

CEA 1665 - TARDIVON D.

ETUDE CRISTALLOGRAPHIQUE DU REVENU DE L'URANIUM ECROUI  
PAR IRRADIATION (1960).

Sommaire. - Nous avons étudié le phénomène de revenu par irradiation d'échantillons d'uranium écroui, en observant l'affinement des raies de diffraction de rayons X (114) et (133) en fonction du taux d'irradiation.

Parallèlement nous avons étudié l'élargissement de la raie (114) d'un uranium recristallisé en fonction du taux d'irradiation.

La température d'irradiation est toujours restée inférieure à 60 °C.

De ces deux processus le premier est le plus rapide.

Nous avons observé une saturation du revenu par irradiation pour un flux de  $10^{18}$  n/cm<sup>2</sup> ; on en déduit une valeur du volume de la perturbation créée par un atome de fission égale à  $10^{-17}$  cm<sup>3</sup>.

CEA 1665 - TARDIVON D.

CRYSTALLOGRAPHIC STUDY OF THE TEMPERING BY IRRADIATION  
OF COLD-WORKED URANIUM (1960).

Summary. - We have studied the phenomenon of the tempering of cold-worked uranium under the action of irradiation by observing the narrowing of the (114) and (133) X-ray diffraction lines as a function of the irradiation level.

Simultaneously we have studied the broadening of the 114 line of a recrystallised uranium as a function of the irradiation level. The irradiation temperature was always less than 60 °C.

Of these two processes, the first is the fastest.

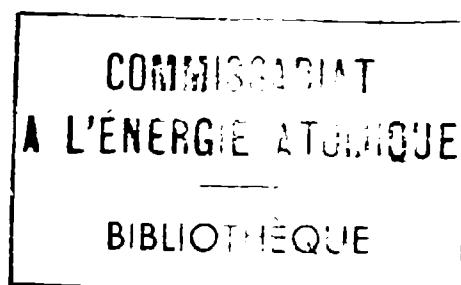
We have observed a saturation of the irradiation tempering for a flux of  $10^{18}$  n/cm<sup>2</sup> ; we deduce from this the dimensions of the volume perturbed by one fission atom to be  $10^{-17}$  cm<sup>3</sup>.

B

PREMIER MINISTRE  
COMMISSARIAT A  
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

**ÉTUDE CRISTALLOGRAPHIQUE  
DU REVENU DE L'URANIUM ÉCROUI  
PAR IRRADIATION**

PAR



D. TARDIVON

Rapport CEA N° **1665**

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

**- RAPPORT C. E. A. N° 1665 -**

**ETUDE CRISTALLOGRAPHIQUE DU  
REVENU DE L'URANIUM ECROUI PAR IRRADIATION**

**par**

**D. TARDIVON**

**Stagiaire au C. E. A.**

**- Avril 1959 -**

## 1° INTRODUCTION

KONOBEEVSKY a déjà signalé la diminution de la largeur des raies de diffraction X de l'uranium écroui après une irradiation en pile [ 1 ] . Il a aussi rapproché cet effet de l'irradiation de celui d'un revenu à une température de 320°C. Plus anciennement MADSEN [ 2 ] avait déjà montré qu'un uranium écroui s'adoucit par irradiation.

Nous avons cherché à vérifier le phénomène de revenu par irradiation et à le préciser en mesurant la température de l'échantillon en pile ainsi que le flux intégré.

## 2° METHODE D'EXAMEN

L'étude a été faite avec un appareil de cristallographie conçu pour les matériaux irradiés et qui a déjà été décrit [ 3 ] . La méthode utilisée est celle de BRAGG BRENTANO. Le détecteur est un compteur GEIGER-MULLER et le rayonnement X celui du cuivre (Cu K $\alpha$ ).

Le nombre des raies que l'on peut choisir est petit. Il faut se placer aux grands angles pour obtenir une meilleure sensibilité aux variations de paramètres et ne pas choisir de raies trop rapprochées de leurs voisines; ceci amène à choisir les raies (114) et (133) . Pour ce qui est des intensités, nous les avons repérées en superposant le diagramme de l'aluminium à celui de l'uranium, ce qui s'obtient en posant une couronne mince de ce métal sur l'échantillon. Pour chaque échantillon, nous donnons le diagramme avant irradiation, auquel nous comparons le diagramme après irradiation.

## 3° FABRICATION DES ECHANTILLONS

Plusieurs considérations nous ont guidés dans le choix des échantillons :

- taux d'écrouissage important,
- reproductibilité de cet écrouissage,
- échauffement minimum en pile en réduisant la masse d'uranium,
- homogénéité de l'écrouissage en profondeur. Cet homogénéité est nécessaire car malgré les précautions prises, les échantillons s'oxydaient plus ou moins en pile; il convenait alors de pouvoir les désoxyder par un léger polissage électrolytique, sans atteindre une couche de texture différente.

Nous avons étudié deux sortes d'échantillons :

- a) Echantillons écrouis : Nous avons laminé à froid une règle d'uranium 5 x 5 mm prélevée dans une barre déjà laminée à chaud puis à froid. Nous avons réduit son épaisseur de 5 mm à 2 mm. Nous en avons tiré des échantillons mesurant sensiblement 16 x 8 x 2 mm et pesant environ 5 g.
- b) Echantillons recristallisés : Nous avons prélevé directement dans la règle de 5 x 5 mm des échantillons de 16 mm de long qui ont été recuits deux fois à 500°C pour obtenir une recristallisation en grain fin.

## TECHNIQUE D'IRRADIATION

### a) Dispositif d'irradiation

Les échantillons étaient placés dans des containers en magnésium comme l'indique la figure 1.

On remarque le ressort de zirconium qui applique l'échantillon entre deux cales de magnésium pour faciliter l'évacuation de la chaleur dégagée. Ce container est rempli avec de l'hélium destiné à éviter l'oxydation de l'échantillon et à faciliter les échanges thermiques.

Ces containers étaient irradiés sous cette forme à Zoé ou placés dans un dispositif spécial à EL 2.

Nous avons utilisé dans cette dernière pile un appareil essentiellement constitué d'une chemise de refroidissement à eau entourant un tube où était introduit le container. On soufflait un faible débit d'hélium ou de gaz carbonique pour faciliter les échanges de chaleur.

### b) Température d'irradiation

Afin de déterminer une température d'irradiation à laquelle le métal écroui n'évolue pas, nous avons effectué deux recuits à 100°C et à 62°C. Nous avons observé un changement de largeur de raie par un recuit de 94 h à 100°C mais, par contre, rien ne s'est produit après 6 jours à 62°C.

Nous contrôlions la température maximum de l'échantillon en plaçant contre lui un fil de paraffine (température de fusion 62°C) et en nous assurant que celui-ci n'avait pas fondu après irradiation.

c) Mesure du taux de combustion

Pour les échantillons irradiés à Zoé, les services de la pile nous ont fourni le flux intégré avec une bonne approximation.

Pour les échantillons irradiés à EL 2, nous avons calculé le flux intégré à partir des données de fonctionnement de la pile et de la position dans le canal, celui-ci ayant été étalonné à l'état vide.

Enfin les rayons X ne pénètrent que très peu dans l'échantillon. On a donc cherché à savoir si le taux d'irradiation était le même en surface que dans la masse de l'échantillon. Une analyse chimique faite sur des fils de 2/10 mm et sur des cubes de 5 mm d'arête a montré que les valeurs du flux intégré étaient les mêmes à 2 % près. Ceci prouve que dans ces canaux il n'y a que très peu de neutrons épithermiques et que le taux de combustion ne variait que très peu avec la profondeur.

De toutes façons, les diagrammes ayant été faits sur des échantillons analogues sont comparables entre eux.

5° RESULTATS

a) Echantillons écrouis

Nous avons tout d'abord étudié l'affinement de la raie du métal écroui en fonction du taux d'irradiation.

On trouvera à la fin de ce texte les diagrammes correspondant aux échantillons ci-après. On comparera les raies avant et après irradiation.

N° d'échantillon	Flux intégré	Lieu d'irradiation
3	$3,4 \cdot 10^{16}$	Zoé
13	$4,3 \cdot 10^{16}$	"
8	$6,6 \cdot 10^{16}$	"
11	$8 \cdot 10^{17}$	EL 2
9	$1 \cdot 10^{18}$	"

On remarquera ainsi que les raies s'affinent lorsque le taux de combustion augmente. En particulier un ressaut apparaît sur la courbe qui correspond au dédoublement de la

raie  $K\alpha$ .

Il n'y a pratiquement plus d'effet d'affinement sensible pour un taux d'irradiation supérieur à  $10^{18}$  neutrons/cm<sup>2</sup>, il semble qu'il y ait saturation.

Nous avons mesuré l'aire de la raie (114) avant et après irradiation pour les échantillons 3 et 11. Pour ce dernier échantillon, nous avons corrigé l'intensité de la raie, sa surface irradiée étant plus grande. Nous avons ainsi observé que l'aire était constante et indépendante de l'irradiation.

#### b) Echantillons recristallisés

Nous venons de voir que pour une certaine valeur du taux d'irradiation, la largeur de la raie tend à se stabiliser à une valeur intermédiaire entre la largeur de l'uranium écroui et de l'uranium non écroui. Nous avons pensé que, partant d'un échantillon non écroui, une faible irradiation en pile augmenterait peut-être la largeur de la raie  $\alpha$  (114) et que nous tendrions à nous rapprocher de la limite précédente.

Nous avons irradié plusieurs échantillons dont nous présentons les diagrammes à la fin de ce texte. Ils correspondent à des flux intégrés indiqués dans le tableau ci-après.

