

J. BEROUJON - M. ENGLANDER - J. A. STOHR - A. WINOGRADSKY

Rapport CEA n° 604

Sur l'affinage du grain de l'uranium.

Sommaire. — L'utilisation de l'uranium nous a amenés à chercher une structure différente de celle de l'uranium brut de coulée ou filé, qui présente une structure grossière et hétérogène. Quelques conditions de traitements réalisables selon des techniques simples et courantes ont été déterminées.

Le but de ce rapport est de décrire les résultats obtenus.

1957

20 pages

J. BEROUJON - M. ENGLANDER - J. A. STOHR - A. WINOGRADSKY

Rapport CEA n° 604

On the refining of the grain of uranium.

Summary. — The use of uranium has led us to look into the possibility of finding a structure different from that of the crude cast or drawn uranium which has a coarse and heterogeneous structure. Some conditions for treatments which can be carried out according to simple and standard techniques have been determined.

The aim of this report is to describe the results obtained.

1957

20 pages

PRÉSIDENCE DU CONSEIL
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

SUR L'AFFINAGE DU GRAIN DE L'URANIUM

par

**J. BEROUJON, M. ENGLANDER,
J. A. STOHR et A. WINOGRADSKY**

Rapport CEA n° **694**

**CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY
SERVICE DE DOCUMENTATION
Boite postale n° 2 - Gif-sur-Yvette (S.-et-O.)**

- Rapport C.E.A. n° 694 -

Service de Technologie

SUR L'AFFINAGE DU GRAIN DE L'URANIUM

par

**J. BEROUJON, M. ENGLANDER
J.A. STOHR, A. WINOGRADSKY**

R. 57-1723/MH

- 1957 -

**Rapport C.E.A. n° Int. 3
paru en 1952**

SUR L'AFFINAGE DU GRAIN DE L'URANIUM

INTRODUCTION.-

L'uranium destiné aux piles se présente sous forme de barres obtenues par le filage à chaud de billettes coulées.

Bien que l'examen de ces barres ne révèle aucune orientation préférentielle prononcée par rapport à la direction de filage, le métal n'en est pas moins constitué par des agrégats de grains très grossiers de structure basaltique ; du point de vue du comportement ultérieur de la barre au travail mécanique (usinage, dressage, etc.), au thermique (échauffement, dilatation, etc.), cette structure est assez défavorable, en particulier au point de vue de l'intensité des réactions de contact (diffusion) entre l'uranium et sa gaine de protection.

Il y a donc intérêt à transformer profondément cette microstructure grossière et peu isotrope. A cet égard, un affinage sensible des grains pourrait communiquer à l'ensemble de ceux-ci (compte tenu de la structure anisotrope propre à l'uranium α) une isotropie statistique suffisamment parfaite pour favoriser un meilleur comportement ultérieur du métal.

Il s'agit donc de pouvoir déterminer sur l'uranium :

- de quelles façons il est possible d'affiner la taille du grain ;
- comment celle-ci évolue en fonction de la déformation plastique et du chauffage (température et temps) ;
- quels sont les degrés d'affinage pratiquement réalisables compte tenu de la microstructure et des formes géométriques sous lesquelles se présente le métal uranium après le filage (tel qu'il est réalisé à l'heure actuelle).

Le présent article a précisément pour but d'indiquer comment furent déterminées les conditions techniques de traitement d'un uranium (filé en phase γ) afin de l'obtenir sous forme de grains fins et équiaxes.

PRINCIPE DE CES TRAITEMENTS.-

Les traitements ont reposé sur les principes suivants :

1°) la microstructure d'un métal est modifiée lorsque celui-ci subit une déformation plastique à chaud ou à froid et qu'il est ensuite porté à une température convenable ; les vitesses de chauffage et de refroidissement n'ont, dans ce cas, qu'une importance secondaire. La température minima convenable (température de recristallisation) sera d'autant plus basse que le degré d'écroutissage apporté par la déformation plastique sera plus élevé.

Ce procédé d'affinage nécessite donc un traitement mécanique d'écroutissage suivi d'un traitement thermique de recristallisation.

2°) la microstructure se modifie également au cours des transformations allotropiques du métal.

On utilise la transformation α - β à 660 °C environ. Dans ce cas, les vitesses de chauffage, de refroidissement, et le temps de palier en zone β , ont une importance primordiale sur l'affinage.

Ce procédé d'affinage nécessite seulement un ou plusieurs traitements thermiques.

DESCRIPTION DES TRAITEMENTS.-

1°) Traitement mécanique

Il a pour but de communiquer à l'uranium un certain écroutissage, celui-ci est fonction du degré de déformation plastique. Le taux d'écroutissage est défini par la formule :

$$E = \frac{(S - s)}{s} 100$$

S = Section initiale.

s = Section finale.

Un recuit est préalablement opéré à 550 °C pendant une heure. Le métal est laminé à froid sans aucune difficulté, par petites passes, soit sous forme de plaques ou feuilles, soit sous forme de cylindres ou de tiges, à des taux de réduction

allant de 2 à 900 pour cent.

Le laminage en cylindres n'a pas donné un écrouissage très régulier pour les taux de réduction inférieurs à 100 pour cent ; en revanche, le martelage effectué à froid dans une marteleuse rotative, a permis en une seule passe un taux de réduction de 50 pour cent environ, avec un écrouissage suffisamment régulier pour qu'il soit comparable au laminage en plaques.

Dans la suite, tous nos essais systématiques seront réalisés sur des échantillons laminés en plaques.

Les résultats afférents seront ensuite appliqués aux éléments traités par martelage, mais devront être adaptés avec une certaine marge aux éléments laminés en cylindres.

2°) Traitements thermiques et nature des échantillons

Les traitements ont lieu dans un four électrique à moufle sous courant d'argon purifié ou sous vide.

Le four est muni d'un contrôleur et d'un régulateur de température qui permettent d'enregistrer la température du four en fonction du temps, et de la comparer à la température propre de l'échantillon. La température est mesurée avec des couples chromel-alumel avec une précision ± 5 °C. La pièce à traiter est introduite dans le four préalablement porté à la température voulue, laissée pendant la durée du palier (compte tenu du fait que l'échantillon atteint l'équilibre de température au bout de 2 à 5 minutes).

Les traitements thermiques appliqués sur les échantillons traités mécaniquement (dans le but d'apporter une structure fine de recristallisation) comportent ensuite un refroidissement dans le four à une vitesse d'environ 300 °C/h.

Ces traitements ont lieu sur des échantillons écrouis à 2, 4, 9, 15, 20, 50 et 100 pour cent, pendant des temps de 0 mn - 10 mn - 20 mn - 30 mn - 1 h - 2 h - 4 h - 8 h.

Les traitements thermiques appliqués à l'uranium brut de filage ou de coulée (dans le but d'obtenir une structure fine par transformation allotropique) comportent un refroidissement brutal par trempe à l'eau froide. Ces traitements sont schématisés par les tracés (figure 17) sous la désignation 100, 101, 102, 103, 104.

METHODES D'EXAMEN DES ECHANTILLONS TRAITES.-

Après les traitements ci-dessus, les échantillons sont soumis aux examens suivants :

a) Examens micrographiques.

Après polissage électrolytique et attaque micrographique des échantillons (cf. note Attaque métallographique de l'uranium), les tailles des grains sont déterminées en appliquant la formule :

$$d = \frac{1,075}{G} \sqrt{\frac{S}{n}}$$

$n \gg 100$

G = grossissement,
S = surface de la plage,
n = nombre de grains.

b) Examen aux rayons X.

