures, on constate une coalescence du constituant zeta de l'eutectoïde (planche 21). La dureté  $H_{v_{10}} = 320$ .

c) Un traitement thermique identique au traitement décrit dans le paragraphe (2 d) a produit des résultats comparables à ceux qu'on observe dans l'échantillon contenant 17,5 % de plutonium et présentés dans le paragraphe cité (planche 22). Le diagramme de diffraction de rayons X confirme la présence des phases zeta et uranium alpha. La dureté  $H_{v_{10}} = 300$ .

d) Comme pour les deux autres alliages, on a réuni les résultats des différents traitements thermiques effectués sur l'alliage à 20 % de plutonium dans le tableau 16.

Traitement thermique		Aspect micrographique	Résultats par dif- fraction des rayons X	Dureté Vickers sous charge 10 kg H _{v10}
Homogénéisation en phase epsilon et trempe à l'huile	Brut de trempe	Début de la précipi- tation des cristaux uranium alpha dans la matrice zeta	ς	380
	Après un re- cuit à 400°C	Structure de Widmanstätten. Solution solide ura- nium alpha dans zeta	ζ + U _a	<b>30</b> 5
Homogénéisation en phase epsilon et refroidissement rapide		Phase zeta sous forme d'1lots auréo- lés dans la matrice d'uranium alpha	Ua + ζ	300
Homogénéisation en phase epsilon et refroidisse- ment étagé par des recuits intermédiaires isothermes	Brut de re- froidissement jusqu'à la tem- pérature am- biante	Grands llots de la phase zeta entourés par l'uranium a'pha et l'eutectoïde (ura- nium alpha + zeta)	U _α + ζ	
	Après un re- cuit à 400°C pendant 250 heures	Coalescence du constituant zeta de l'eutectoïde		320

### Tableau 16

### 4 - Discussion des résultats,

La comparaison des principaux résultats, obtenus après les différents traitements thermiques sur les trois alliages choisis, est donnée dans le tableau 17.

Traitement thermique	15 % Pu		17,5 % Pu		20 % Pu	
	Aspect micro- graphique	Dureté Vickers H ₁₁₆	Aspect micro- graphique	Dureté Vickers H _{v10}	Aspect micro- graphique	Dureté Vickers H _{vio}
Homogénéisation dans la phase epsilon et trempe à l'huile suivie par un recuit de 1600 heures à 400°C	précipité zeta dans la solution solide uranium alpha	235	précipité zeta dans la solution solide uranium alpha	270	solution solide uranium alpha précipitée dans la phase zeta Structure Widman- stätten.	305
Homogénéisation dans la phase epsilon et refroidissement étagé par des recuits intermédiaires isothermes	Eutentol- de $(U_a + \zeta)$ dans la solution solide uranium alpha	245	Eutectol- de (U _s +ζ)	320	Ilots de phase zeta + Eutectoi- de (U _a + ζ) dans la solution solide uranium alpha	<b>320</b>

Tableau 17

L'apparition du précipité zeta dans la matrice de solution solide uranium alpha (dans le cas des alliages à 15 et à 17,5 % de Pu) et sa persistance même après des très longs recuits à 400°C, ainsi que la précipitation sous forme des plaquettes de Widmanstätten de la phase uranium alpha au cours du revenu de la phase zeta (obtenue par une trempe de l'alliage à 20 % de Pu), confirment l'existence du domaine biphasé, à la température du recuit, pour des teneurs 15, 17,5 et 20 % de plutonium.

Il apparaît que par refroidissement étagé à partir de la phase epsilon on est arrivé, dans le cas des alliages à 15 et à 17, 5% de plutonium, à la structure de l'état d'équilibre : uranium alpha + eutectoide dans le premier cas et eutectoide dans le second. La différence entre ces deux alliages et l'alliage à 20% de plutonium, ayant subi le même traitement thermique, s'explique facilement à l'aide du diagramme américain ou anglais par le fait, qu'en refroidissant ce dernier alliage à partir de la phase epsilon, on passe par le domaine biphasé  $(n + U_{\beta})$  (figures 1 et 2). Un recuit de 50 heures dans ce domaine a été vraisemblablement trop court pour arriver à l'état d'équilibre. Le même recuit a été cependant suffisant pour les deux autres alliages, quand on s'est trouvé pendant 50 heures dans le domaine uniphasé uranium beta.