N° d'échantillon	Flux intégré	Lieu d'irradiation
R 4	$3,7 \cdot 10^{16}$	Zoé
R 1	$5 \cdot 10^{17}$	EL 2
R 2	$9 \cdot 10^{17}$	EL 2

Nous avons remarqué un effet d'élargissement sensible (regarder en particulier la position du minimum de la courbe correspondant à l'intervalle  $K\alpha_1 - K\alpha_2$ ).

Cet effet croît avec le taux d'irradiation mais beaucoup plus lentement que l'effet d'affinement des raies.

#### 6° INTERPRETATION DES RESULTATS

Le phénomène de revenu par irradiation est probablement complexe. Les résultats obtenus montrent qu'un grand nombre de dislocations ont disparu ou se sont réarrangées, augmentant ainsi la perfection du réseau. Dans le même temps les produits de fission ont produit un grand nombre de défauts ponctuels qui ont entraîné des déformations du métal comme le montre une irradiation prolongée.

On peut se demander si les "pointes de fission" agissent par l'intermédiaire des défauts ponctuels qu'elles créent - ceux-ci migrant vers les dislocations qui peuvent alors "escalader" les barrières qui les retiennent - ou si, au contraire, c'est seulement la partie de la pointe de fission où les perturbations sont intenses qui modifie l'arrangement des dislocations. Seules des expériences faites à différentes températures permettraient de résoudre ce point.

De celles qui ont été faites, on peut simplement déduire deux résultats :

a) Des deux processus concurrents du revenu par irradiation et des distortions dues à l'irradiation, le plus rapide est le premier; il suffit pour cela de comparer le changement de forme des raies 114 pour un flux de  $10^{18}$ .

b) On peut calculer le volume de la perturbation créée par un atome de fission et dans lequel les dislocations disparaissent (à un degré non déterminé). Admettons que la saturation du revenu est obtenue par un flux de  $10^{18}$ . En remarquant que le moyen d'observation utilisé n'est guère sensible et que la saturation peut correspondre à une transformation à 90 % du métal, on obtient :

$$1 - 0,9 \simeq \exp(-nv)$$

$v$  étant le volume des pointes de fission exprimé en  $\text{cm}^3$  et  $n$  le nombre de celles-ci par  $\text{cm}^3$  pour un flux de  $10^{18}$ , soit environ  $2 \cdot 10^{17}$ . On trouve ainsi un volume  $v$  de l'ordre de  $10^{-17} \text{ cm}^3$ .

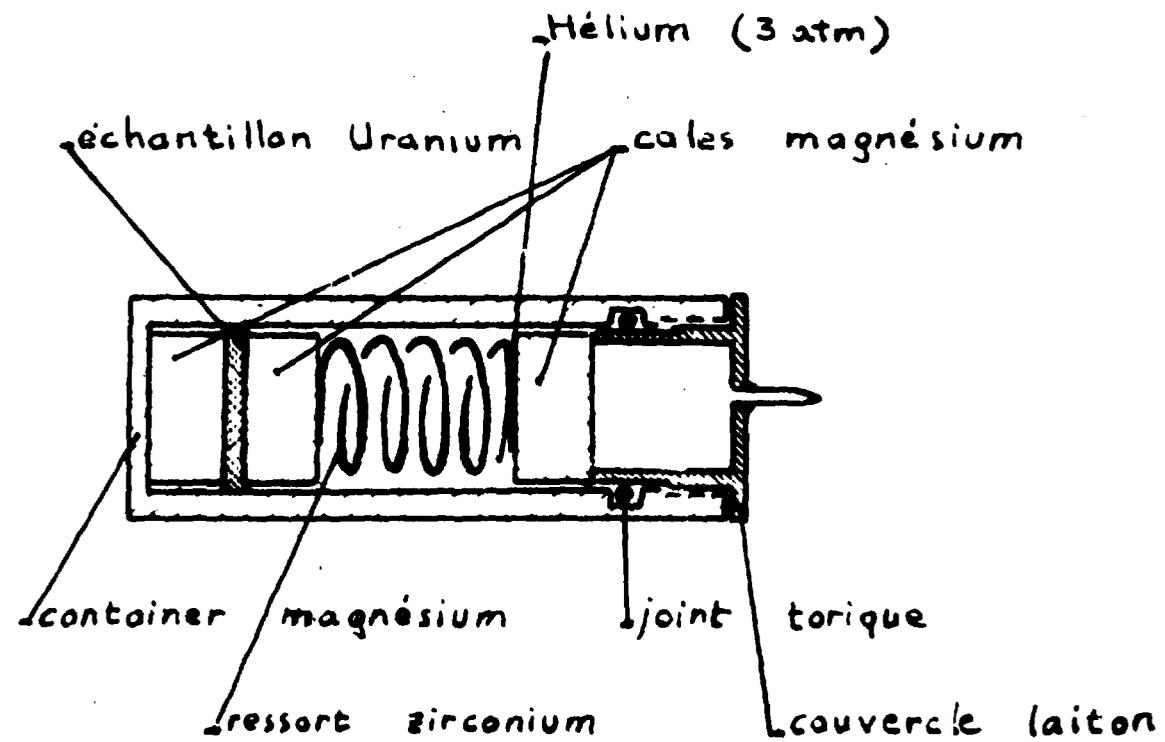
On remarquera que le volume ainsi obtenu est nettement inférieur à celui que l'on trouve par des mesures de résistivité [1][4], mais se rapproche de ceux qui ont été fixés par l'étude de l'homogénéisation des alliages UMo à 10 % en poids de Mo.

#### Remerciements.

Nous remercions ici M. FRIEDEL et M. BLIN des précieux conseils qu'ils nous ont donnés au cours de ce travail et M. MAY (du Service des Radioéléments Artificiels) qui s'est chargé du comptage des fils irradiés.

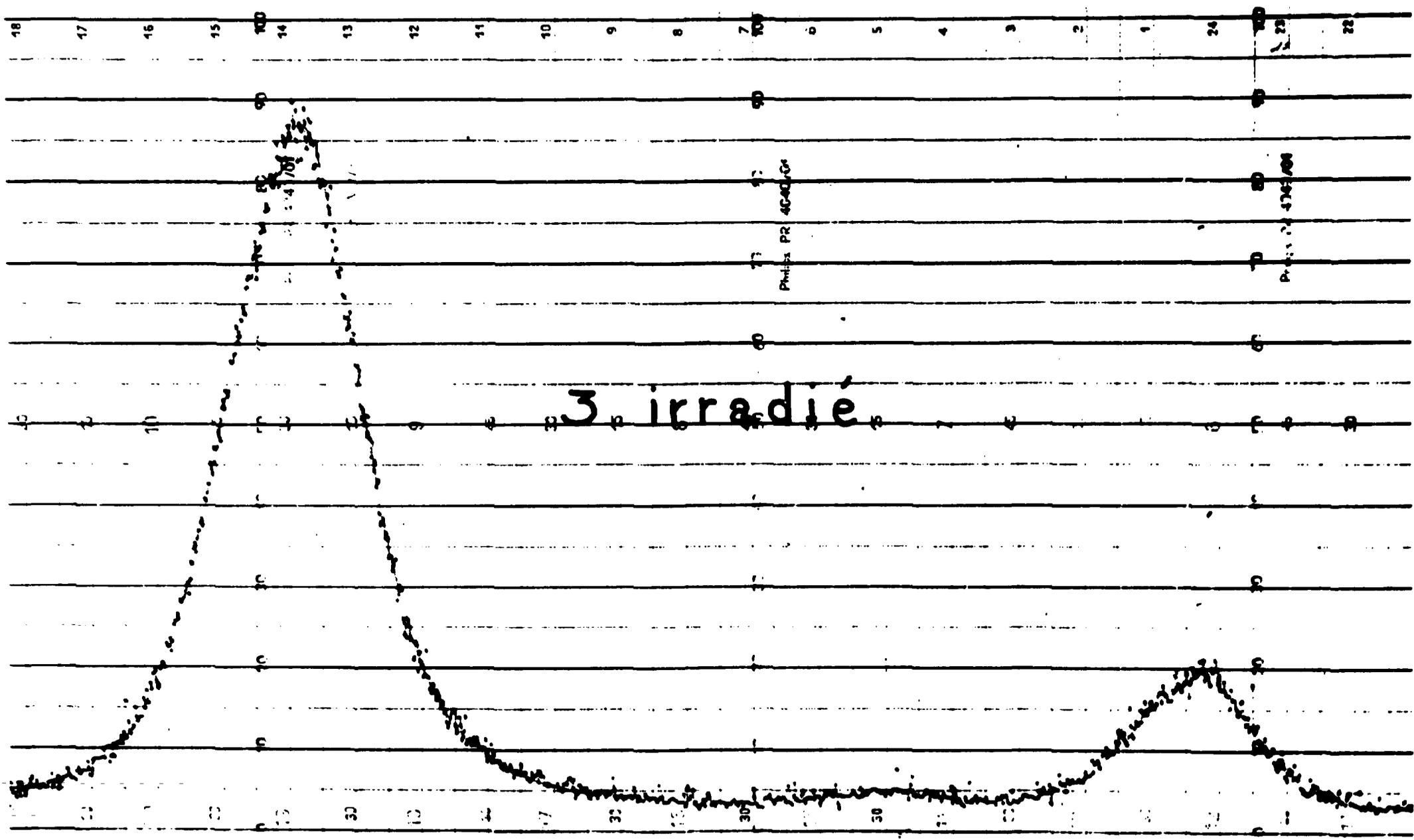
## BIBLIOGRAPHIE

- [ 1 ]            KONOBEVSKY et al  
On some physico chemical processes occurring in fissionable  
materials under irradiation.  
Rapport de la Conférence de Genève (1958) n° P/2192
- [ 2 ]            MADSEN P. E.  
Effect of irradiation on the hardness of  $\alpha$  uranium.  
A E R E M/R 741
- [ 3 ]            BUSSY P. et CHEREL G.  
Sixth hot laboratories and equipment.  
Conférence Chicago 1958
- [ 4 ]            QUERE Y. et NAKACHE F.  
Evaluation du volume d'une pointe de fission dans l'uranium.  
Journal des Matériaux Nucléaires (à paraître).



