

# COMPORTEMENT DE L'URANIUM SOUS IRRADIATION

par

Yves ADDA, Jean-Pierre MUSTELIER, Yves QUERE

**Rapport CEA - R 2671**

Genève 1964, A Conf. 28/P/62

CENTRE D'ÉTUDES  
NUCLÉAIRES DE SACLAY  
CENTRE D'ÉTUDES  
NUCLÉAIRES DE FONTENAY-aux-ROSES

CEA-R 2671 - ADDA Yves, MUSTELIER Jean-Pierre, QUERE Yves,

COMPORTEMENT DE L'URANIUM SOUS IRRADIATION.

Sommaire. -

On expose les principaux résultats obtenus dans l'étude de la formation des défauts introduits dans l'uranium par la fission à basse température. Par irradiation à 20°K on a pu évaluer le nombre de paires de Frenkel produites par une fission. L'analyse des courbes de variation de résistivité électrique a permis de préciser l'étendue des pointes de déplacement (déplacement Spike) et le mécanisme de la création des défauts dus à la fission. Des irradiations à 77°K ont apporté des précisions supplémentaires et indiquent un comportement différent de l'uranium recristallisé et écroui.

On a étudié la diffusion des gaz rares à partir d'alliages métal-gaz rare obtenus par décharge électrique et d'échantillons d'uranium irradié. Le dégagement des gaz rares sous vide n'est contrôlé par un processus de diffusion simple que dans le cas où la teneur en gaz rare est très faible (U très ./).

---

CEA-R 2671 - ADDA Yves, MUSTELIER Jean-Pierre, QUERE Yves,

BEHAVIOUR OF URANIUM UNDER IRRADIATION.

Summary. -

The main results obtained in a study of the formation of defects caused in uranium by fission at low temperature are reported. By irradiation at 20°K it was possible to determine the number of Frenkel pairs produced by one fission. An analysis of the curves giving the variations in electrical resistivity shows the size of the displacement spikes and the mechanism of defect creation due to fission. Irradiations at 77°K gave additional information, showing behaviour differences in the case of recrystallised and of cold worked uranium.

The diffusion of rare gases was studied using metal-rare gas alloys obtained by electrical discharge, and samples of irradiated uranium. Simple diffusion is only responsible for the release of the rare gases under vacuum in cases where the rare gas content is very low (very slightly irradiated U). On the other hand when the concentration is higher (samples prepared by electrical

faiblement irradié). Par contre quand la teneur en gaz rare est plus forte (échantillons préparés par décharge électrique) le dégagement du gaz se produit par formation, croissance et coalescence de bulles ; le coefficient de diffusion apparent est alors très différent du coefficient vrai et ne peut être utilisé dans les calculs de gonflement.

Dans le cas d'un processus de diffusion simple on a étudié les différents facteurs qui régissent le phénomène. On a montré en particulier qu'une faible addition de molybdène pouvait réduire d'un facteur 100 le coefficient de diffusion.

On a suivi la précipitation de gaz dans l'uranium (Kr), dans l'argent (Kr) et dans l'alliage Al-Li (He) par mesure du paramètre cristallin, de la résistivité électrique et par examen de lames minces au microscope électronique. On a mis en évidence le rôle important des dislocations sur la germination et la croissance des bulles. On a montré en outre que la précipitation de bulles sur le réseau de dislocations pouvait bloquer le développement de la recristallisation. ./.  

---

discharge) the gas is given off by the formation, growth and coalescence of bubbles ; the apparent diffusion coefficient is then quite different from the true coefficient and cannot be used in calculations on swelling.

The various factors governing the phenomenon of simple diffusion were examined. It was shown in particular that a small addition of molybdenum could reduce the diffusion coefficient by a factor of 100.

The precipitation of gas in uranium (Kr), in silver (Kr) and in Al-Li alloy (He) have been followed by measurement of the crystal parameter and of the electrical resistivity, and by electron microscope examination of thin films. The important part played by dislocations in the generation and growth of bubbles has been demonstrated, and it has been shown also that precipitation of bubbles on the dislocation lattice could block the development of recrystallisation.