Les diagrammes P.X. ont été réalisés par la méthode de retour et il a été reconnu absolument nécessaire de faire au préalable un polissage électrolytique si on veut obtenir des raies nettes. On utilise un rayonnement cuivre filtré (filtre nickel).

RESULTATS.-

L'uranium d'origine filé présentait des grains de dimensions très variables : 0,1 à 1 ou 2 mm (figure 1). Son diagramme R.X. présente des anneaux de DEBYE-SCHERRER incomplets (figure 2). Certaines parties sont renforcées et indiquent que l'orientation des cristallites ne diffère pas beaucoup à l'intérieur d'un même grain.

1°) Affinage par transformation allotropique.

Les traitements thermiques schématisés par les tracés de la figure 17 conduisent aux constatations résumées dans le tableau de la page suivante.

Nous pouvons donc déduire que les traitements qui ont été envisagés se traduisent surtout par un morcellement des paquets de grains communiquant un certain affinage au métal et une meilleure répartition statistique des orientations, sans toutefois obtenir un grain très fin ni très régulier.

- TABLEAU I -

Schéma	Tempér. max.	Palier	Refroidissement	Observations	Figure
100	740 °C	0 à 20 mn	trempe à l'eau.	grains morcelés et déchetés. Ø variable fins à grossiers.	N° 5 et 6
101	{ 740 °C 650 °C	0 mn 20 mn	300 °C/h 650 °C trempe à l'eau.	gros grains très maclés.	
102	{ 740 °C 650 °C	0 à 20 mn 20 mn	trempe à l'eau. trempe à l'eau.		
103	{ 670 °C d° d°	0 mn d° d°	trempe à l'air jusqu'à 640 °C d° trempe à l'air.	cristaux maclés Ø moyen : 100 µ	N° 7 et 8
				grains morcelés irrégulièrement.	N° 3 et 4

2°) Affinage par recristallisation du métal écroui.

Partant du grain d'origine filé, nous avons été conduits à déterminer les conditions pour lesquelles nous pouvons constater la présence d'un grain affiné et régulier.

Les essais ont porté sur des échantillons écrouis à 12 pour cent, 20, 50 et 100 pour cent et chauffés à 450 °C, 500 °C, 550 °C, 600 °C, 650 °C (voir tableau II).

Ainsi, nous avons constaté que de bonnes conditions pour obtenir un grain fin et régulier à partir d'un uranium filé se définissent pour un écrouissage de 100 pour cent par un traitement de 550 °C pendant une heure.

Le grain présente alors un diamètre moyen de 10 µ.

L'affinage du grain étant fonction du taux d'écrouissage, de la température et du temps de recuit, nous avons étudié les variations de la taille du grain d'uranium filé γ en fonction de ces différents facteurs ; par mesure de comparaison avec celui-ci, nous avons fait subir les mêmes traitements à un grain que nous appellerons "normalisé", obtenu par le traitement de recristallisation défini ci-dessus. (voir courbes - figures 18 à 23).

Ces courbes nous permettent de relever :

1°) Influence de la taille initiale du grain.

Aux températures 500, 550, 600 °C, pour des taux d'écroutissage compris entre 12 et 100 pour cent, les diamètres des grains d'origine filée et d'origine normalisée sont du même ordre (différence de 3 à 4 μ au maximum).

A 650 °C, la différence minimum est enregistrée à un taux de réduction de 50 pour cent.

2°) Influence du taux d'écroutissage.

Pour une même température, le diamètre des grains est approximativement le même pour des taux d'écroutissage entre 50 et 100 pour cent (15 μ environ) ; il augmente rapidement entre 50 et 20 pour cent et devient prohibitif au-dessous de 12 pour cent.

La zone d'accroissement brusque des grains normalisés, créant une discontinuité, s'étend globalement entre 4 et 12 pour cent.

L'écroutissage critique se placerait entre 5 et 9 pour cent aux températures de 500 et 550 °C, et entre 2 et 5 pour cent aux températures de 600 et 650 °C.

3°) Influence de la température.

A un taux d'écroutissage donné, le diamètre des grains s'accroît lentement jusqu'à doubler, pour des températures de 500 à 650 °C. (Toutefois, à cette dernière température, le phénomène de recristallisation secondaire devient prépondérant).

Par ailleurs, nous avons vérifié que la taille de ce grain ne subit aucune évolution sensible au cours d'un traitement thermique ultérieur comportant une cinquantaine de cycles de 5 h entre 20 et 400 °C.

4°) Influence du temps.

Ainsi que le montre le tableau n° III, nous vérifions qu'à la température qui semble la plus favorable pour l'affinage du grain, c'est-à-dire 550 °C, la taille des grains s'accroît progressivement de 12 à 20 μ après recuit pendant 64 h ; il n'apparaît donc pas d'accroissement prohibitif du grain.

5°) Influence de la pureté.

Tous les essais ci-dessus ont été réalisés sur un uranium pur qui répond à la production courante actuelle.

Des essais avaient été menés sur des échantillons écrouis de 12 à 900 pour cent provenant d'un uranium contenant un pourcentage beaucoup plus important d'impuretés. Nous avons constaté qu'il était extrêmement difficile d'obtenir sa recristallisation : pour les taux d'écrouissage 12, 100 et 900 pour cent, la microstructure n'offrait pas d'évolution au cours de recuits successifs de 1 h à 16 h à des températures allant jusqu'à 550 °C.

La recristallisation n'a été constatée que dans le cas du 900 pour cent pour un recuit de 16 h à 550 °C (figure 11). On obtient une microstructure hétérogène, certaines plages avec des grains extrêmement fins d'un diamètre moyen de 3 à 4 μ , d'autres plages avec des grains atteignant 30 μ . A titre de comparaison, la figure 12 représente la microstructure d'un uranium pur écroui à 900 pour cent, soumis au même traitement : 16 h à 550 °C; les différences qui apparaissent ont vraisemblablement pour origine l'hétérogénéité inhérente à l'origine du métal (teneur en impuretés et orientation des grains par déformation plastique).

Il semble donc que la présence d'impuretés pourrait, d'une part, empêcher la recristallisation grossière inévitable aux faibles taux d'écrouissage et, d'autre part, provoquer la formation et favoriser le maintien d'un grain ultra-fin aux forts taux d'écrouissage.

CONCLUSIONS.-

1°) Dans le cas où les dimensions géométriques de l'uranium filé ne peuvent être modifiées, il est possible de communiquer un certain affinage aux grains grâce aux variations de la microstructure lors des transformations allotropiques.

Cependant, si ce moyen a l'avantage de conduire à une meilleure répartition isotropique des grains d'uranium en évitant tout traitement mécanique préalable, les traitements thermiques (par ailleurs très délicats) n'ont jusqu'à présent apporté qu'un affinage limité et fort irrégulier.

2°) Dans le cas où les dimensions géométriques de l'uranium filé peuvent être modifiées dans une certaine mesure, un très grand affinage du grain peut être réalisé par recristallisation après écrouissage.

Le taux de déformation à imposer aux barres d'uranium filé doit être supérieur à la valeur correspondant à l'écrouissage critique, c'est-à-dire pratiquement 12 pour cent. De plus, pour des raisons techniques évidentes, on a intérêt à limiter la déformation.

