PRÉSIDENCE DU CONSEIL COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE

Préparation par frittage sous charge de cermets U-UC et de monocarbure stœchiométrique

раг

J. DUBUISSON, A. HOUYVET, E. LE BOULBIN, R. LUCAS et C. MORANVILLE

Rapport CEA nº 991

CENTRE D'ËTUDES NUCLËAIRES DE SACLAY SERVICE DE DOCUMENTATION Boite postale nº 2 - Gif-sur-Yvette (S.-et-O.) DUBUISSON J., HOUYVET A., LE BOULBIN E., LUCAS R., MORANVILLE C.

Rapport CEA nº 991.

Préparati n par frittage sous harg de c rmets U-UC t d mon carbur stoehi métrique.

Sommaire. — Une méthode de préparation de combustibles de haute densité, soit en monocarbure d'uranium, soit en cermets U-UC, a été mise au point au laboratoire. Il s'agit du frittage sous charge de mélanges de poudres d'uranium et de graphite en proportion convenable. La poudre d'uranium est élaborée par calciothermie de l'oxyde UO₂ suivie d'un lavage acétique à basse température. Un traitement de protection adéquat permet sa manipulation à l'air.

Les poudres d'uranium et de graphite sont intimement mélangées, puis frittées dans un matrice à double effet en graphite à une température de 900-1000° sous une charge de 200 kg/cm² pendant 3 heures. Un conditionnement particulier de la matrice permet d'éviter la rupture durant le frittage.

On obtient ainsi des éléments dont les caractéristiques sont les suivantes: 1) Homogènes à ± 5 pour cent près pour un rapport $\frac{hauteur}{diamètre} = 2$.

DUBUISSON J., HOUYVET A., LE BOULBIN E., LUCAS R., MORANVILLE C.

Report CEA nº 991.

Hot pressing of U-UC cermets and stoichiometric uranium monocarbide.

Summary. — High density fuels, either in uranium monocarbide or in U-UC cermets have been prepared on laboratory-scale, by hot pressing of mixtures of uranium powder and graphite in suitable proportions.

Uranium powder is prepared by calcium reduction of UO2 followed by an acetic leaching at low temperature. An adequate protection-treatment permits the manipulation of the powder in the open air.

Uranium and Graphite powders are intimately mixed and then hot pressed in a double effect graphite die at a temperature of 900-1000 °C under a charge of 200 kg/cm^a during 3 hours. A special design of the die avoids the breaking of the graphite during the sintering. In this way, samples are prepared, the characteristics of which are:

.

1) \pm 5 pour cent of homogeneity for a ratio $\frac{\text{height}}{\text{diameter}} = 2$.

2) Densité voisine de la densité théorique (98 pour cent).

Faible teneur en carbone non réagi (un traitement thermique ultérieur est parfois nécessaire dans le cas du monocarbure stoechiométrique pour compléter la réaction).

4) La micrographie montre: — pour les cermets à faible teneur en UC (< 2,5 pour cent C) un réseau de carbure entourant les billes d'uranium. — pour les cermets à forte teneur en UC (< 2,5 pour cent C) deux réseaux imbriqués d'UC et

uranium - pour le monocarbure, une structure à grains fins (10 microns).

5) Dans tous les cas, les rayons X révèlent une structure à grains fins sans orientation, et ne décèlent pas d'UC₂.

Quelques indications sont données sur les propriétés physiques (fatigue thermique, conduc-tibilité) et chimiques (corrosion, réaction avec les métaux de gaine).

1958

32 pages

2) almost theoretical density (98 pour cent)

3) low concentration of unreacted carbon (heat treatment of stoichiometric monocarbide can be useful for completion of reaction)

4) the micrographic examination shows:

4) the micrographic examination shows:

a network of monocarbide surrounding uranium in the case of low concentration cermets (<2,5, per cent C)
two networks intimately mixed for high concentration cermets (<2,5 per cent C)
a fine grain structure for the monocarbide (10 u).

5) In every case, the X rays examinations show a fine grain structure without any orientation, and no UC2.

Some indications are given on the physical (thermal cycling, conductibility) and chemical properties (corrosion, reaction with cladding materials).