The results of these studies were compared with observations made on the swelling of uranium and uranium alloys U Mo and U Nb strongly irradiated between 400 and 700°C. ./.  

---

On a comparé les résultats de ces études aux observations effectuées sur le gonflement de l'uranium et d'alliages U Mo et U Nb fortement irradiés entre 400 et 700°C.

Dans le cas des alliages à phase cubique (U Nb U Mo) la répartition et la taille des bulles sont fortement influencées par l'existence à l'intérieur des grains d'un réseau de polygonisation formé avant irradiation. Au cours de recuits à haute température, les bulles situées sur le réseau de polygonisation croissent beaucoup plus vite que celles qui sont distribuées dans l'intérieur du cristal.

Dans le cas de l'uranium, suivant l'état du métal et la température d'irradiation, les bulles sont soit réparties au hasard, soit groupées en amas plans qui peuvent donner naissance à des fissures transgranulaires. A haute température on constate en outre une décohésion intergranulaire.

In the case of Cubic phase alloys (U Nb, U Mo) the size and distribution of the bubbles are greatly influenced by the existence of a polygonisation lattice, formed before irradiation, inside the grains. During high temperature annealings the bubbles situated on the polygonisation lattice grow much faster than those which are distributed inside the crystal.

In the case of uranium the bubbles are either distributed at random, or grouped in flat accumulations which can give rise to transgranular cracks, according to the state of the metal and the irradiation temperature. At high temperature an intergranular decohesion is also observed.

*Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.*

*The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.*

## COMPORTEMENT DE L'URANIUM SOUS IRRADIATION

par

Yves ADDA, Jean-Pierre MUSTELIER, Yves QUERE

Commissariat à l'Energie Atomique

Nous avons groupé dans cette communication un ensemble d'expériences sur le comportement de l'uranium sous irradiation aux neutrons. Les études ont été menées ou bien directement sur l'uranium lui-même, ou bien, dans le cas de la diffusion des gaz rares, sur des modèles où les mécanismes sont plus faciles à mettre en relief.

### I - Défauts dans l'uranium

Avant d'interpréter correctement des expériences sur l'effet des irradiations, il faut faire le point de nos connaissances sur les défauts de réseau de l'uranium : celles-ci sont minimales. On sait en particulier fort peu de choses sur les défauts ponctuels. Dans les tentatives pour tremper et étudier les lacunes, il est difficile de faire la part de ce qui revient aux lacunes ou aux effets d'impuretés, le métal utilisé étant généralement très impur.

Une première nécessité absolue est donc de travailler sur un métal aussi pur que possible. Nous avons purifié de l'uranium électrolytique par fusion de zone (G. CLOTTE - 1963) ; on peut juger du degré de purification obtenu en constatant que la température de recristallisation est abaissée à 270°C ou que la résistivité à 4,2°K de fils tréfilés puis recuits en phase  $\alpha$  (donc caractérisés par une forte texture  $[010]$ ) est égale à 0,3  $\mu\Omega$  cm.

Cet uranium est sans doute propre à des études de lacunes, mais il ne faut pas compter faire l'expérience en trempant le métal dans l'hélium liquide. En effet, si l'on trempe de l'uranium depuis des températures aussi basses que 100°K dans un bain d'hélium liquide, on constate que la résistivité, mesurée à 4,2°K augmente par trempe (J.C. JOUSSET - 1963). L'augmentation de résistivité est indépendante de la température avant trempe dans un large domaine de température au dessus de 40°K. Ce der-

nier point mais surtout l'ordre de grandeur de ces températures avant trempe montrent clairement qu'il ne s'agit pas de trempe de lacunes. On observe, de plus, que cette augmentation de résistivité est guérie par des recuits à très basse température avec des énergies d'activation d'environ 0,02 , 0,05 et 0,08 eV (J. C. JOUSSET - 1964).