De même, si on admettait l'existence d'un domaine uranium beta très étendu, comme c'est le cas dans le diagramme des phases russe, il serait très difficile d'expliquer l'apparition de la phase zeta sous forme d'Ilots auréolés.

Ainsi les résultats de notre recherche en vue de vérifier les divergences, existant du côté riche en uranium, entre les différents diagrammes des phases publiés du système U-Pu, nous amènent à confirmer les résultats obtenus par les chercheurs anglo-saxons en ce qui concerne l'étendue du domaine biphasé zeta + uranium alpha et l'étendue du domaine uranium beta.

## CONCLUSION GÉNÉRALE

L'importance des alliages uranium-plutonium pour l'étude des éléments de combustible nucléaire, destiné soit aux réacteurs à neutrons thermiques (de teneur jusqu'à 2 % de plutonium pour un coeur homogène), soit à l'alimentation des réacteurs surgénérateurs à neutrons rapides (de teneur de 10 à 20 % de plutonium), nous a incité à entreprendre l'étude des alliages uraniumplutonium de teneur comprise entre 0  $\epsilon$  20 % de plutonium.

Nous nous sommes proposés d'étudier en premier lieu l'influence de l'addition de plutonium sur les propriétés physiques de l'uranium dans le domaine de la solution solide uranium alpha.

Compte tenu des divergences entre les différents résultats publiés en ce qui concerne le diagramme d'équilibre du système U-Pu, nous avons essayé ensuite de vérifier l'étendue des différents domaines du diagramme de phases, en particulier du domaine biphasé zeta + uranium alpha.

Les résultats obtenus sont les suivants :

### 1 - Domaine de la solution solide uranium alpha.

Une série d'alliages, notamment à 0, 1, 2, 3, 4, 5 et 10% de plutonium, a été étudiée. Ces alliages se prêtent facilement à l'élaboration et à la coulée. Leur dureté est un peu plus élevée que celle de l'uranium non allié. La densité est plus faible.

L'aspect micrographique ainsi que le comportement dilatométrique sont tout à fait comparables à ceux de l'uranium pur. La grosseur de grains n'est pas modifiée. L'addition du plutonium abaisse les températures des transformations allotropiques.

Les mesures de paramètres cristallins indiquent très nettement une augmentation des paramètres  $a_o$  et  $c_o$  et une diminution du paramètre  $b_o$ .

Contrairement aux alliages dont la teneur en plutonium est plus élevée, les alliages du domaine de la solution solide uranium alpha ne montrent pas de tendance à se transformer en poudre. Leur résistance à la corrosion dans l'air est semblable à celle de l'uranium non allié.

### 2 - Domaine biphasé zeta + uranium alpha.

L'étude de ce domaine a été faite sur trois alliages différents, de teneurs 15, 17,5 et 20% de plutonium. D'après le diagramme des phases présenté par Bochvar et col., ces alliages devraient se trouver à la température ambiante respectivement : dans le domaine monophasé de la solution solide uranium alpha, dans le domaine biphasé uranium alpha + phase zeta et dans le domaine monophasé de la solution solide intermédiaire zeta. D'après les diagrammes des phases américain et anglais, ces trois alliages devraient se situer par rapport à l'uranium respectivement : dans le domaine hypoeutectolde, l'eutectolde et le domaine hypoeutectolde uranium alpha + phase zeta.

Les examens par micrographie et par diffraction des rayons X des échantillons après différents traitements thermiques (notamment trempe à partir de la phase epsilon et recuits prolongés, ainsi qu'un refroidissement lent étagé à partir de la phase epsilon) ont confirmé les résultats des chercheurs anglo-saxons.

On a pu également tirer des conclusions concernant l'étendue du domaine de la solution solide uranium beta, qui sont en faveur des résultats anglo-saxons.