longueur 65 mm  
 $\phi$  24 mm

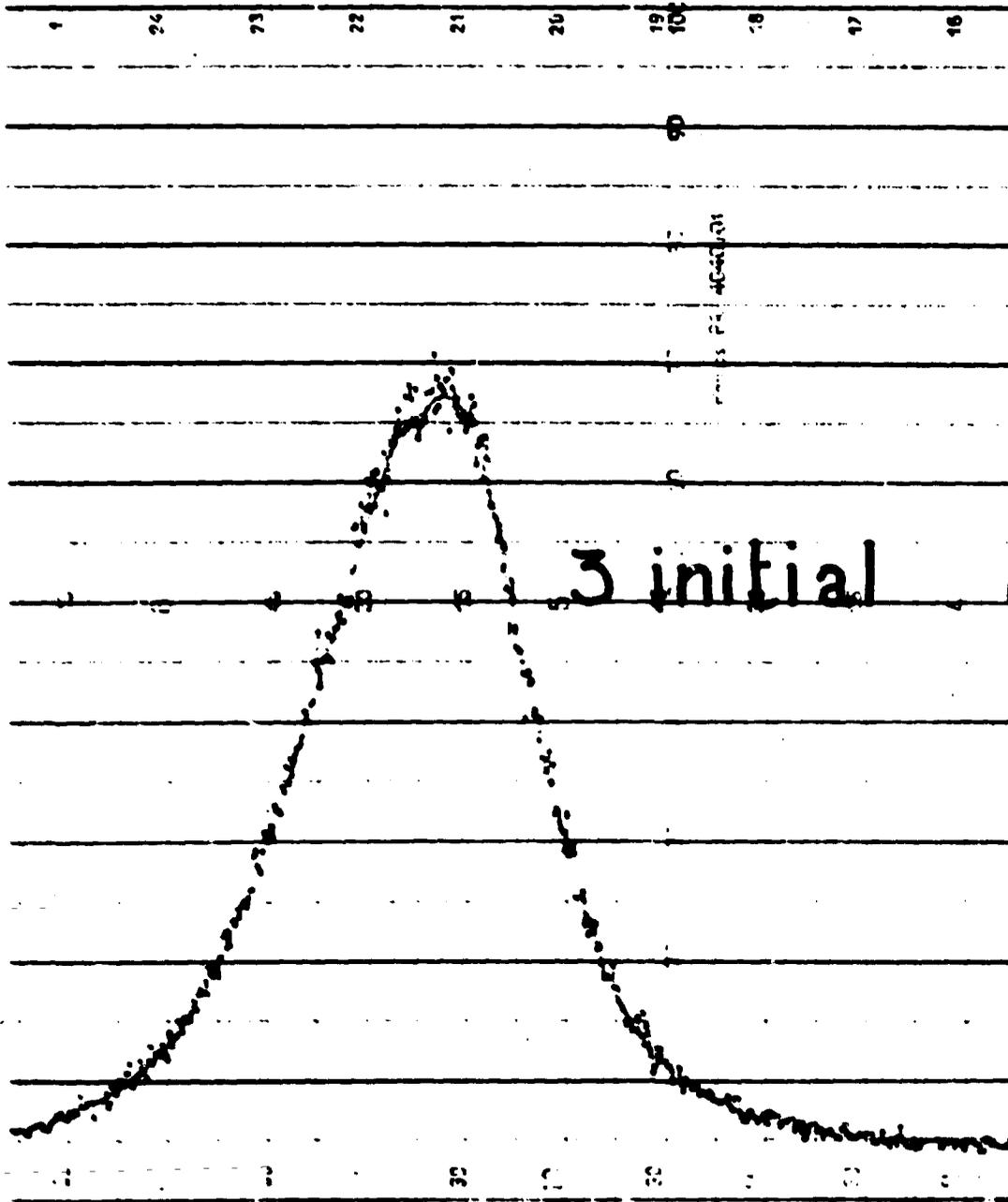
Fig 1



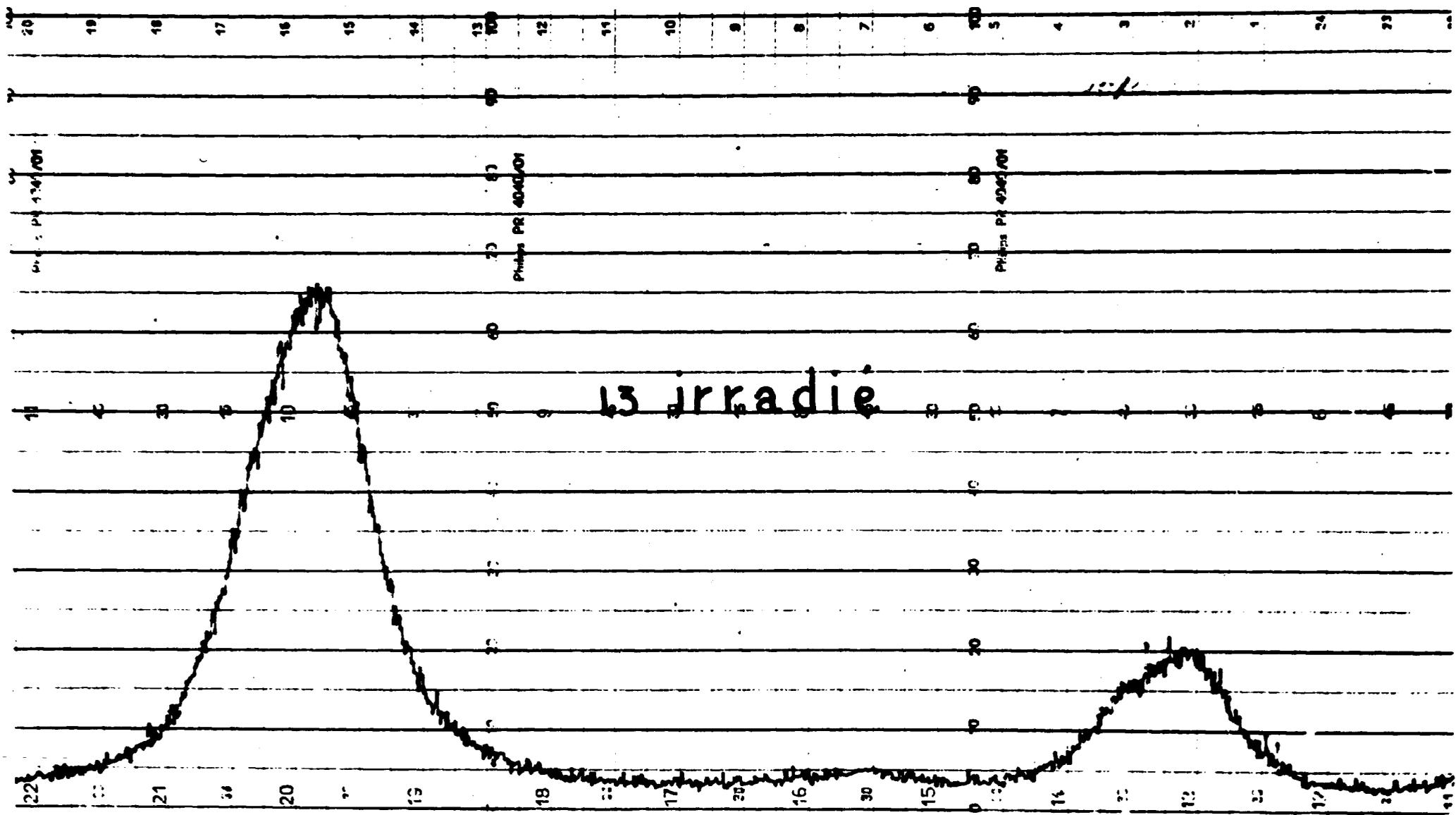
Raie C 114)

Raie C 133)