L'interprétation de ces résultats est certainement liée à l'existence de nombreuses anomalies des propriétés physiques de l'uranium à 40°K. Entre 18 et 40°K, deux coefficients de dilatation deviennent négatifs et le troisième fortement positif. On peut donc supposer qu'en traversant ce domaine de températures, le métal subit un léger écrouissage qui produit des interstitiels. Ces interstitiels seraient retenus à 4,2°K et c'est leur disparition par migration que l'on observerait au cours des recuits. Une telle interprétation demande à être confrontée avec des résultats d'irradiation dans l'hélium liquide.

L'écrouissage à basse température peut également fournir des renseignements sur les défauts. On a écroui de l'uranium dans l'hydrogène liquide (20°K). Les allongements à rupture sont faibles à cette température (inférieurs à  $10^{-2}$ ) mais le point le plus remarquable est que la résistivité de l'uranium décroît notablement par écrouissage. La décroissance  $\Delta \rho$  est en général linéaire avec l'allongement  $\epsilon$ . Elle semble cependant présenter une saturation avant la rupture dans le cas de l'uranium recuit en phase  $\gamma$  (figure 1). Il est possible que l'interaction des dislocations avec le défaut de trempe signalé au paragraphe précédent (introduit lorsque l'on plonge le fil à écrouir dans l'hydrogène liquide) soit à l'origine de cette diminution anormale de résistivité. Une explication de ce type ne se suffit certainement pas car l'effet subsiste, bien qu'à un moindre degré, si l'on écrouit à une température où le phénomène de trempe n'apparaît pas (77°K). (E. OSTERTAG - 1964)

Nos connaissances sur les dislocations sont un peu plus solides. Depuis les premières observations d'uranium par transmission en microscopie électronique (B. HUDSON et al. - 1962), on a mis en évidence certains caractères des dislocations dans l'uranium. Ainsi les dislocations parfaites réagissent avec les dislocations de macle pour créer des dislocations de Frank, immobilisées à l'intersection du plan de glissement et du plan de macle, donc rectilignés (J. LETEURTRE - 1962). On observe de nombreux dipôles souvent dans la direction  $[001]$ , ainsi que des boucles dans le métal écroui. Le mouvement des dislocations s'accompagne de nombreuses déviations par exemple du plan  $(\bar{1}\bar{1}0)$  au plan  $(\bar{1}\bar{1}1)$ . Quant aux dislocations de macle, on montre qu'elles doivent être non pas des dislocations simples de Shockley, mais des dislocations de zone (J. LETEURTRE - 1964), telles que les déplacements atomiques accompagnant

le maclage intéressent une zone d'une certaine épaisseur et non un plan. Enfin une étude de la polygonisation (G. CLOTTE et al - 1964) a montré la formation de réseaux par recuits à températures comprises entre 150 et 300°C. Ces réseaux avaient été précédemment observés dans de l'uranium moins pur pour des recuits à plus haute température (E. RUEDL et S. AMELINCKX - 1963). La résistivité électrique, mesurée dans l'argon liquide, diminue au cours de la polygonisation. Ces mesures permettent de déterminer une énergie d'activation qui croît de 1 à 1,5 eV quand la température de traitement varie de 150 à 300°C.

## II - Effets de courtes irradiations sur l'uranium

En effectuant des irradiations de courte durée, on évite de manipuler des échantillons très radioactifs et en même temps on peut espérer comprendre mieux les mécanismes élémentaires de la création des défauts.