Une microstructure homogène comportant des grains équiaxes d'un diamètre moyen de 15 μ est obtenue en portant 1 h à une température comprise entre 500 et

550 °C, le métal filé soumis à des taux de réduction de 20 à 50 pour cent.

3°) Ce traitement, appliqué à des barres de diamètre voisin de celles qui doivent être utilisées dans les piles, et écrouies à la marteuse rotative, a conduit à un affinage du grain très satisfaisant.

A Monsieur JACQUET qui nous a fait bénéficier de ses conseils, nous adressons nos plus vifs remerciements.

Manuscrit reçu le 27 juin 1957

BIBLIOGRAPHIE

- CHIPMAN. Metallurgy in the development of atomic power MDDC., 1946, 539
- CAHN. Plastic Deformation of uranium
- ROTH. Metal Progress 56., juillet 1949, p. 662.

TABLEAU II
BIG 14

TAUX D'ECROUIS- SAGE	RECRISTALLISATION INCOMPLETE			RECRISTALLISATION COMPLETE								
	Tempéra-	Temps	Figure	Tempéra-	Temps	ϕ moyen grains	Figure					
12 %	450 °	2 h		500 °C	1 h	18						
				500 °C	2 h	19						
	550 °	30 mn		550 °C	1 h	22,5						
				550 °C	8 h	77						
				600 °C	1 h	25,5						
				650 °C	20 mn	356						
20 %	450 °	2 h	500 °C	1 h								
			550 °C	30 mn								
			550 °C	1 h	17,5							
			650 °C	20	310							
50 %	450 °	1 h	N° 13	500 °C	1 h	13	N° 14					
				500 °C	4 h	15						
				500 °C	8 h	15						
				550 °C	30 mn	13	N° 9 et 10					
				550 °C	1 h	12						
				550 °C	2 h	24						
				650 °C	0 mn	18						
				650 °C	10 mn	18						
				650 °C	20 mn	24	N° 15					
				100 %				450 °C	1 h	10		
								500 °C	1 h	8		
								500 °C	4 h	8		N° 16
								500 °C	8 h	8		
550 °C	30 mn	11										
550 °C	1 h	11										
650 °C	0 mn	19										
650 °C	10 mn	19										
650 °C	20 mn	30										

TABLEAU III

VARIATION DU ϕ DES GRAINS EN FONCTION DU TEMPS (μ)				
θ	TEMPS	U LAMINE 100 % RECRISTALLISE ECROUI 10 %.	U LAMINE 100 %/ RECRISTALLISE ECROUI 20 %.	U LAMINE 100 %/ RECRISTALLISE ECROUI 50 %.
550 ° C	30 mn	10	13,25	10,5
550 ° C	1 h	22	12,25	11
550 ° C	2 h	22	14,35	12
550 ° C	4 h	28	19	18
		(hétérogène)		
550 ° C	8 h	25	21,5	19,5 à 20
550 ° C	16 h	35	21,5 à 23	20,5
		(hétérogène)		
550 ° C	32 h	32 à 108	24	22,5
		(très hétérogène)		
550 ° C	64 h		27,5 à 28	26,5