3
### **BIBLIOGRAPHIE**

- [1] H.A. BETHE Nucleonics, 14, N° 4, p. 61 (1957).
- [2] T.A. SANDENAW, R.B. GIBNEY Phys. Chem. Solids, 6, 81 (1958).
- [3] M.B. WALDRON et coll., 2ème Conférence de Genève (1958) 15/P/1452.
- [4] G. VENDRYES Energie Nucléaire, 3, Nº 1 (1961).
- [5] L.J. KOCH, H.O. MONSON et coll. 2ème Conférence de Geneve (1958) 15/P/1782.
- [6] A.A. BOCHVAR et coll. 2ème Conférence de Genève (1958) 15/P/2197.
- [7] A.S. COFFINBERRY et coll. 2ème Conférence de Genève (1958) 15/P/1046.
- [8] M.B. WALDRON et coll. 2ème Conférence de Genève (1958) 15/P/71.
- [9] F.H. ELLINGER, R.O. ELLIOTT, E.M. CRAMER J. Mat. Nucl., 3, 233 (1959).
- [10] L.R. KELMAN Rapport ANL-FGF-73 (1957).
- (11) J.H. KITTEL, L.R. KELMAN Rapport ANL 5706 (1958).
- [12] H.H. CHISWICK et coll. 2ème Conférence de Genève (1958) 15/P/713.
- [13] S.T. KONOBEEVSKY et coll. 2ème Conférence de Genève (1958) 15/P/2230.
- [14] J.K. CRITCHLEY, D. SINCLAIR Rapport AERE-M-424 (1959).
- [15] B. BLUMENTHAL, R.A. NOLLAND Progress in Nuclear Energy, Metallurgy and Fuels, <u>1</u>, 62, (1956), Pergamon Press, Londres.
- [16] R. GRIMOUILLE, J. MORY, J.P. MUSTELIER Rapport interne, C.E.A., (1960).
- [17] R. BOUCHER J. Mat. Nucl., 6, 84, (1962).
- [18] P. BARDET, H. MONTI, A. ROBILLARD, F. SEBILLEAU "Extractive and physical metallurgy of plutonium and its alloys", Interscience Publishers, New-York, (1960).
- [19] H. MONTI Thèse C.N.A.M., Rapport C.E.A. Nº 730 (1957).
- [20] B. BLUMENTHAL Trans. A.I.M.E., 203, 1199 (1955).
- [21] F. ANSELIN, N. LORENZELLI Rapport interne, C.E.A., (1962).
- [22] F. ANSELIN, R. BOUCHER, A. ROBILLARD, Rapport interne, C.E.A (1960).
- [23] C.W. JACOB, B.E. WARREN, J. Am. Chem. Soc., 59, 2589 (1937).
- [24] P. GORDON USAEC Report C.T. 2780, p. 45, (1945),
- [25] M.H. MUELLER Rapport ANL 5194 (1954).
- [26] I.R. BRIDGE, C.M. SCHWARTZ, D.A. VAUGAN J. Metals, 8, 1282 (1956).
- [27] P. CHIOTTI, H.H. KLEPFER, R.W. WHITE Trans. A.S.M., <u>51</u>, 772 (1959).
- [28] E.F. STURCKEN, B. POST Acta Cryst., 13, 852 (1960).
- [29] R. PASCARD, R. FABRE "Gloveboxes and shielded cells", Butterworths, London, p. 100 (1958).

- [30] E. GRISON, R. PASCARD "Gloveboxes and shielded cells", Butterworths, London, p. 223 (1958).
- [31] R.F. DICKERSON, A.F. GERDS, D.A. VAUGHAN Trans. A.I.M.E., 206, 456 (1956).
- 32] K.E.G. MEREDITH, M.B. WALDRON J. Inst. Met., 87, 311 (1958/1959).
- 133) G.L. KEHL et coll. Trans. A.S.M., 51, 717, (1959).
- [34] R.F. DICKERSON Trans. A.S.M., 52, 748, (1960).
- 135] A. ROBILLARD, D. CALAIS, P. LACOMBE Revue de Métallurgie, LV, Nº 9, 815 (1958).
- [36] M.U. COHEN Rev. Sci. Instrum., 6, 68 (1935).
- [37] M.U. COHEN Rev. Sci. Instrum., 7, 155 (1936).
- [38] H. PARUZ J. Mat. Nucl. 6, 127 (1962).
- [39] A.F. BERNDT Rapport ANL 6460 (1962).
- [40] J. FRIEDEL Phil. Mag., 46, 514 (1955).
- [41] Cité par A.S. COFFINBERRY et M.B. WALDRON, "Progress in Nuclear Energy", Vol. 1, Séries V (1956), Pergamon Press, Londres.
- [42] F. SEBILLEAU Génie Atomique, Tome 4, Vcl. 1, Chap. A4-VIII (1959-1960).