1958

32 pages

PREPARATION PAR FRITTAGE SOUS CHARGE DE CERMETS U-UC ET DE MONOCARBURE STOECHIOMETRIQUE

par

J. DUBUISSON, A. HOUYVET, E. LE BOULBIN, R. LUCAS et C. MORANVILLE Commissariat à l'Energie Atomique.

- 1.- Parmi les composés réfractaires de l'uranium susceptibles d'être utilisés comme combustible nucléaire, le monocarbure d'uranium UC paraît capable de concurrencer l'oxyde UO₂. En effet, à l'exception d'une tenue à la corrosion généralement moins bonne les propriétés du monocarbure se comparent favorablement à celles de l'oxyde (tableau I).
- 2.- En outre, on peut améliorer aisément les propriétés mécaniques de combustibles à base de carbure, par exemple diminuer leur fragilité, augmenter leur résistance au choc thermique, sans affecter leurs propriétés neutroniques, en préparant des cermets U-UC ; dans ces cermets, l'uranium peut être lui-même allié ou non.
- 3... Enfin, le monocarbure peut constituer une addition à l'uranium améliorant sans diminuer beaucoup la réactivité, la tenue du métal sous irradiation (le carbure jouant le rôle de barrière à la recristallisation).
- 4.- Dans le but de préciser les propriétés du monocarbure stoechiométrique et des cermets U-UC à toutes concentrations en carbone, la préparation d'échantillons denses de ces produits a été mise au point. La méthode utilisée est le frittage sous charge de mélanges de poudres d'uranium métallique, pur ou allié, et de graphite.

5 -

Le présent rapport décrit le mode opératoire et les

A/CONF.15/P/1162 FRANCE

premiers résultats acquis.

- Tableau I -

	^{UO} 2	UC
Point de fusion °C	> 2.400	> 2.250
Densité théorique (Rayons X)	10,96	13,63
Densité en U g/cm ³ basée sur la densité théorique	9,67	12,97
Conductibilité thermique à température ordinaire : cal/sec-cm	~20.10 ⁻³ °C	78.10 ⁻³
Coefficient de dilatation linéaire	~10.10 ⁻⁶	$10 \ge 11.10^{-6}$

I - LES MATIERES PREMIERES.

A. - Préparation des poudres d'uranium.

6.-

La poudre d'uranium est préparée par calciothermie de l'oxyde U0,

- 7.- La réaction utilisée UO₂ + 2Ca -----> U + 2CaO s'amorce à une température voisine du point de fusion du calcium ; elle est suffisamment exothermique (Δ H = 47 Kcal/mol. à 298°K) pour élever la température dans le milieu réactionnel au-dessus du point de fusion de l'uranium. Ce dernier reste emprisonné à l'état de gouttelettes dans le squelette réfractaire constitué par la chaux produite.
- 8.- Par conséquent, après le lavage acétique destiné à éliminer la chaux, on obtient une poudre sphérique.
- 9 On décrit ci-dessous le mode opératoire pour la fabrication de poudre à l'échelle de 10 kg/jour environ.

1.- Elaboration.

10.- L'élaboration est conduite dans un four semi-continu selon le mode opératoire suivant :

le mélange réactionnel (établi dans les proportions $UO_2 + 3Ca$) est comprimé à $1t/cm^2$ environ en pastilles de 8 cm de diamètre, épaisses de quelques cm (1 pastille correspond à 150g d'uranium métal de façon à :

assurer un contact intime entre l'oxyde et le calcium,
accroître le dégagement de chaleur par unité de volume,
éliminer la pollution. En effet, durant l'élaboration

- 2 -

ces pastilles gardent leur forme et il n'est pas nécessaire d'utiliser pour contenir le mélange réactionnel un creuset qui risquerait de contaminer le métal.