3. irradié

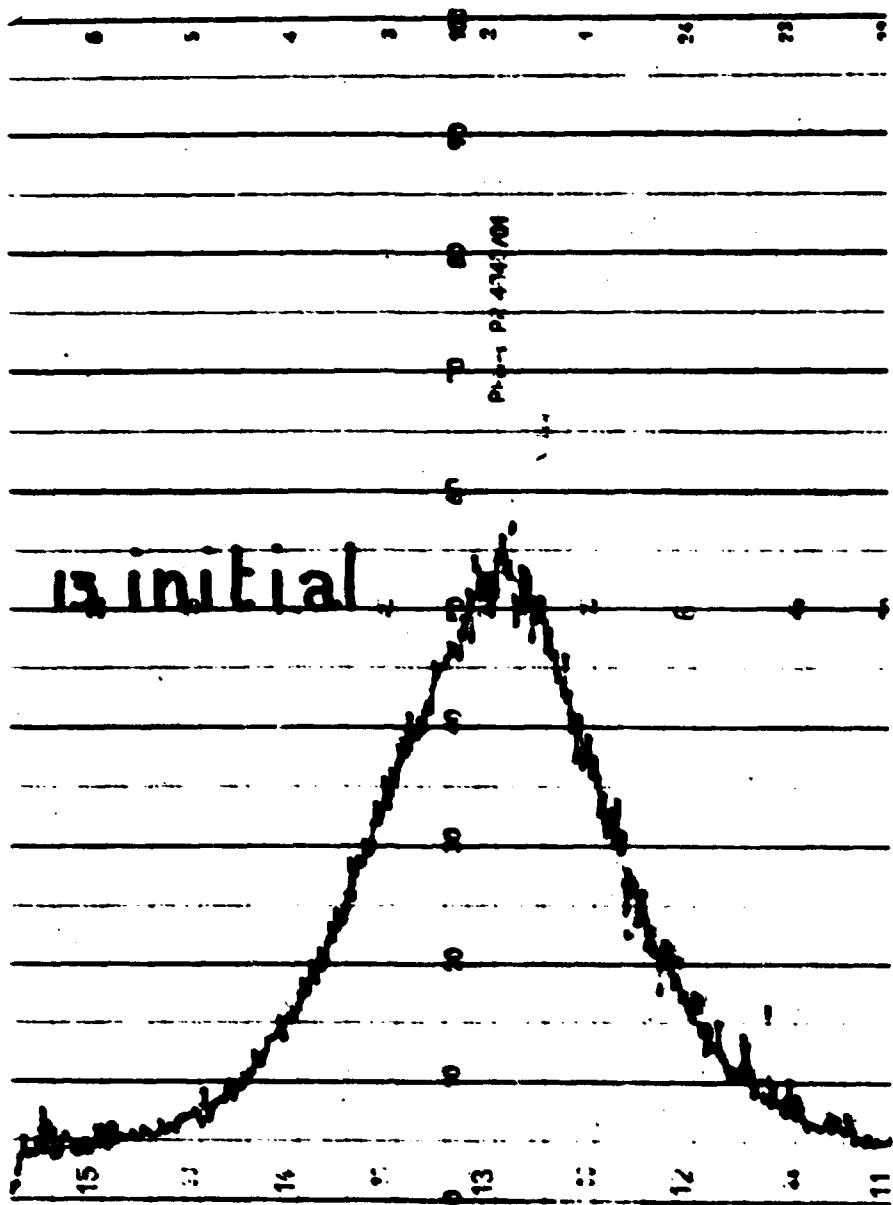


Raie C 114)

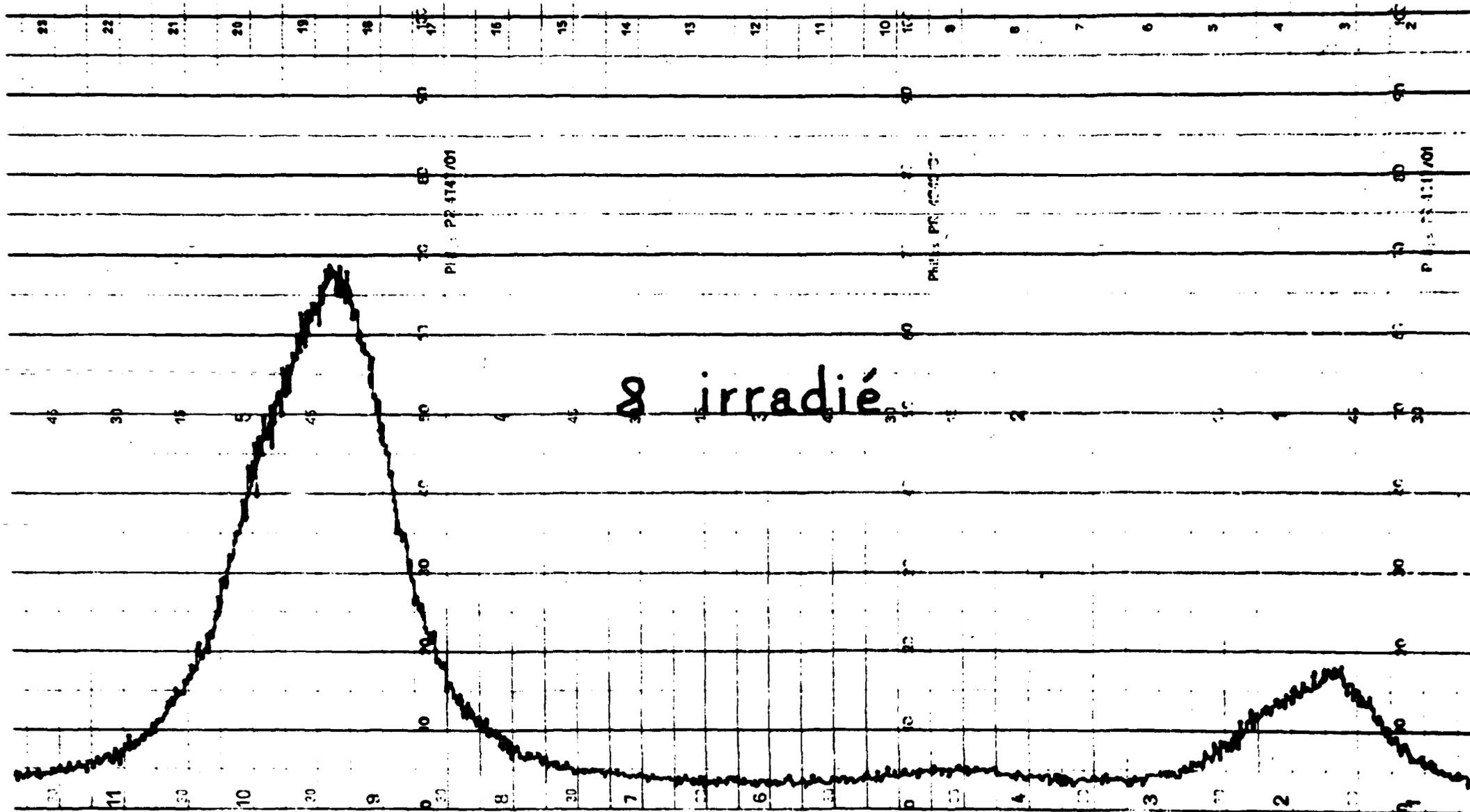


Raie C 114)

Raie C 133)

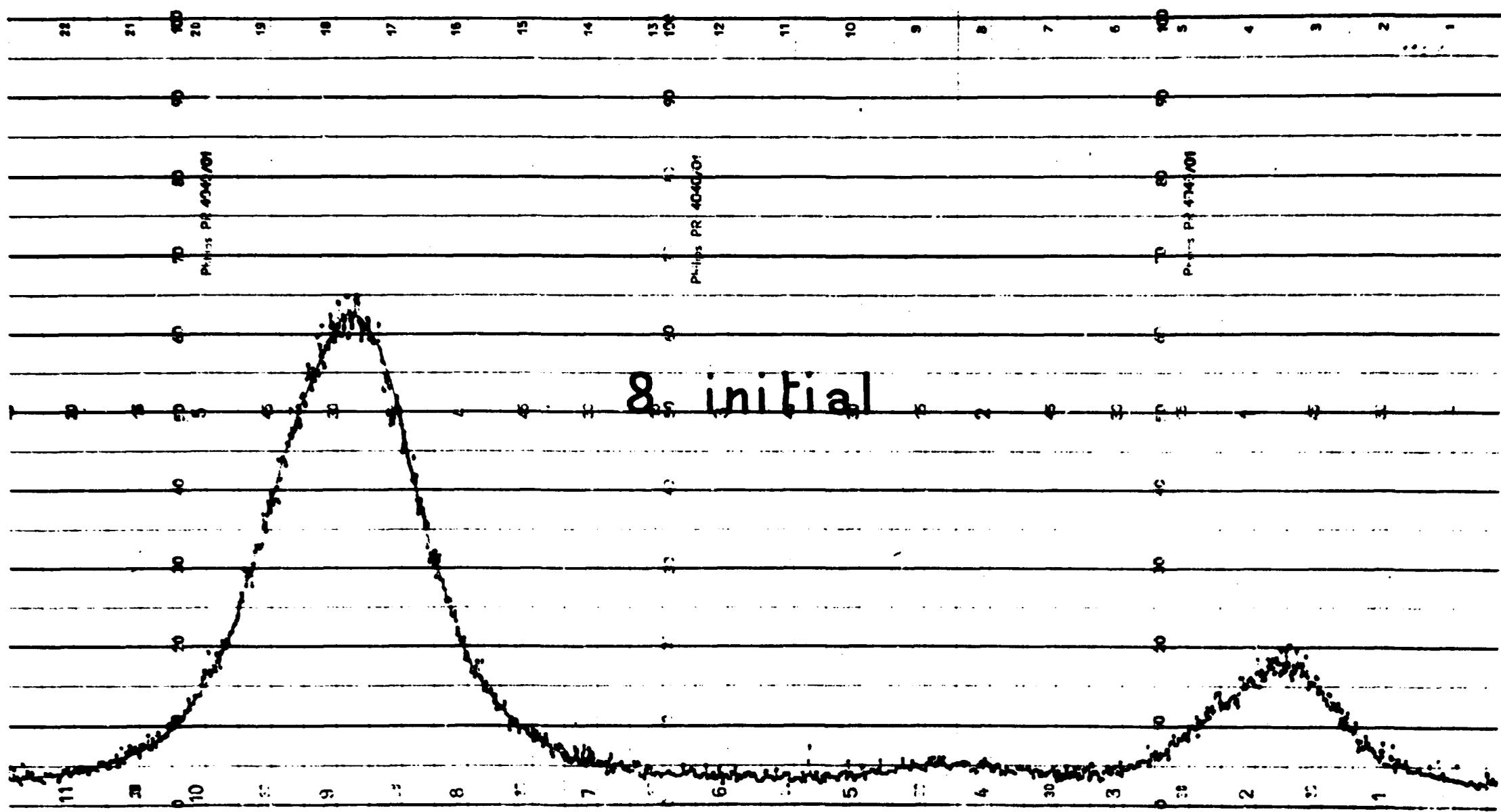


Rate C 114)