Ces courtes irradiations permettent en particulier d'étudier la croissance. Ce phénomène, qui se traduit par un changement de forme de l'uranium, sans changement de volume, est maintenant clairement associé à la présence après irradiation de boucles de dislocation lacunaires et interstitielles. Ces boucles n'ont pour vecteurs de Burgers possibles que  $[100]$  et  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle$  (J. LETEURTRE - 1963), ce qui corrobore bien les prévisions de Buckley. Il est normal que la croissance soit plus forte à 77 et surtout à 20°K qu'à plus haute température, cette dernière défavorisant la germination des petites boucles. D'autre part tous les défauts d'écrouissage peuvent faire précipiter les interstitiels focalisés ou canalisés (la canalisation étant probablement un processus important dans l'uranium) : il est donc également normal que la croissance soit accentuée par les forts écrouissages. Si l'on tient compte de corrections dues à des textures différentes, on montre que la croissance est 2 fois (à 20°K) et 16 fois (à 300°K) plus accentuée dans l'uranium fortement écroui que dans l'uranium recristallisé (C. WEINBERG et Y. QUERE - 1962). Ceci ne semble pas être vrai si l'écrouissage est modeste (S. N. BUCKLEY - 1961).

La croissance est mise aussi en évidence par des mesures de résistance électrique dans lesquelles on peut distinguer les changements de forme et les variations de résistivité. Ces dernières (figure 2) permettent d'avoir des informations sur les défauts de réseau. Il est difficile de faire la part des défauts ponctuels, des boucles de dislocation, des amas (par exemple zones lacunaires) mais on peut dire en gros que :

1) environ 50 000 paires de Frenkel subsistent dans le réseau après une fission, à 20°K, en adoptant pour la résistivité d'une paire la règle de Lucasson et Walker.



2) le modèle de la pointe de déplacement (J. A. BRINKMAN - 1954) s'adapte correctement au cas de l'uranium. Le volume total d'une pointe est d'environ  $0,9 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^3$ . Il semble cependant que dans un volume plus grand et variable avec la température (quelques  $10^{-16} \text{ cm}^3$ ) les défauts ponctuels soient annihilés par un processus thermique. (Y. QUERE - 1963)

3) Tout se passe, pour l'uranium recuit, comme si les boucles formées par irradiation possédaient une faute d'empilement, effacée quand elles atteignent un rayon critique par création d'une dislocation partielle. On sait à ce sujet que les dislocations de l'uranium peuvent être dissociées.

### III - Gonflement des alliages U Mo en phase cubique

Les alliages uranium molybdène à 10% de Mo en poids irradiés à  $600^\circ$  présentent des changements de volume particulièrement faibles, comme l'ont montré de nombreux auteurs (G. W. GREENWOOD - 1962) (W. C. HAYES et B. R. HAYWARD - 1961) (M. A. SILLIMAN - 1960). Nous avons confirmé ces observations à la suite d'irradiations dans la pile EL III d'alliages uranium molybdène bruts de coulée à 11,4% de Mo en poids. L'examen au microscope électronique de ces échantillons fait apparaître une répartition très régulière de nombreuses petites bulles (figure 3) : ce sont là les conditions d'un gonflement faible. On sait en effet que l'augmentation de volume du métal est d'autant plus réduite que les sites de précipitation sont plus nombreux. On constate de plus que la germination des bulles ne se produit pas complètement au hasard : les parois de polygonisation formées dans le métal avant irradiation se distinguent en effet de la matrice par des bulles plus grosses qui les décorent.

### IV - Diffusion du xénon dans l'uranium irradié et l'alliage U-Mo

On a montré que le faible gonflement des alliages U-Mo (de structure cubique centrée) ne pouvait être attribué à une réduction de la vitesse de diffusion des lacunes (Y. ADDA, A. KIRIANENKO - 1961); il peut donc être dû à un abaissement des coefficients de diffusion des gaz de fission. L'atome de molybdène étant plus petit que celui d'uranium, on peut penser a priori qu'il a tendance à s'associer aux gros atomes de gaz rares pour relacher une partie des contraintes élastiques que ces derniers introduisent dans la matrice d'uranium (J. A. BRINKMAN - 1959).