# TABLE DES MATIÈRES

.

	Pages
INTRODUCTION	7
1 - Importance des alliages uranium-plutonium	7
2 - Le diagramme des phases du côté riche en uranium	8
3 - But de l'étude	9
CHAPITRE I - Exposé des méthodes expérimentales	11
1 - Matériaux et élaboration des alliages	11
2 - Traitements thermiques	12
3 - Examen micrographique	12
4 - Mesures des paramètres du réseau cristallin	13
5 - Identification des phases	13
6 - Dilatométrie	17
7 - Mesures de densité	17
8 - Mesures de dureté	17
9 - Conditions de travail sur les alliages de plutonium	17
CHAPITRE II - Etude de la solution solide uranium alpha	19
1 - Densité	19
2 - Aspect micrographique	19
3 - Dilatation thermique	20
4 - Paramètres du réseau cristallin	21
5 - Propriétés diverses	24
6 - Conclusion	24
CHAPITRE III - Etude du domaine biphasé (zeta + uranium alpha)	25
1 - Alliage à 15% de Pu	25
2 - Alliage à 17,5% de Pu	28
3 - Alliage à 20% de Pu	30
4 - Discussion des résultats	32
CONCLUSION GENERALE	33
BIBLIOGRAPHIE.	35



Figure 4 - <u>Raies de diffraction (rayonnement K_a du chrome)</u> a) de la solution solide uranium alpha à 15% de Pu b) de la solution solide uranium beta à 15% de Pu

c) de la solution solide zeta à 30 % de Pu



Figure 5 - Courbe de dilatation d'un alliage U-Pu à 5 pds % de Pu.



Figure 6 - Diagramme d'équilibre U-Pu.



Figure 7 - <u>Paramètres du réseau cristallin de la</u> solution solide du Plutonium dans l'Uranium alpha,



₹



Figure 9 - Variation des rayons atomiques moyens des alliages U-Pu en fonction de la teneur en plutonium
a) droite de Vegard pour la solution solide U_a -Pu_a
b) même droite, corrigée d'après la formule de Friedel
c) droite de Vegard pour la solution solide U_a -Pu_b

- d) même droite, corrigée d'après la formule de Friedel points expérimentaux



Figure 10 - <u>Schéma illustrant le traitement thermique subi par les échantillons d'après les paragraphes</u> 1b, 2b et 3b du chapitre III (recuit d'homogénéisation et refroidissement étagé dans le four).

# **PLANCHES**

4

Planche 1 - Alliages U-Pu à faibles teneurs en Pu,

a) Brut de coulée b) Brut de laminage Polissage électrolytique. Lumière polarisée.



a) 5 pds % de Pu x 200



b) 5 pds % de Pu









Planche 3 - Alliages U-Pu à faibles teneurs en Pu. Recuit 15 h à 900°C. Trempe à l'huile. Revenu 2 h à 400°C. Polissage électrolytique.



a) 5 pds % de Pu x 800



b)5 pds % de Pu x 800



c) 10 pds % de Pu x 800

Planche 4 - Alliages I'-Pu à faibles teneurs en Pu. a) b) c) - Bruts de coulée d) Brut de fusion, Polissage électrolytique suivi d'une attaque.



a) 2 pds  $\sigma_0$  de Pu x 20J



b) 2 pds % de Pu x 375



c) 2 pds % de Pu



d) 5 pds % de Pu x 800

Planche 5 - Alliages U-Pu à faibles teneurs en Pu.

a) b) - Bruts de coulée.
 c) Brut de fusion.
 Polissage électrolytique suivi d'une attaque.



a) 2 pds % de Pu



b) 2 pds % de Pu x 200



c)ā pds‰de Pu

Planche 6 - Alliage U-Pu à faibles teneurs en Pu.