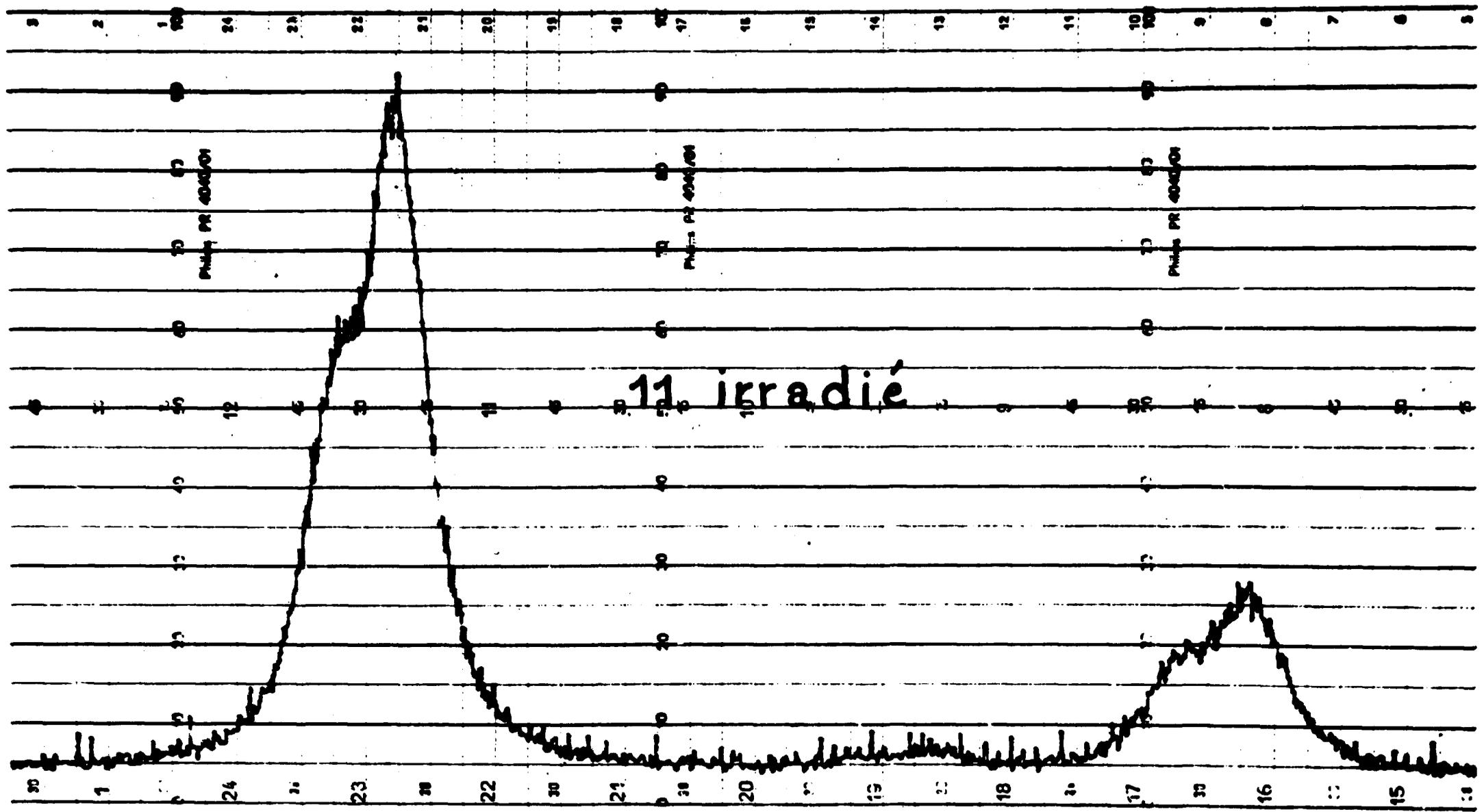
Raie C 114)

Raie C 133)



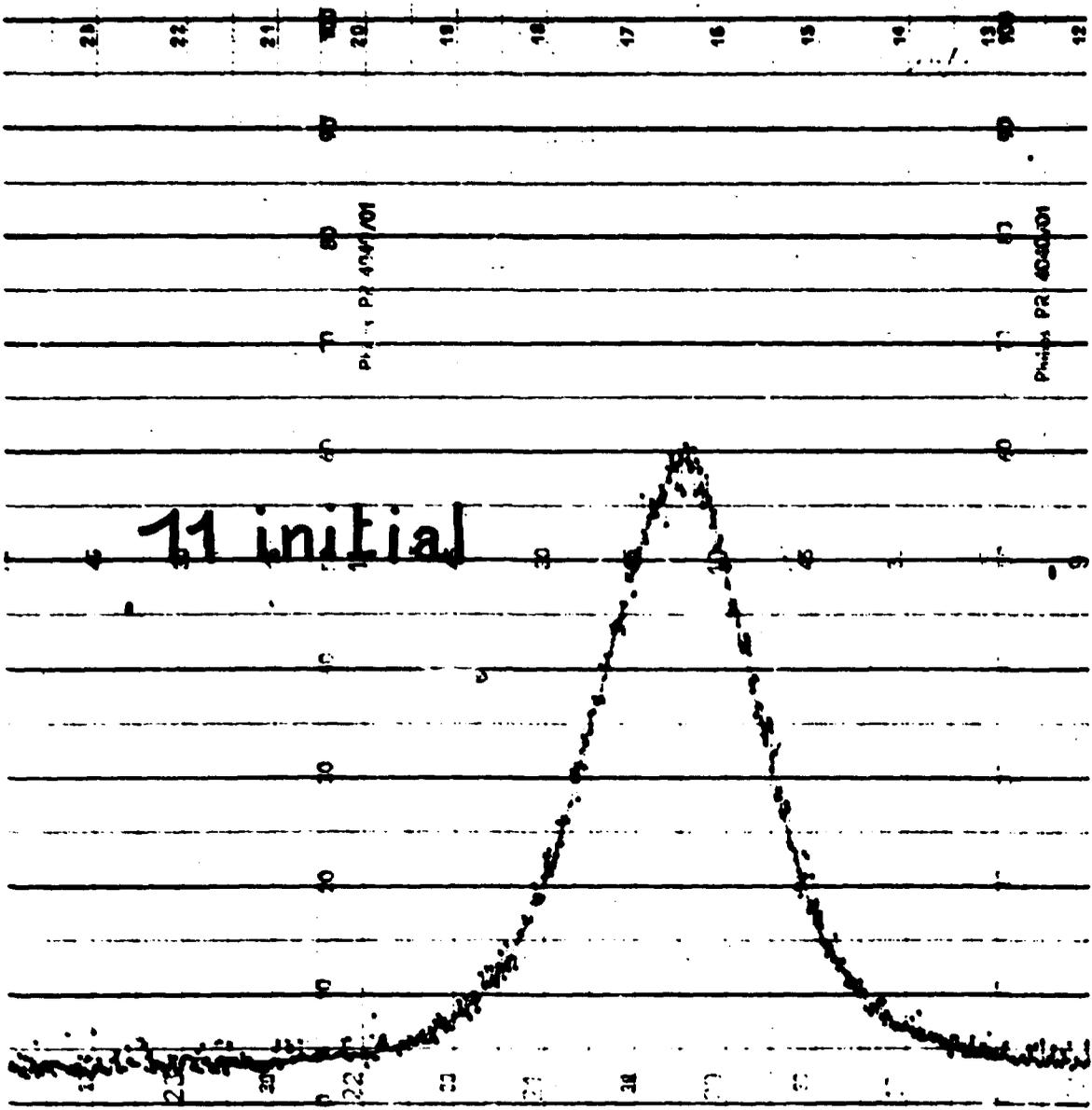
Rate C 114)

Rate C 133)