- 11 Ces pastilles sont introduites par paires dans des creusets en acier inoxydable ayant la forme représentée figure I et posées sur une plaque de chaux frittée ou sur un lit de chaux calcinée. Dans le fond du creuset on dispose quelques copeaux d'U.
- 12 Les creusets sont empilés de façon à constituer un arbre coulissant et cheminent verticalement de haut en bas dans un ensemble comprenant :
 - 1) un sas à vide où l'air est évacué par les évents du creuset (figure 2),
 - 2) un four où les pastilles sont chauffées jusqu'à la températuré d'amorçage de la réaction,
 - 3) un réfrigérant,
 - 4) un dispositif de défournement (figure 3).
- 13 Dans les stades 2 et 3, le mélange réactionnel est sous atmosphère d'argon purifié (les copeaux d'uranium servant accessoirement à retenir les traces d'0₂ et N₂ susceptibles de se trouver encore dans l'argon). L'étanchéité est assurée par des joints pneumatiques auto-centreurs. (figure 4).
 - 2.- Lavage.
- 14 La fritte d'élaboration subit un concassage jusqu'à l'obtention de granulés de diamètre moyen de quelques millimètres.
- 15 On procède ensuite à un lavage dans une solution d'acide acétique 4N en évitant (par une réfrigération des parois de la cuve de lavage) que la température dépasse quelques °C; de cette façon, on élimine correctement la chaux et le calcium en excès tout en limitant l'attaque de la poudre d'U.
- 16.~ Après lavage, la poudre est filtrée, décapée par S0₄H₂ dilué (de façon à éliminer l'oxyde superficiel), puis elle subit un traitement de protection qui la rendra manipulable à l'air. Ce traitement consiste à immerger la poudre dans une solution aqueuse d'un sel d'un métal moins électroposifif que l'uranium. On utilise en général une solution de S0₄Zn à 200 g/l maintenu à pH 3-4 et à une température de 25-30°C. On maintient en contact durant 30 minutes avec agitation énergique.
- 17.- Enfin, la poudre est filtrée à nouveau, rincée à l'eau distillée, puis à l'acétone. Elle est ensuite séchée sous vide primaire (10⁻² mm de mercure), tamisée et finalement dégazée à froid en couche mince durant 24 heures sous une pression de 10⁻⁵mm

A/CONF.15/P/1162 FRANCE

de mercure. Avant l'ouverture de l'enceinte à vide on la remplit d'argon. L'uranium en poudre est alors utilisé ou stocké.

- Remarque importante -

18.- Il est possible, en suivant un mode opératoire identique de préparer des poudres d'alliages. Il suffit de conduire l'élaboration sur un mélange d'UO₂ et d'un oxyde convenable. Ce type de réaction donne par exemple des résultats satisfaisants dans le cas des poudres d'alliages U-Mo.

3.- Caractéristiques de la poudre.

19.- On obtient sinsi avec un rendement supérieur à 95 % un poudre d'uranium ayant les caractères suivants : (tableau 2 figure 5)

- Tableau 2 -

a/- Pureté (indications données en ppm)

Analyse spectrographique :

В	Cr	Cu	Fe	Mn	Ni	Si A	1		Zı	n
0,2	18	< 20	60	8	15	faibles	tr.	200	à	800

Analyse chimique : Ca < 5.000

Analyse de gaz : N₂ < 280

⁰ 2	<	250	à	600	
H2		125	à	250	

b/- Granulométrie :

Diamètre du grain (μ)	* % en poids
≼ 1	* * 1,7
de 1 à 2	1,5
de 2 à 3	2,2
de 3 à 4	2,0
de 4 à 5	3,6
de 5 à 7	• 9,2
de 7 à 10	7,3
de 10 à 15	• 4,3
de 15 à 44	68,2

c/- Densité : apparente par écoulement 9 par tassement 12

vraie de 18,3 à 18,8

B. - Graphite.

20.- On utilise un graphite naturel micronisé lavé ayant les caractères suivants : (tableau 3)

- Tableau 3 -

a/- Pureté (indications données en ppm)

Analyse spectrographique :

Al	As	В	Be	Ca	Cd	Cu	Fe	Mg	Mn	Na
10-3	10 ⁻⁵	0	10 ⁻⁶	10-4	0	10 ⁻⁵	10-3	10-4	10-4	10-5

Pb Si Sn Ti 0 10^{-4} 10^{-6} 10^{-5}

Taux de cendres 0,1 %

b/- Granulométrie < 5 μ .

c/- Densité apparente par écoulement : 0,36 par tassement : 0,71.