- Fig. 1 - x 150



- Fig. 2 -

URANIUM FILE γ



- Fig. 3 - x 150



- Fig. 4 -

URANIUM FILE γ - TRAITE SELON SCHEMA 103
3 CYCLES 670-640°C- TREMPE A L'AIR



- Fig. 5 - x 150



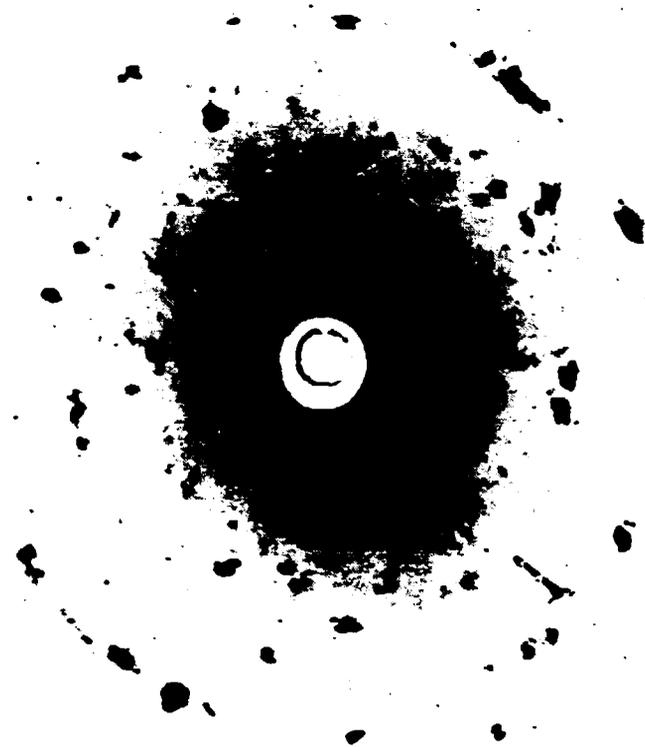
- Fig. 6 -

URANIUM FILE γ - TRAITE SELON SCHEMA 100

740 °C- TREMPE A L'EAU



- Fig. 7 -

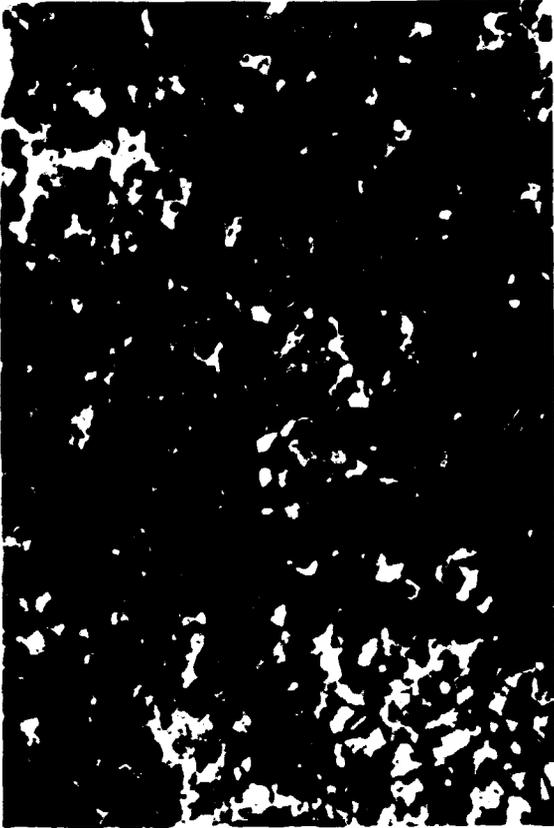


- Fig. 8 -

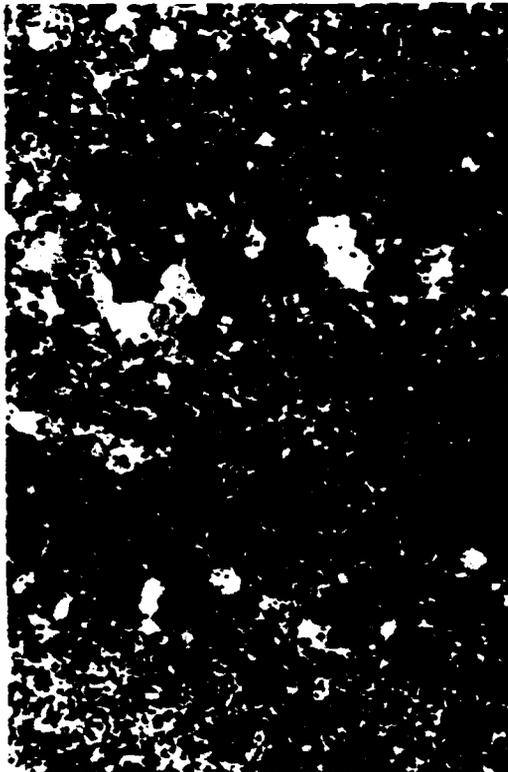
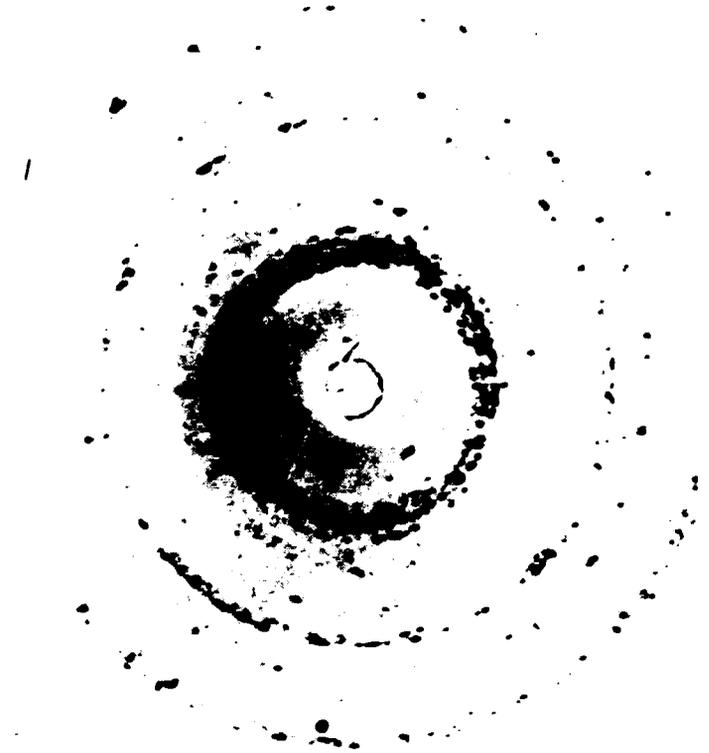
URANIUM FILE γ - TRAITE SELON SCHEMA 102

740 °C- TREMPE A L'EAU

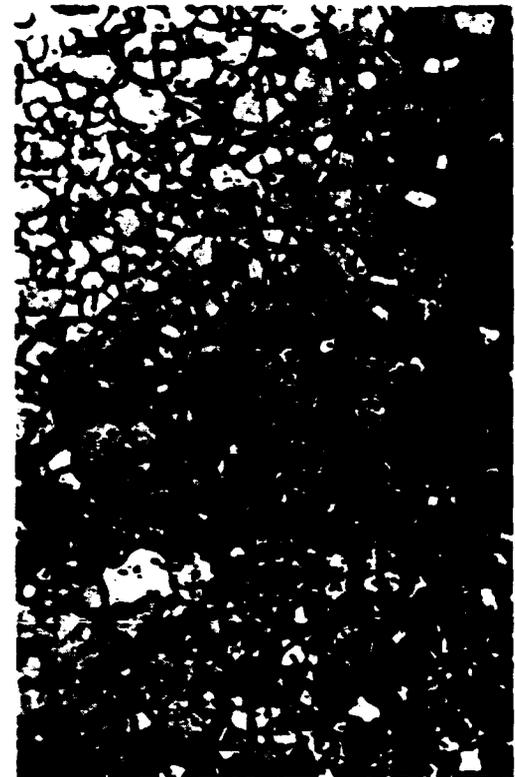
650 °C- " "



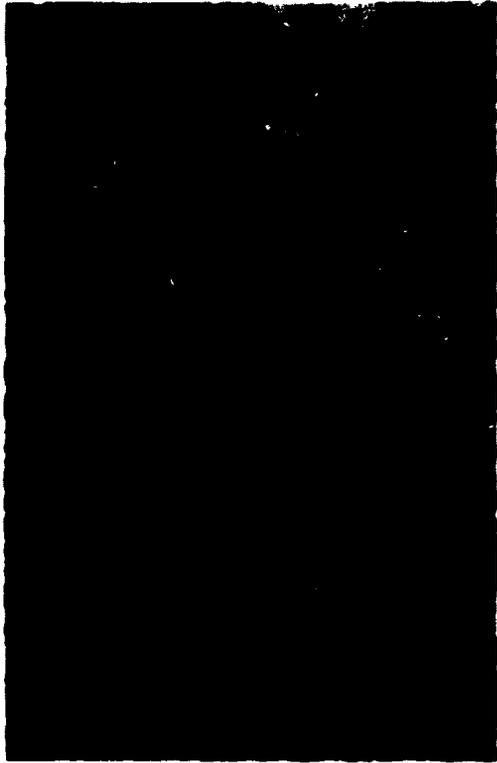
- Fig. 9 - x 150
URANIUM ECROUI 50 % - RECRISTALLISE PAR TRAITEMENT
1 h à 550 °C



- Fig. 11 - x 150
URANIUM ECROUI 900 % (origine : COULE)
TRAITEMENT 16 h A 550 °C
RECRISTALLISATION HETEROGENE



- Fig. 12 - x 150
URANIUM ECROUI 900 % (origine : FILE γ)
TRAITEMENT 16 h A 550 °C
RECRISTALLISATION ET GROSSISSEMENT DU GRAIN