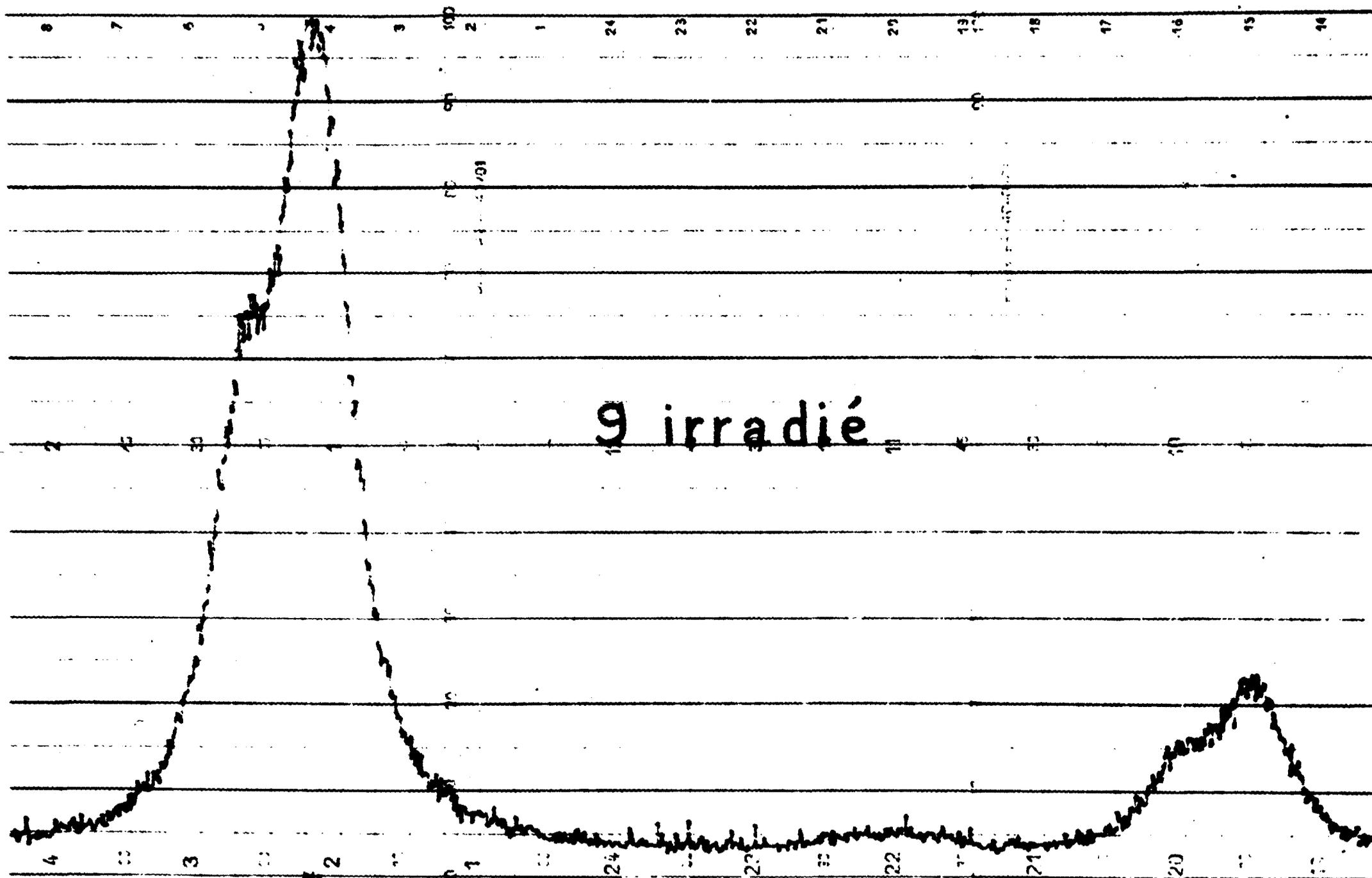


Raie C 114)

Raie C 133)



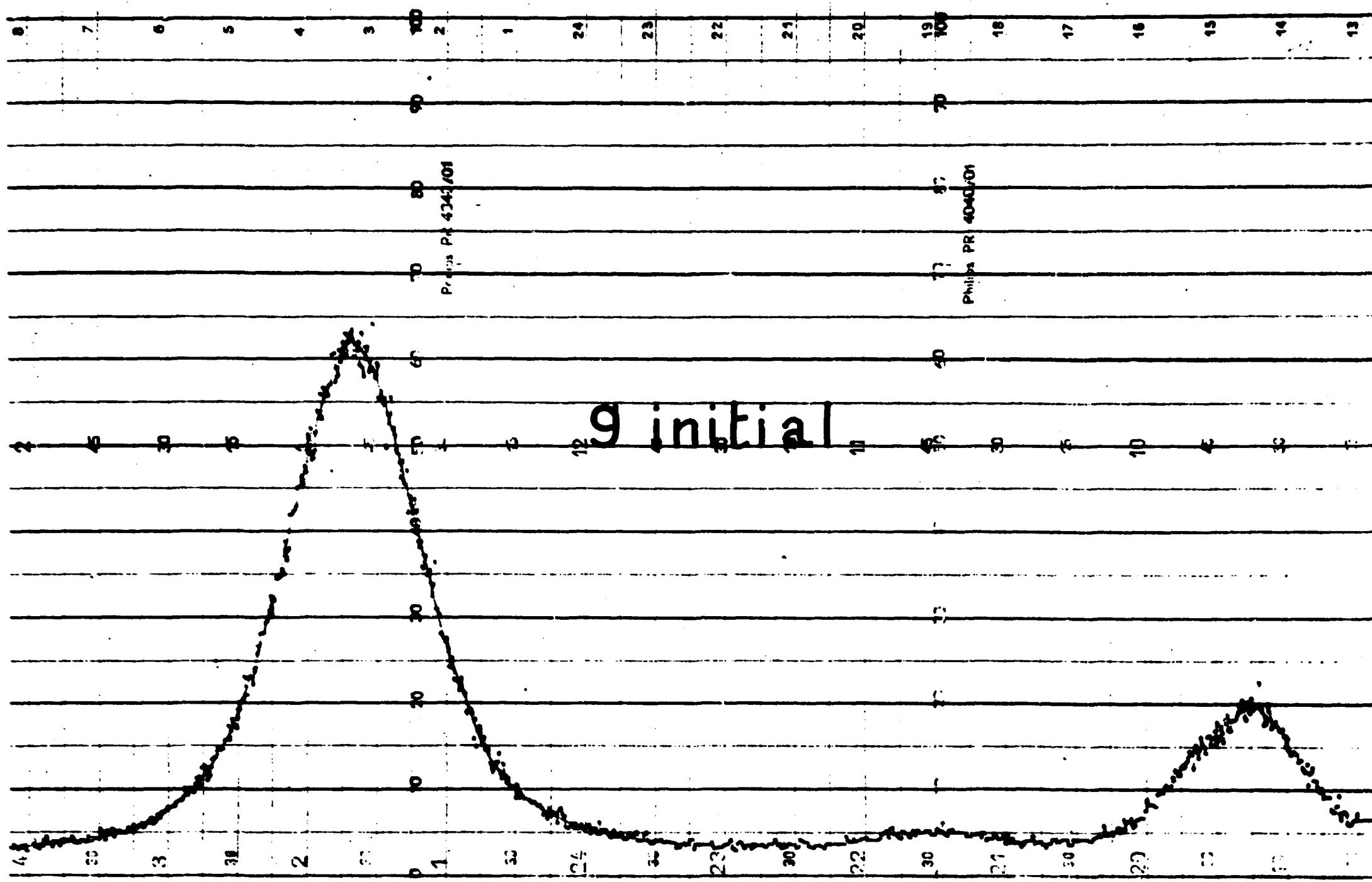
Rate C 114)



9 irradié

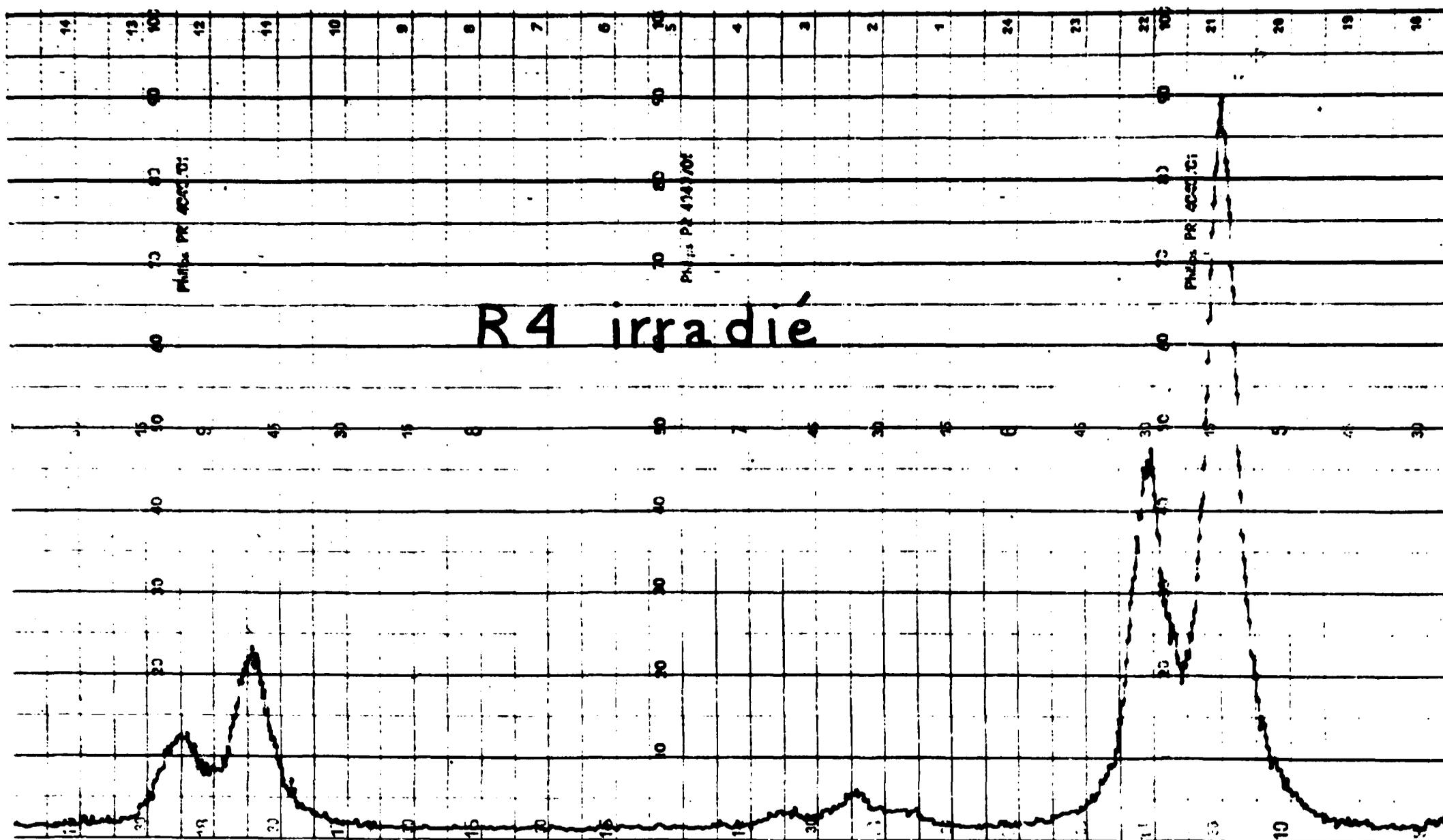
Raie C 114)

Raie C 133)



Raie C 114)