II - PREPARATION DES ECHANTILLONS -

A. - Mélange des poudres.

- 21.- La qualité des produits préparés dépend directement de la qualité du mélange poudre d'uranium, poudre de graphite. La réalisation de mélanges intimes est difficile du fait des différences de densité des deux constituants et de la forme sphérique de la poudre d'uranium.
- 22.- Des résultats satisfaisants ont été obtenus avec un mélangeur constitué par des pales en forme de soc de charrue montées sur un arbre et toumant dans une enceinte cylindrique de façon à imprimer à la poudre un mouvement tourbillonnaire. On parvient après une dizaine de minutes d'agitation dans cet appareil à un mélange plus homogène que ceux qu'on obtient par diverses autres méthodes avec des temps plus longs (mélangeur

cubique par exemple).

B. - Technique du frittage.

23.- Le mode opératoire est le suivant :

le mélange des poudres est versé dans une matrice en graphite à double effet, conditionnée comme le montre le schéma de la figure 5). La matrice proprement dite est frettée par un tube épais constitué d'un matériau ayant les propriétés suivantes :

- 1) bonnes propriétés mécaniques à chaud,
- 2) coefficient de dilatation voisin de celui du graphite.
- 24.- Ce tube peut donc être en métal (Mo, W) carbure (WC, TiC) ou céramique (silice) et a pour effet d'épauler le graphite à chaud de façon à permettre le frittage sous charge élevée.
- 25 L'ensemble rempli de poudre est porté, après une compression à froid sous 500 kg de charge, dans une colonne de pressage elle-même disposée dans un four maintenu sous vide comme représente la figure 6.
- 26.- Le mode de chauffage peut être indifféremment le chauffag par résistance, par induction ou par effet Joule direct (il va sans dire que pour ces deux derniers moyens de chauffage on utilisera préférentiellement un tube de silice pour ses propriétés isolantes).
- 27 La mise en forme et la réaction sont menées dans les conditions suivantes :
 - 1) dimensions finales des échantillons :

diamètre : 30 mm - hauteur : 50 à 60 mm

- 2) atmosphère :
 vide : p < 10⁻⁴ mm de mercure maintenu durant toute
 l'opération.
- 3) charge appliquée :

1.500 kg à l'aide du verin + quelques dizaines de kg dus à la pression atmosphérique.

4) régime thermique :

il est sensiblement le suivant :

montée en 2h jusqu'à la température du frittage (900 à 1.000°C) avec un ralentissement entre 350 et 400°C (dégazage de la poudre).

- maintien en température et en charge durant plusieurs heures (temps variant entre 1 et 7h suivant les essais).
- refroidissement naturel au sein du four.
- 28 Toutes ces grandeurs sont contrôlées ainsi que la diminution de longueur de l'échantillon, au cours du frittage.
- 29... La figure 7 illustre schématiquement les variations simultanées des différents paramètres au cours du temps.
- 30 → Après refroidissement, on procède à l'éjection, en général facile, de l'échantillon.

III - TECHNIQUES DE CONTROLES UTILISEES -

1.- Densité.

31.- La densité des pièces frittées est mesurée par la méthode classique du picnomètre sur un échantillon usiné par carottage soit avec un outil diamanté soit aux ultra-sohs.

2.- <u>Dureté</u>.

32.- La dureté est mesurée avec une machine "Rockwell" type "Superficial" en utilisant des charges de 15, 30 ou 45 kg. Afin de pouvoir comparer les résultats, les indications obtenues sont converties en dureté Vickers. Pour un même échantillon la mesure de la dureté dans différentes zones renseigne sur son homogénéité. Dans le cas d'échantillons différents ayant subi des traitements identiques ou voisins les mesures de dureté permettent des comparaisons rapides. Enfin, la dureté donne une idée du degré d'avancement de la réaction U + C.

3.- Analyses.

- 33.→ Les teneurs en carbone sont déterminées par absorption du CO₂ produit par la combustion :
 - d'une prise prélevée dans l'échantillon pour la détermination du carbone total,
 - du résidu d'attaque à chaud par l'acide nitrique normal pour la détermination du carbone libre.

4.- Métallographie.

34.- Les surfaces à examiner sont polies mécaniquement à l'aide de papiers abrasifs de finesse croissante, puis avec de la poudre A/CONF.15/P/1162 FRANCE

de diamant de 1 à 5 μ .