- Fig. 13 - x 150

URANIUM ECROUI 50 %
TRAITEMENT : 1 h - 450 °C
RECRISTALLISATION PARTIELLE



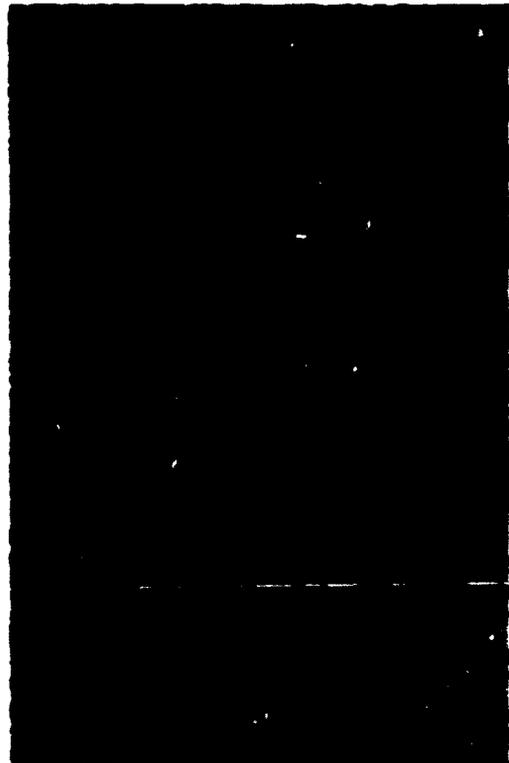
- Fig. 14 - x 150

URANIUM ECROUI 50 % RECRISTALLISE
TRAITEMENT : 1 h - 500°