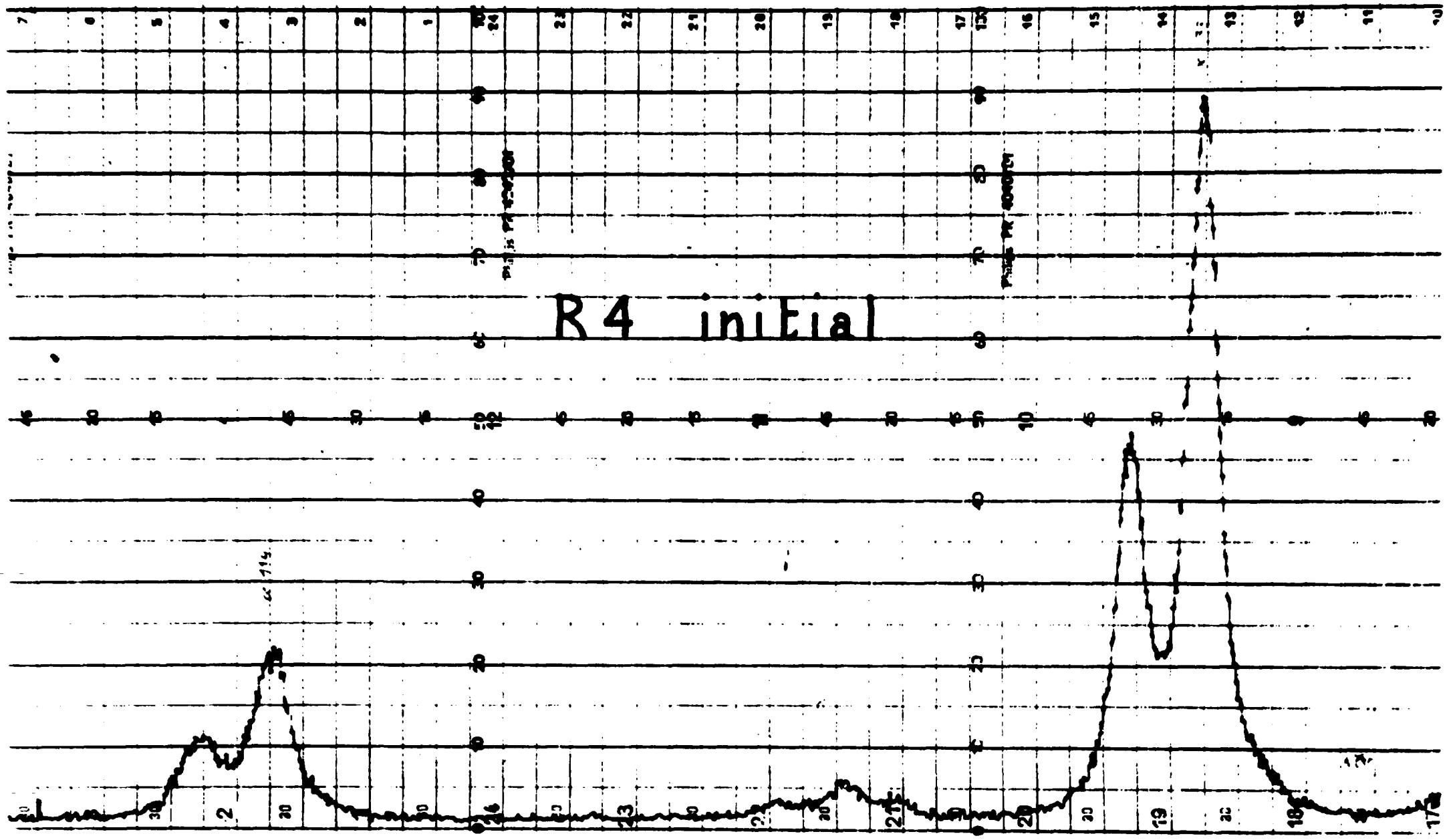
Raie C 133)



R4 irradié

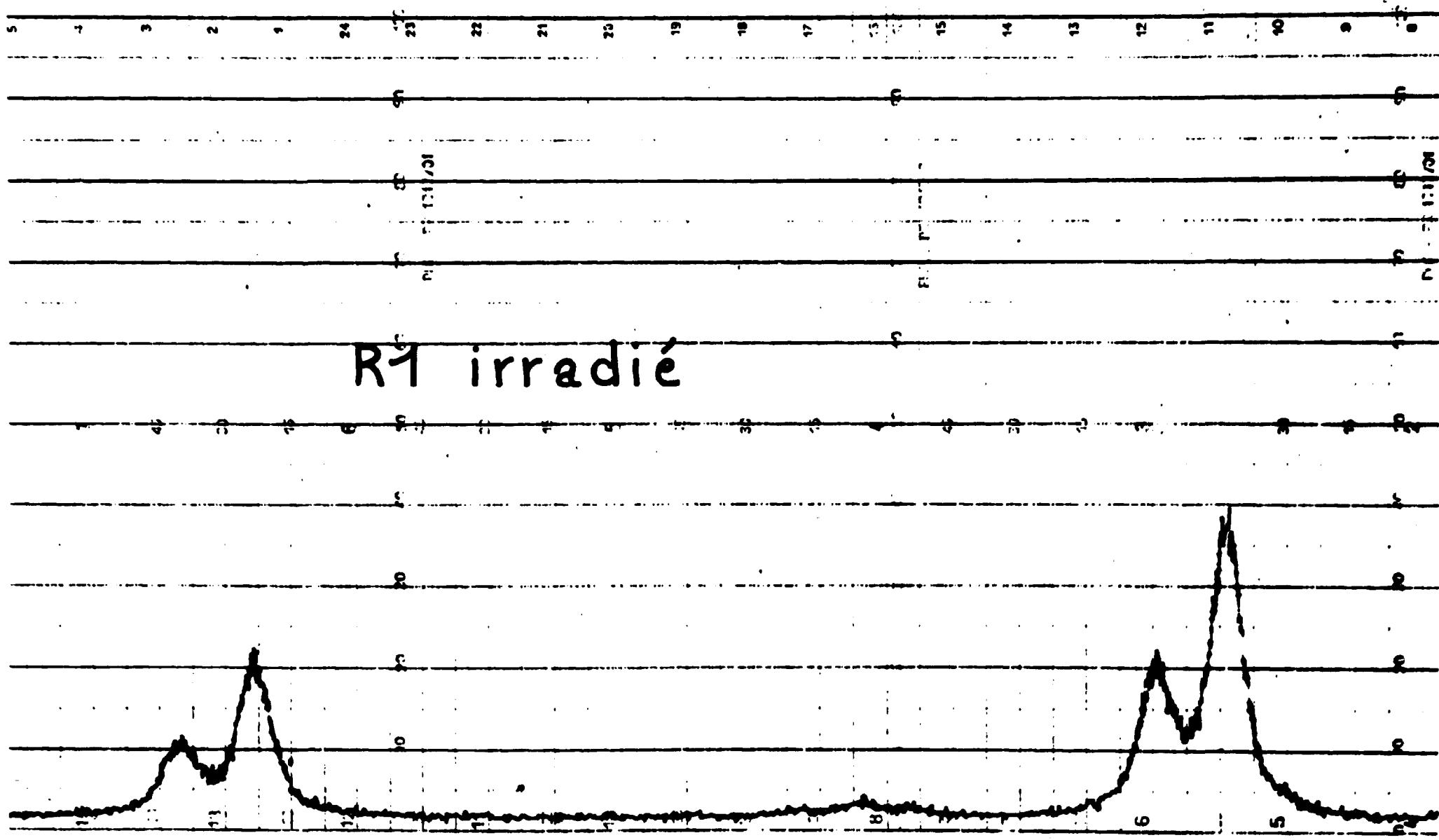
Rale C 114)

Rale C 133)



Rate C 114)

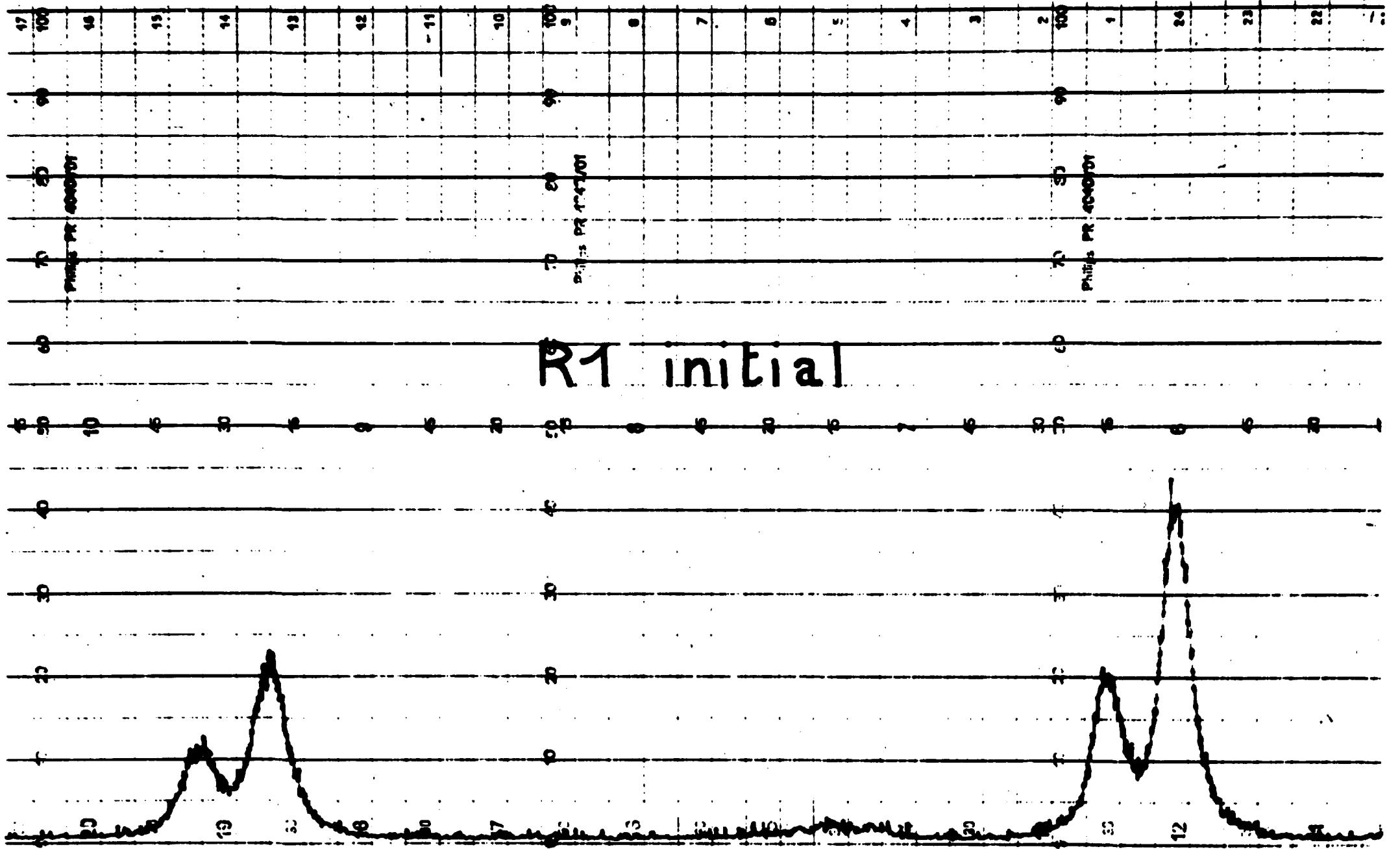
Rate C 133)