35 - Le polissage mécanique est suivi d'une attaque électrolytique dans un bain acétochromique dont la composition est la suivante :

> - 50 g CrO_3 - 600 cm³ CH_3 COOH cristallisable - 60 cm³ H_2O

- 36 Les durées d'attaques sont les suivantes :
 45 secondes de polissage sous 60 volts,
 15 minutes d'attaque cathodique sous 20 volts.
- 37.- Dans ces conditions, on observe que l'uranium métallique reste pratiquement inaltéré cependant qu'on révèle la structure du carbure sous la forme de grains colorés.
- 38... L'observation au microscope est faite :
 - en lumière naturelle pour déterminer la répartition et la nature des inclusions,
 - en lumière polarisée pour révéler les joints de grains d'uranium et déterminer la taille de ces grains.
- 39.- Enfin pour déterminer la nature des phases présentes, on a parfois recours à la microdureté.

5.- Microscopie électronique - Rayons X.

40.- Ces examens complètent les observations faites au microscope optique notamment en ce qui concerne l'orientation et la taille des grains (rayons X, méthode en retour) ainsi que la nature et l'importance des inclusions (microscopie électronique). En outre, les Rayons X permettent de déceler la présence d'impuretés telles que UC₂.

6.- Cyclage thermique.

41 - Afin de prévoir dans toute la mesure du possible le comportement sous irradiation, des échantillons prélevés dans les pièces frittées ont subi le cyclage thermique dans les conditions suivantes :

- 1.000 cycles entre 20 et 520°C.

IV - RESULTATS -

- 42... Les investigations ont été conduites sur toute l'échelle des compositions possibles de 0,5 en 0,5 % entre 0 et 4,8 % de graphite. Les conditions de frittage ont été dans toute la mesure du possible maintenues identiques pour tous les échantillons.
 - 1.- Densité.
- 43. On trouvera ci-joint (figure 8) la courbe des densités obtenues comparées aux densités théoriques. Pour cette courbe, seule varie la teneur en carbone, les conditions de frittage étant les suivantes :
 - température égale à 900°C
 - charge totale appliquée 1.500 kg
 - durée du frittage égale à 3h.
- 44.- On constate que la densité est toujours supérieure à 98 % de la densité théorique, la différence n'étant pas due uniquement à des porosités, mais aussi à la présence d'oxygène, d'azote et d'un peu de graphite non réagi.

9 1 % C 1	1 10,5%	r 1 1%	1,5%	2%	2,5%	3%	3,5%	4%	4,5%	1 4 , 8% 1 1 4 , 8% 1
1 % UC	10,4	20,8	31,2	41,6	52	62,5	72,9	83,3	93,8	100
Pensité Densité théorique	1 18,2	1 17,57	16,93	16,34	15,75	15,27	14,78	14,33	13,9	13,63, 13,63,
: ¹ Densité ² obtenue ;	18 18	17,3	16,7	16,1	15,55	15,04	14,56	14,1	13,68	13,4 ₁
9 % de la 9 densité 9 théorique 9	1 1 198,9 1	98,4 1	98,6	98,5	98,7	98,5	98,6	98,5	98,4	198,31 198,31

2.- Dureté.

45.- Comme on l'a dit plus haut la mesure de la dureté permet d'estimer l'homogénéité d'un échantillon. Pour matérialiser

../..

les résultats on les a présentés sous forme d'une courbe de Gauss, la courbe correspondant à un échantillon donné étant d'autant plus "pointue" que l'échantillon est plus homogène. Les courbes jointes (figures 9 - 10) montrent que les variations de dureté sont comprises entre 5 et 10 % autour de la valeur moyenne. La dureté moyenne (tableau 5) croît d'ailleurs avec le temps de frittage sans que l'homogénéité se modifie profondément (figure 11).