Bruts de coulée. Polissage électrolytique suivi d'une attaque.



a) 2 pds % de Pu x 800



b) 2 pds % de Pu

Planche 7 - Alliages U-Pu Bruts de trempe à l'huile à partir de la phase epsilon Attaque. électrolytique



**a)** 15 % de Pu



b) 17,5 % de Pu





c) 17,5 % de Pu

<u>Planche 8 - Alliage U-Pu à 15 % de Pu</u> Trempe à l'huile à partir de la phase epsilon Revenu à 400°C pendant 2 heures



a) Attaque électrolytique x 200



b) Attaque électrolytique x 800



c) Polissage électrolytique x 200 Lumière polarisée

Planche 9 - Alliage U-Pu à 15% de Pu

Trempe à l'huile à partir de la phase epsilon Revenu à 400°C pendant 1600 heures Attaque *clectrolytique* 





Planche 10 - Alliage U-Pu à 15 % de Pu

Refroidissement lent, étagé, à partir de la phase epsilon Attaque électrolytique



a)

x 200



x 650

c)

<u>Planche 11 - Alliage U-Pu à 15 % de Pu</u> Refroidissement lent, étagé, à partir de la phase epsilon Attaque électrolytique

Oxydation dans l'air pendant 20 heures. Grossissement x 650







<u>Planche 12 - Alliages U-Pu</u> Refroidissement lent, étagé, à partir de la phase epsilon Recuit à 400°C pendant 250 neures Attaque électrolytique



173 Ţ b) 15 % de Pu x 650

c) 17,5% de Pu

x 200

# <u>Planche 13 - Alliages U-Pu</u> Refroidissement dans le four à partir de la phase epsilon Attaque électrolytique



c) 17, 5 % de Pu x 200



## Planche 14 - Alliage U-Pu à 15% de Pu

Refroidissement rapide à partir de la phase epsilon a) b) - Brut de refroidissement c) d) - Après un recuit à 400°C pendant 2 heures Attaque électrolytique





Planche 15 - Alliage U-Pu à 17,5 % de Pu

Trempe à l'huile à partir de la phase epsilon. Revenu à 400°C Attaque électrolytique



a) Revenu pendant 250 heures x 800



b) Revenu pendant x 800 800 heures

c) Reven pendant x 800 1600 heures

61

Planche 16 - Alliage U-Pu à 17,5% de Pu

Refroidissement lent, étagé, à partir de la phase epsilon Attaque électrolytique



x 200



b)



c}

x 650

Planche 17 - Alliage U-Pu à 17,5% de Pu Refroidissement lent, étagé à partir de la phase epsilon. Attaque électrolytique Oxydation dans l'air pendant 20 heures, Grossissement x 650







### Planche 18 - Alliage U-Pu à 17,5 % de Pu

Refroidissement rapide à partir de la phase epsilon a) b) - Brut de refroidissement c) - Après un recuit à 400°C pendant 2 heures d) - Après un recuit à 400°C pendant 25 heures Attaque électrolytique









# Planche 19 - Alliage U-Pu à 20% de Pu Brut de trempe à l'huile, à partir de la phase epsilon. Attaque électrolytique Grossissement x 800









Planche 20 - Alliage U-Pu à 20% de Pu Trempe à l'huile, à partir de la phase epsilon. Revenu à 400°C Attaque électrolytique



c) Revenu pendant 600 heures



# Planche 21 - Alliage U-Pu à 20% de Pu

Refroidissement lent, étagé, à partir de la phase epsilon c) d) - Après un recuit à 400°C pendant 250 heures a) b) - Brut de refroidissement Attaque électrolytique





### Planche 22 - Alliage U-Pu à 20 % de Pu

### Refroidissement rapide à partir de la phase epsilon

a) b) - Brut de refroidissement c) - Après un recuit à 400°C pendant 2 heures d) - Après un recuit à 400°C pendant 25 heures







x 800

c)

# 

.

,

. .