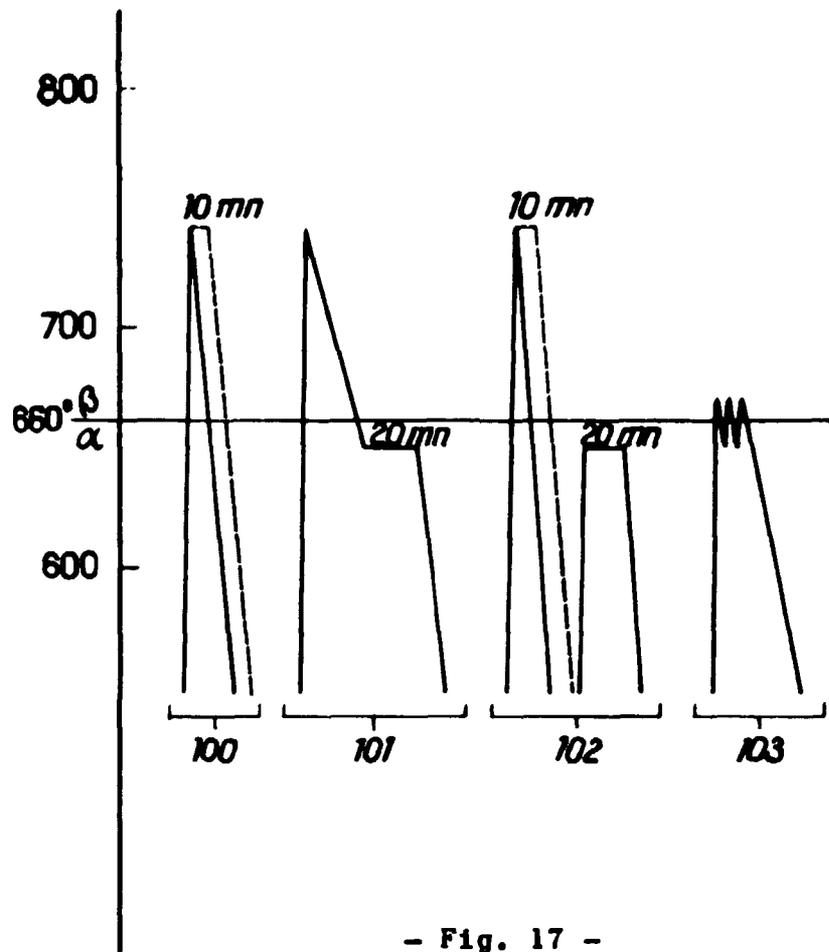
- Fig. 15 - x 150

URANIUM ECROUI 50 % RECRISTALLISE
TRAITEMENT : 20 mn - 650 °C

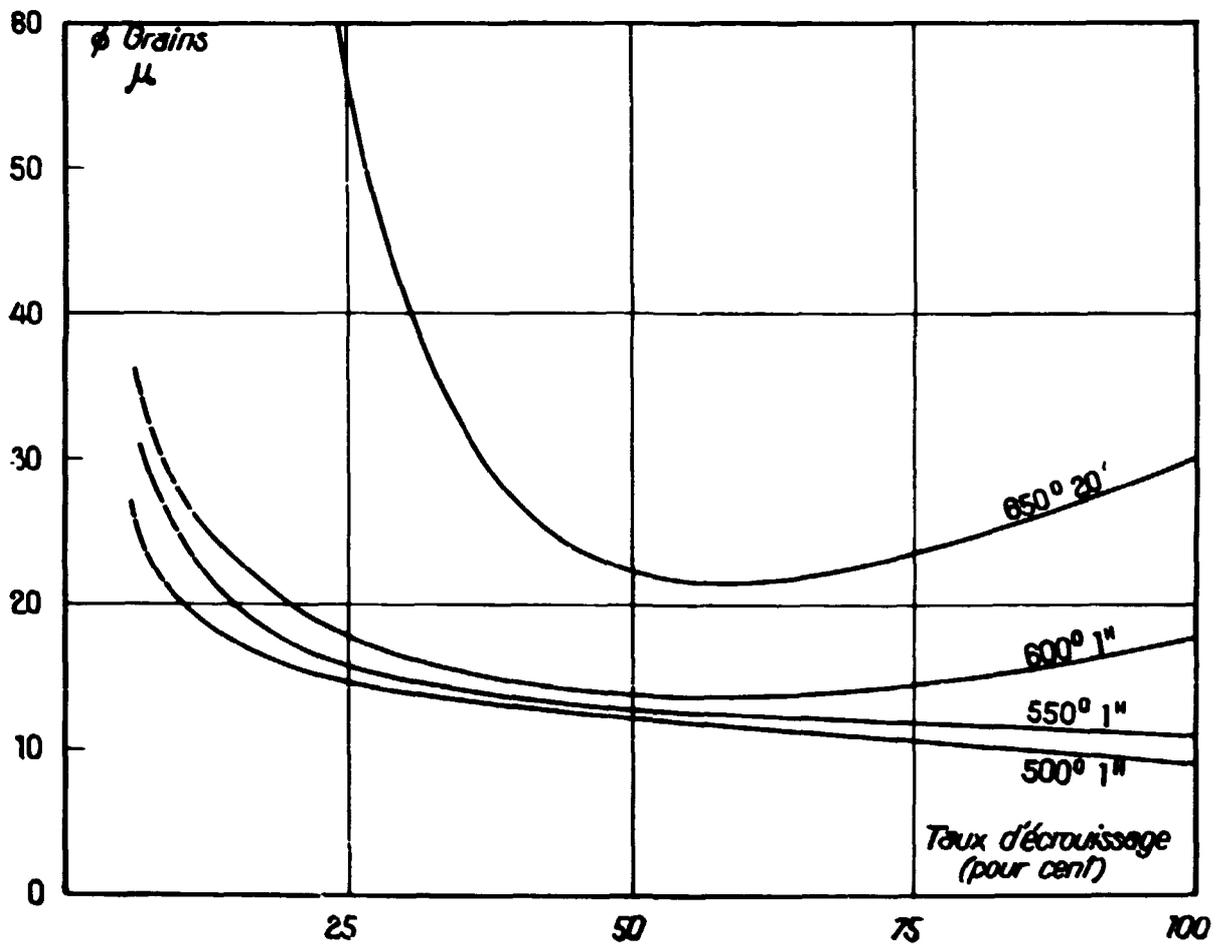


- Fig. 16 - x 150

URANIUM ECROUI 100 % RECRISTALLISE
TRAITEMENT : 4 h. - 500°C