- Tableau 5 -

- teneur en carbone : 3 %
- température de frittage : 950°C

Dureté Vickers.	t 1	n N	x 100	*	
	1 h	• 2h	• 3h	4h	7h
	1	1	7 1	1	t t
470	4,3	t	1	t	1
485	1 13	1 1	1	t :	t t
500	8	1	1	t i	I
510	47,9	t t	1 1	t :	t t
515	t	• 21,6	1	:	ı
5 30	1 7,4	1 1	8,7	4,3	1
540	8	61	8	t 't	1
545	17,4	t t	t · · ·	4,3	
560	1	17,4	1	i 13	4,6
570	1	1	65,3	t :	
580	ť	• •	1	• •	13,6
585	t ·	t •	1 ·	52,3	
600	1	t	• 13	t 1	- 1
605	1	t •		t 1	59
615	•	•	• • 13	17,4	1
635	1	1	1	8.7	22.8
	т : † :	• •	1	• = 7 * 1 t 1	1

t<u>n</u> <u>nombre de mesures donnant la même dureté</u> N **Nombre total** de mesures de dureté.

••/••

â.

46.-

.

D'autre part, on constate, comme prévu, que la dureté s'accroît avec la teneur en graphite. La courbe des duretés en fonction de la teneur en graphite (tableau 6 - figure 12) s'applique aux échantillons ayant servi à établir la courbe des densités. Elle se compare favorablement avec les résultats publiés par BARNES, MUNRO, THACKRAY, WILLIAMS et MURRAY, dans Metallurgy and Fuels.

- Tableau 6 -

- Dureté (Vickers) pour échantillons frittés 3h à 900°C

% C	0,5	 1 1	1,5	2	2,5	3	3,5	4	4,5	4,8
% UC	10,4	20,8	31,2	41,6	52	62,5	72,9	83,3	93,8	100
Résultats obtenus	350	435	495	545	580	620	650	675	695	700
Résultats "Metallurgy and Fuels"	300	335	365	370	415	430	440	450	455	460

3.- Analyse.

- 47.- Les analyses montrent qu'au-delà de 2 à 3 heures le temps de frittage a peu d'influence sur le degré d'avancement de la
 - Tableau 7 -

(tableau 7).

1 ⁻ 1 1 1	Température de frittage	Durée de frittage	Carbone total	Carbone libre
1 1 1 1	770°C 950°C	3 h 2 h	2,49 % 2,98 %	0,18 %
1 1 1	950°C 1000°C	7 h 3 h	2,90 %	0,017 %
1				

réaction. Par contre l'influence de la température est notable

A/CONF.15/P/1162 FRANCE

4.- <u>Métallographie</u>.

- 48.- L'aspect micrographique des échantillons est différent suivant qu'il s'agit de cermets à faible teneur en carbone, de cermets à forte teneur ou de monocarbures stoechiométriques.
 - a/ <u>Cermets à faible teneur en monocarbure</u> (jusqu'à 2 % C environ) :
- 49.- Se présentent sous l'aspect d'un réseau de monocarbure entourant les globules d'uranium (les phases ont été déterminées par microdureté - figure 13). L'observation en lumière polarisée montre que la structure n'est pas à grains fins, c'est-à-dire qu'il existe une parenté d'orientation entre différents globules voisins. (figures 14 et 15).

b/ - Cermets à forte teneur en monocarbure :

50.- Se présentent sous l'aspect de deux réseaux imbriqués. La structure est à grains fins, sans orientation. (figure 16).

c/ - Monocarbures stoechiométriques :

51.- Se présentent sous l'aspect d'agrégats polycristallins à grains très fins (10 μ) (figure 17).

5. -Microscopie électronique - Rayons X.

52 - Les diverses observations confirment les résultats de l'étude micrographique. Les rayons X ne décèlent pas d'UC₂ (figure 18) et la présence d'oxygène et d'azote est masquée par l'isomorphisme de UO et UN avec UC. Les clichés obtenus par la méthode en retour sur les cermets à forte teneur se présentent sous forme d'anneaux résolus en taches ponctuelles ce qui confirme la structure non orientée et à grains fins observée au microscope (figure 19).

6. -Cyclage thermique.

- 53 Les investigations concernant la tenue au cyclage thermique ont porté sur les cermets à forte teneur.
- 54 Avant de procèder aux essais de cyclage les propriétés dilatométriques ont été étudiées de façon à prévoir le comportement du produit à la fatigue thermique.
- 55.- Comme on peut le voir sur la courbe jointe (figure 20) le parallélisme des courbes de chauffe et de refroidissement en phase α laisse augurer une excellente teme au cyclage 20-520°C.