R1 irradié

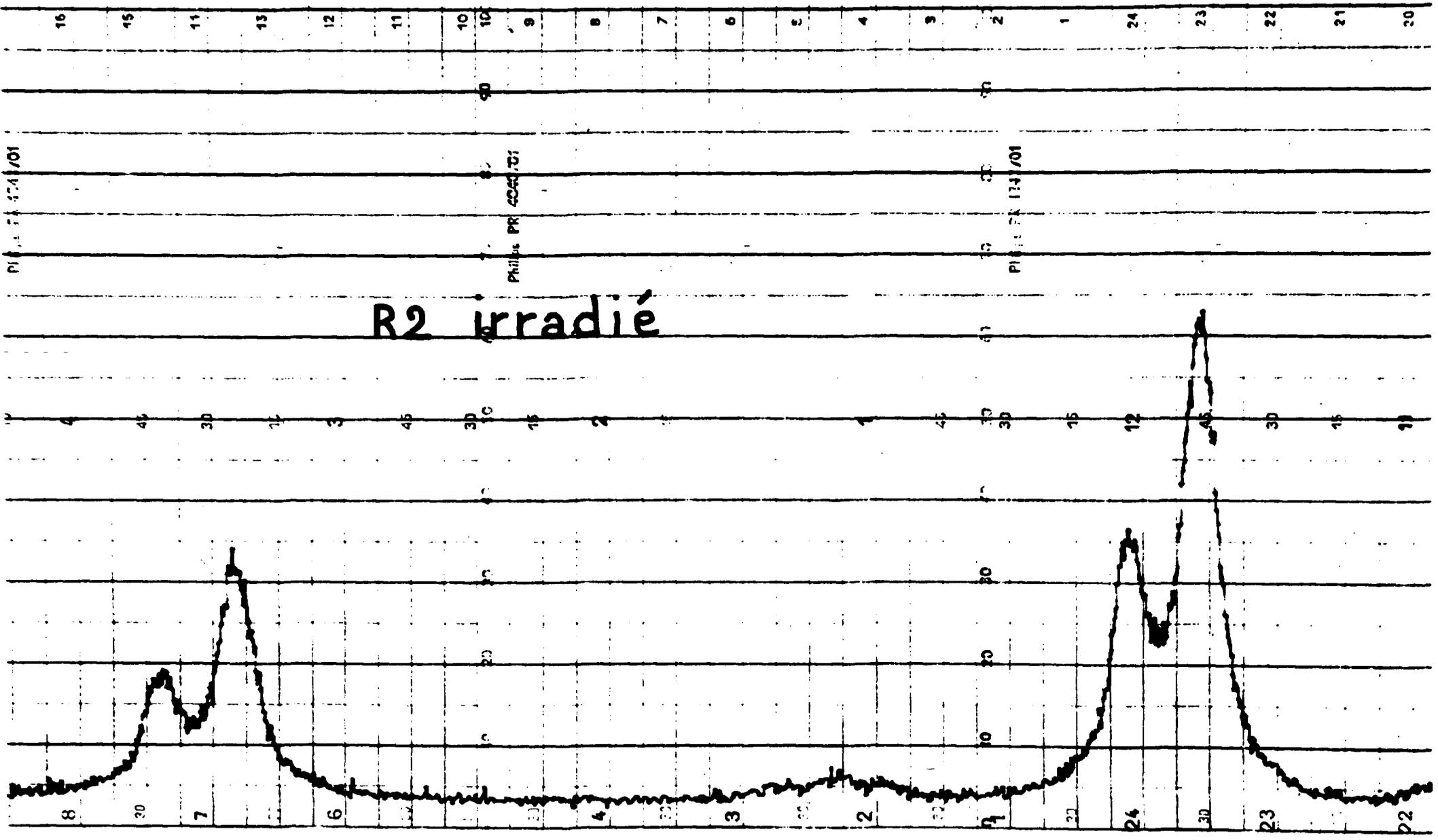
Rate C 114)

Rate C 133)



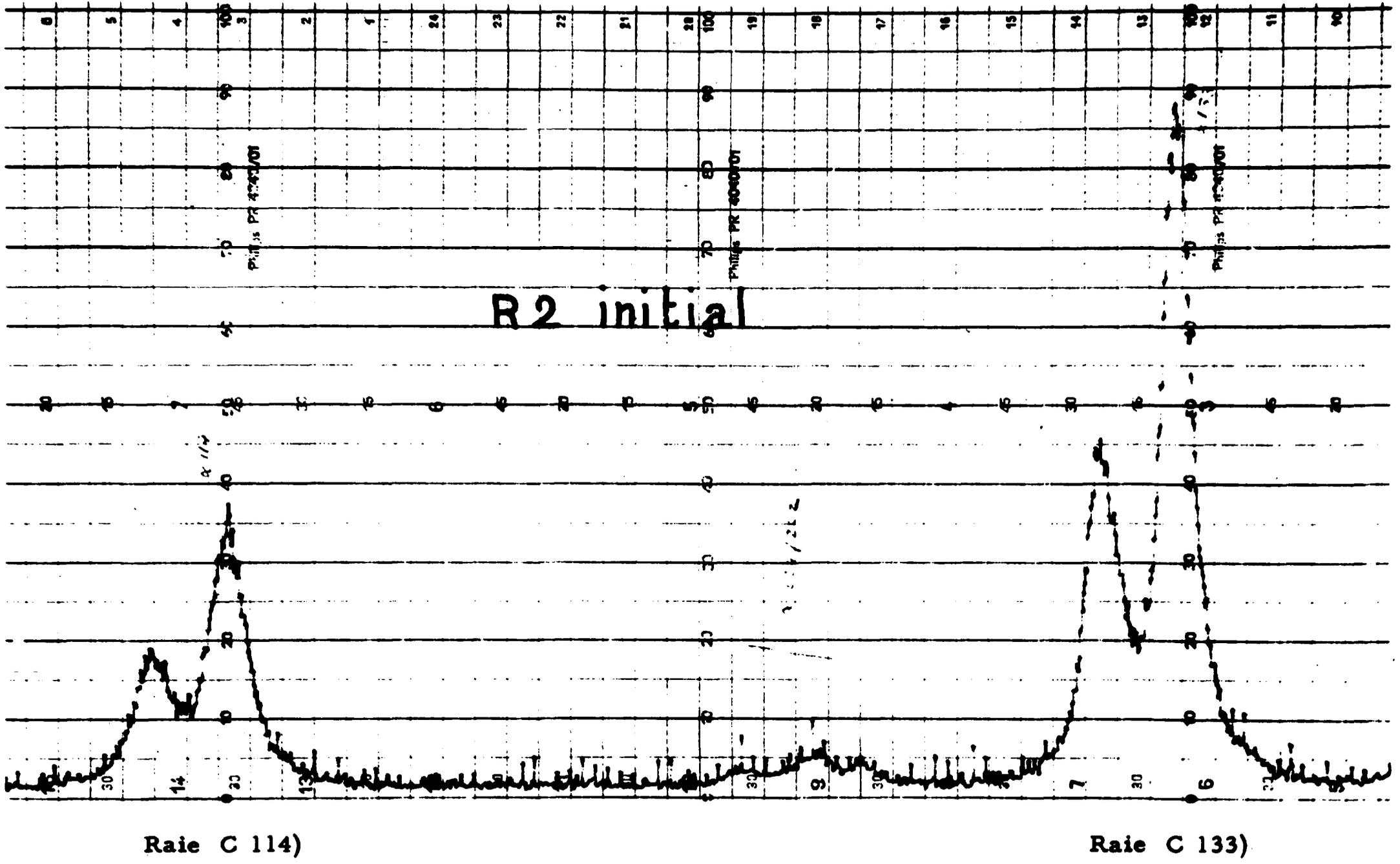
Rate C 114)

Rate C 133)



Rate C 114)

Rate C 133)



Raie C 114)

Raie C 133)



**FIN**