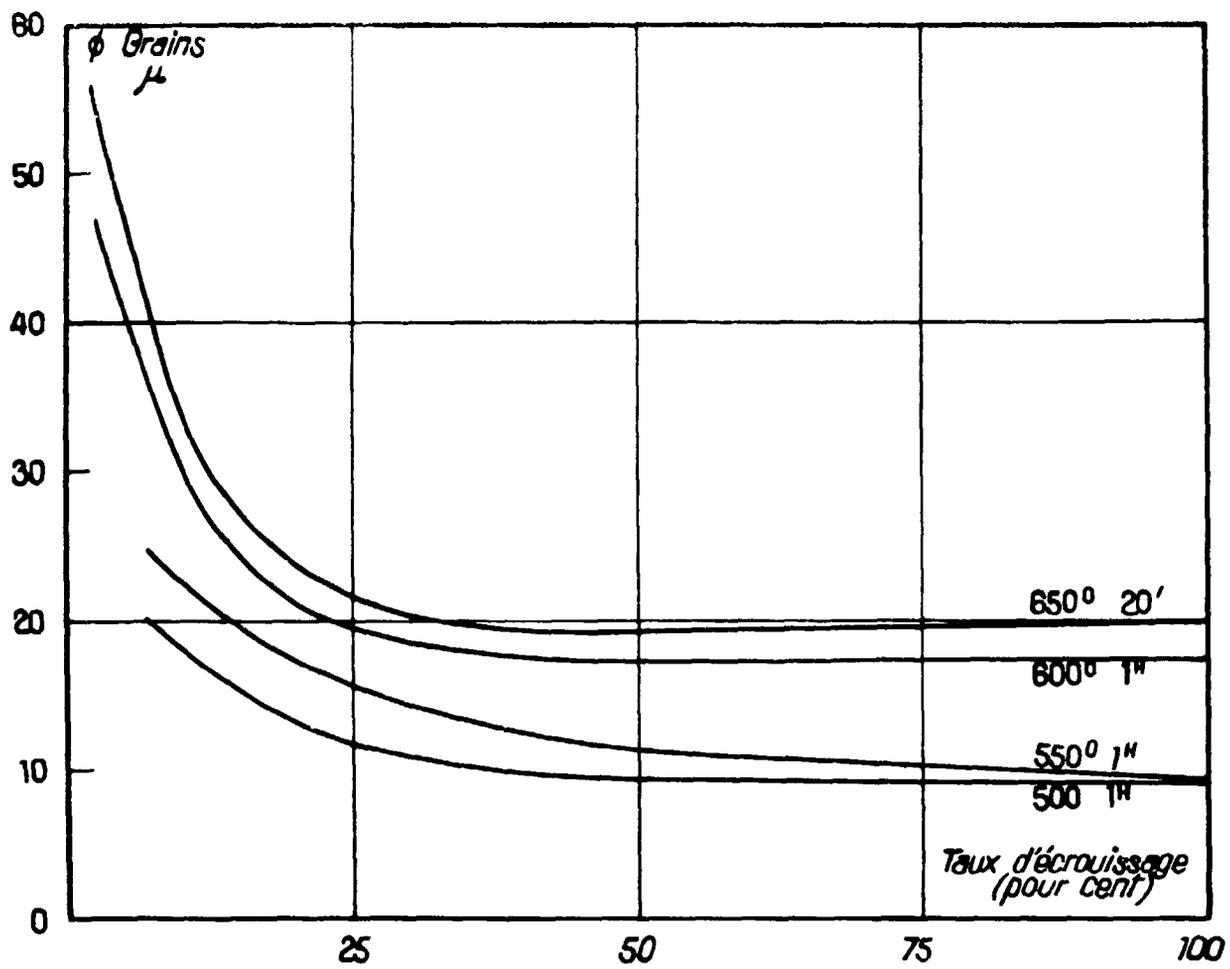


- Fig. 17 -

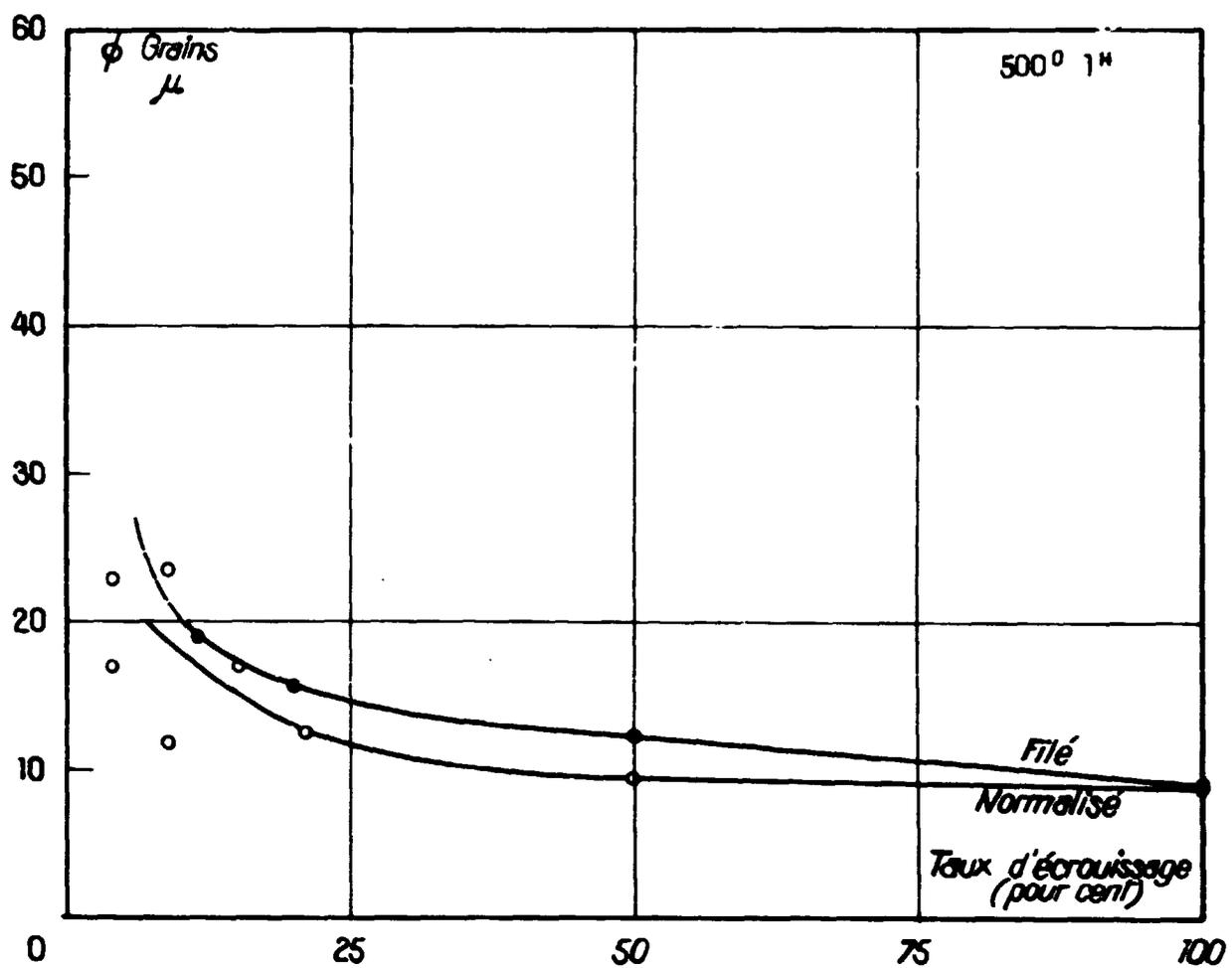


- Fig. 18 -

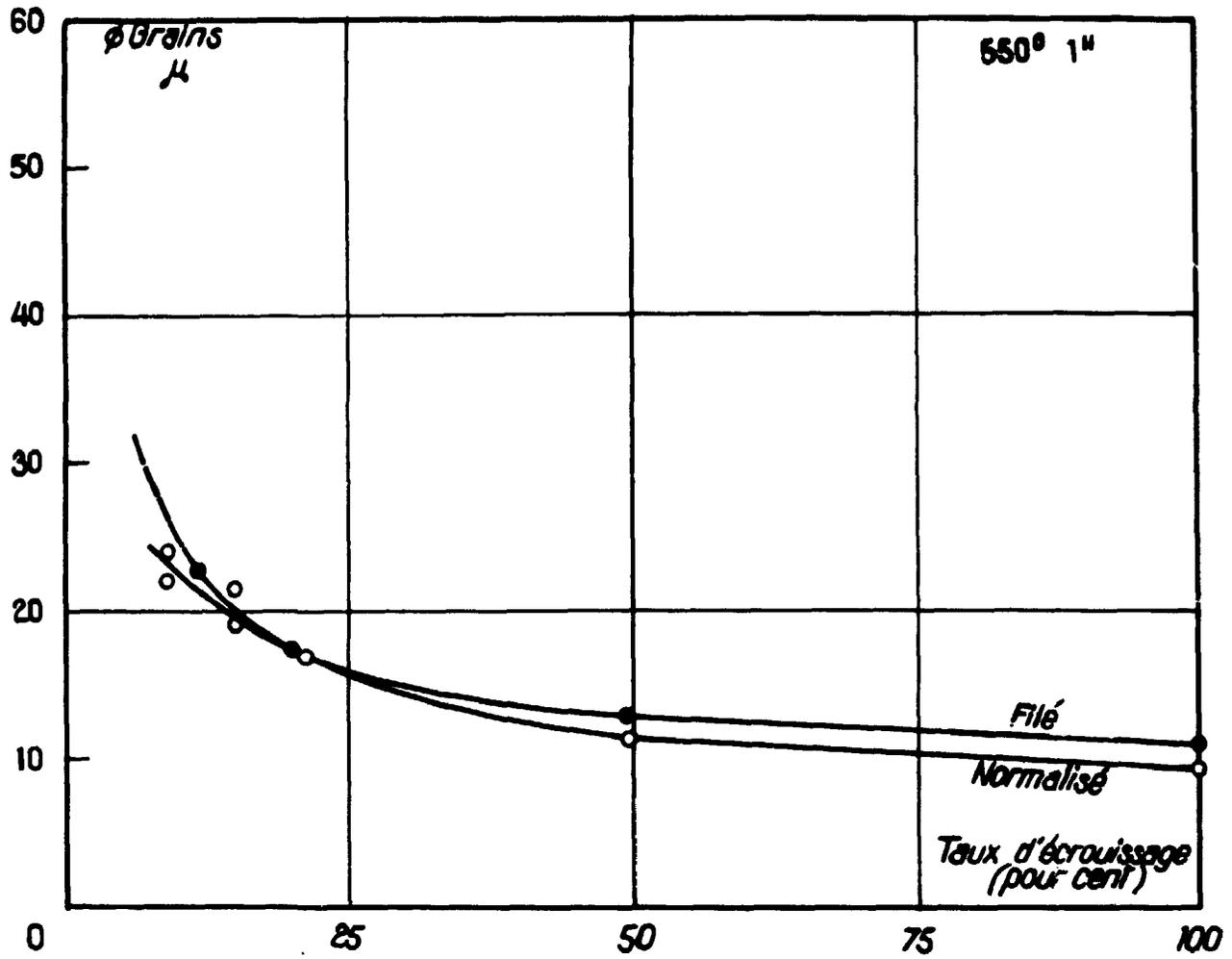
Taille de grains uranium filé



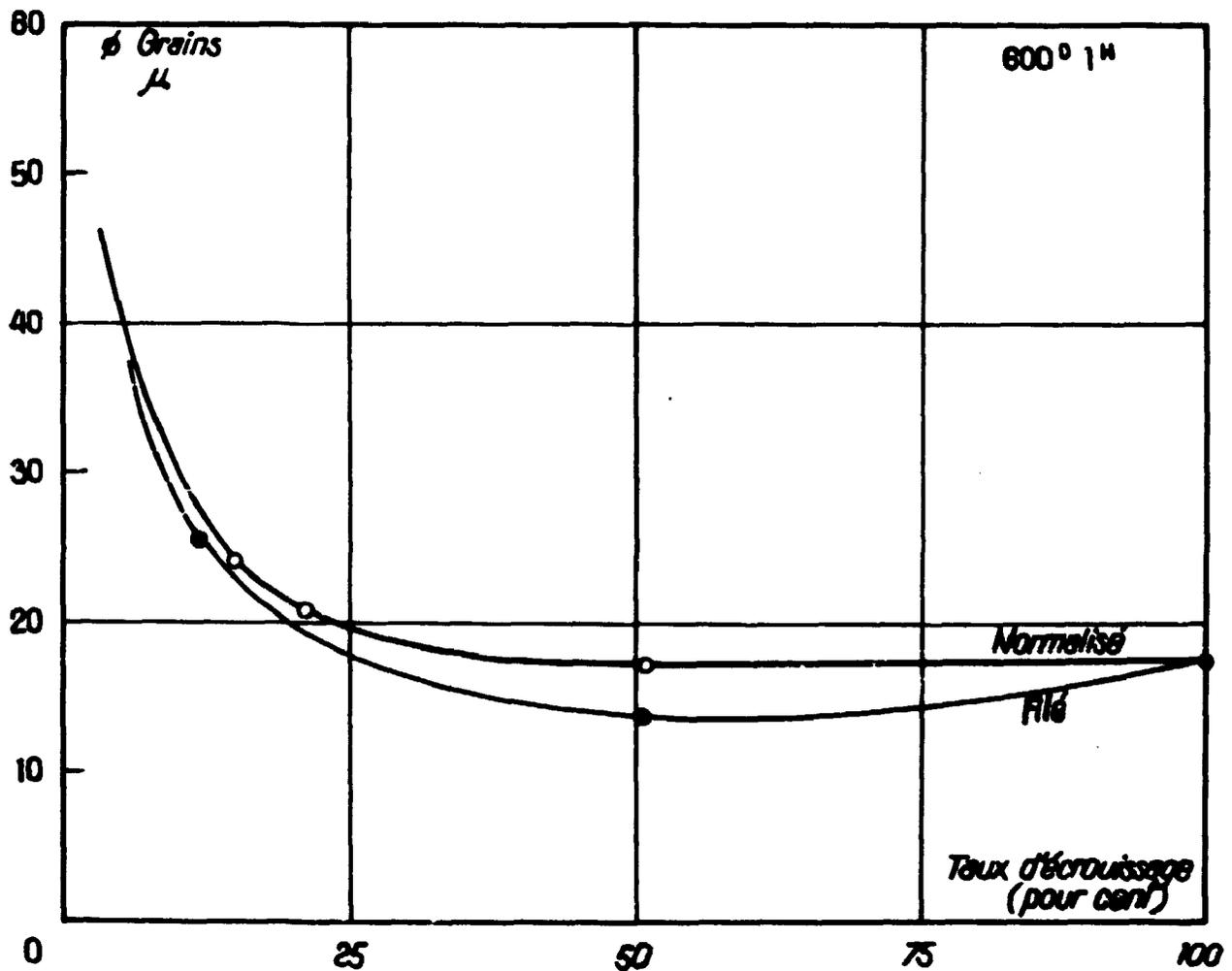