56.- Effectivement les échantillons ayant subi 1.000 cycles se

sont parfaitement comportés. On n'a observé ni allongement, ni peau d'orange, ni crique (figure 21)

7.- Comportement à la corrosion par le gaz carbonique.

- 57.- Des résultats partiels sont connus à ce jour, nous pouvons conclure que la tenue à la corrosion par le CO₂ des cermets U-UC est sensiblement analogue à celle de l'uranium Par contre, le monocarbure stoechiométrique semble se comporter beaucoup mieux.
- 58.- (Par exemple, un échantillon nu (Ø 6mm H 15mm) ayant séjourné 6h à 500°C dans le CO₂ pur subit une attaque superficielle correspondant à un taux d'oxydation de 0,6 %, alors qu'un échantillon d'uranium pur donne dans les mêmes conditions un taux d'oxydation de l'ordre de 6 %).

8.- Autres essais.

59.- Divers essais sont en cours concernant les propriétés physiques et mécaniques, la tenue sous irradiation, la compatibilité avec divers métaux de gaine, le cyclage thermique haute température, la corrosion par les métaux liquides. Ce rapport ne peut en faire état, mais quelques résultats seront donnés au moment de la Conférence.

*

- CONCLUSION -

- 60.- La préparation des combustibles de haute densité soit en monocarbure d'uranium, soit en cermets U-UC a été mise au point à l'échelle du laboratoire. Les essais, encore fragmentaires et incomplets, entrepris dans le but de juger des qualités des produits préparés ont donné des résultats encourageants. De nombreux points restent à éclaircir tant sur le plan théorique que sur les plans d'utilisation pratique et de fabrication à grande échelle.
- 61.- L'intérêt de la méthode exploitée réside dans la grande variété des produits qu'elle permet de préparer. Outre les siliciures, citons comme dernier exemple la possibilité de combiner les effets d'un élément d'alliage avec la structure particulière des cermets U-UC; c'est ainsi que par le procédé décrit on a pu préparer un mixte U-Mo-C à 3 % de graphite, tel que l'uranium présent à l'état métallique soit allié à 2 % de Mo et entouré d'un réseau de carbure. (figure 22).

 D'après les conclusions du rapport AERE M/R 2.258 de BUCKLEY, HARDING et WALDRON (*) ce cermet devrait présenter une tenue remarquable au cyclage α β et par suite supporter une température d'irradiation supérieure à celles qui sont communément appliquées à l'uranium.

- BIBLIOGRAPHIE -

- BARNES, MUNRO, THACKRAY, WILLIAMS, MURRAY <u>The prebaration</u>, <u>fabrication and properties of uranium carbide and</u> <u>uranium-uranium carbide cermets</u> - Metallurgy and Fuels-Pergamon-Press - London (1956).
- BUCKLEY, HARDING, WALDRON <u>Dimensional changes of metals through</u> $\alpha - \beta$ phase cycling. - AERE M/R 2258.

FRISBY - Clichés de rayons X - Microscopie électronique.

(*)"Les alliages à 2 % de molybdène et les cermets U-UC contenant plus de 3 % de graphite montrent une stabilité nettement améliorée au eyelage α-β.

_ _ _ _ _ _ _ _ _ _ _ _ _



Fig.1



ł



- 16 -



Fig 3







fig. 5



Fig 6



- 21 -

ì



- 23 -

ţ



÷ <u>h</u>×100 ⊾60 Fig. 10 **47/de** C 3h-1.000 °C . L45 -30 _15 Durete VICKERS 3 500 550 600 540 ţ

A/CONF 15/P/1162 FRANCE

f

ANSON & NONTBOLFIE

.



ŝ

A/CONF 15/P/1162 FRANCE



;





10 u

;

1

1

FIG. 13

Empreintes de microdureté sur un échantillon à 3 % de carbone (charge 30g).

- 27 -



υ





Р 1

÷

3h à 900°C 0,5 %0



40.4 FIG. 17

4,8 %C

2h à 1000°C



A/CONF.15/P/1162 FRANCE



j



2,5% C FIG 19

2^h 30 a 800° C



3 % C

3^ha 1000°C

1000 Cycles 20-520°C

FIG 21