- Fig. 19 -



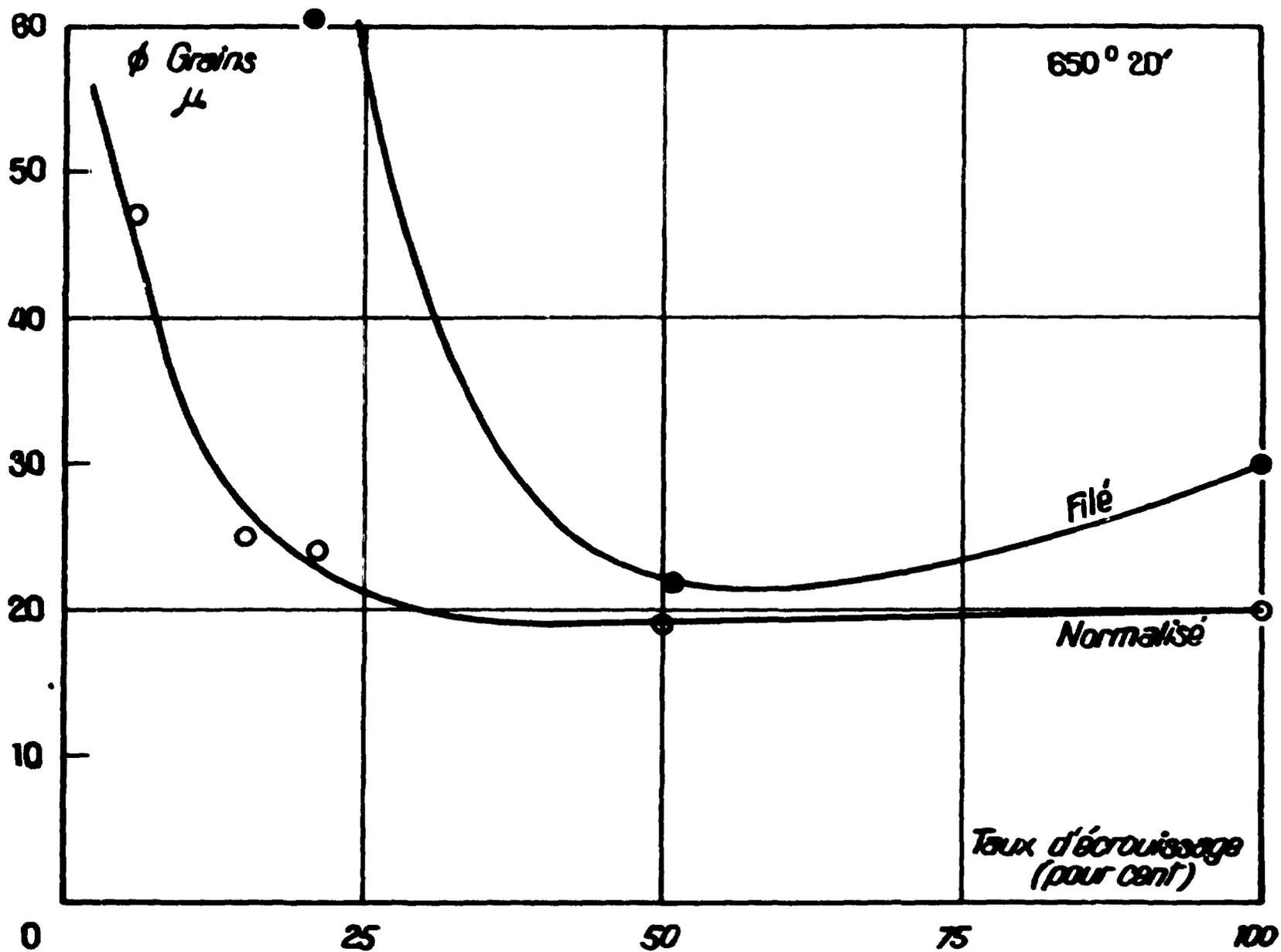
- Fig. 20 -



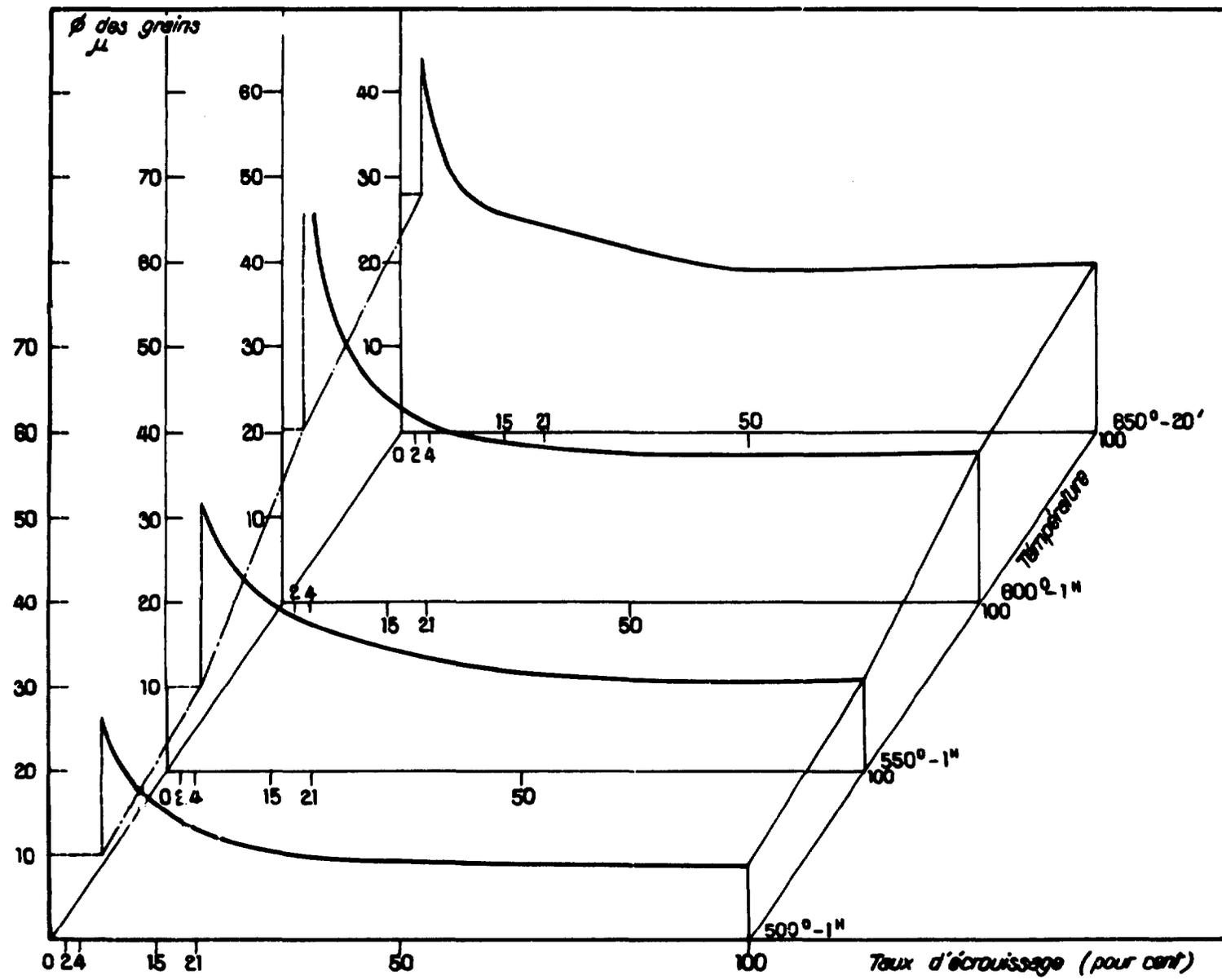
- Fig. 21 -



- Fig. 22 -



- Fig. 23 -



- Fig. 24 -
 Diagramme de recristallisation primaire
 de 0 à 100 %.

FIN