Le " complexe " ainsi formé étant moins mobile qu'un atome de gaz rare isolé (il faudra fournir une énergie supplémentaire pour le " briser ") on doit donc s'attendre à un abaissement des coefficients de diffusion des gaz de fission dans l'uranium.

La détermination des coefficients de diffusion des gaz rares dans les métaux est en général très délicate car la précipitation du gaz sous forme de bulles, qui intervient souvent dans les échantillons de diffusion, conduit à des coefficients apparents qui n'ont aucune signification physique (G. BREBEC et al - 1962). Pour éviter cette difficulté on a cherché à effectuer des expériences sur des échantillons contenant une concentration de gaz rare extrêmement faible :  $10^{-10}$  at.Xe/at. U; on a étudié la diffusion du xénon-133 dans l'uranium et dans un alliage U-Mo à 1% en poids de Mo, faiblement irradiés (dose inférieure à  $10^{16}$  neutrons intégrés/cm<sup>2</sup>). La méthode expérimentale utilisée pour la détermination des coefficients de diffusion est classique (dégazage sous vide des échantillons) les résultats obtenus sont portés dans la figure 4. On remarque que l'énergie d'activation correspondant à la diffusion du xénon dans l'uranium pur est beaucoup plus élevée pour la phase  $\gamma$  ( $Q = 88$  K cal/at.g) que pour la phase  $\beta$  ( $Q = 27$  K cal/at.g).

On note de plus, qu'une faible addition de molybdène (1% en poids) réduit d'un facteur 100 environ les coefficients de diffusion du xénon (Tableau I à titre d'exemple).

Tableau I

Température °C	U pur		Alliage U-MO (1%)	
	720°C	920°C	720°C	920°C
D cm <sup>2</sup> s-1	$8 \cdot 10^{-12}$	$2,5 \cdot 10^{-10}$	$8 \cdot 10^{-14}$	$2,3 \cdot 10^{-12}$

Comme il en est probablement de même pour la diffusion du krypton, on peut penser que le gonflement de l'uranium, tout au moins pour la phase cubique, est contrôlé par la diffusion des gaz de fission. La comparaison entre l'énergie d'activation pour la diffusion du xénon dans l'uranium  $\gamma$  (3,83 eV/at) et celle correspondant au gonflement, déterminé par GREENWOOD (communication personnelle) (4,3 eV) confirme ces conclusions.

#### V - Mécanisme de la précipitation des gaz rares dans les métaux

On a tout d'abord essayé de préciser les mécanismes de précipitation des gaz rares à partir d'alliages métal-gaz rare.. préparés par décharge électrique. L'étude de ces alliages au moyen de différentes techniques (microscopie électronique, rayons X, résistivité à basse température) a apporté des renseignements d'un grand intérêt sur leur structure électronique (V. LEVY et al - 1964), mais peu de précisions

sur les mécanismes de précipitation. L'insuccès des études de précipitation était dû essentiellement au fait qu'il était impossible dans de tels alliages de faire varier la concentration des défauts (joints de grains, dislocations..) pour une teneur donnée de gaz rare. Les alliages aluminium-lithium (à faible teneur en Li) irradiés aux neutrons nous ont semblé être un matériau de choix pour étudier le rôle de la densité et la répartition des défauts réticulaires sur la précipitation des gaz rares (V. LEVY et al - 1964). Nos essais ont porté sur un alliage Al-Li contenant 1% de lithium entièrement en solution solide (enrichi à 60% en  $^6\text{Li}$ ). On sait que l'irradiation du  $^6\text{Li}$  par des neutrons conduit à la formation d'hélium.

### 1 - Germination des bulles

La plupart des observations que nous avons effectuées sur la précipitation de l'hélium dans l'alliage Al-Li semblent en accord avec les théories classiques de la germination dans les solutions solides sursaturées.

a) Influence de la température - Quelle que soit la concentration en hélium, la précipitation s'effectue toujours aux joints de grains pour les températures les plus basses. Si la concentration est suffisamment élevée, on peut observer tous les types de précipitation : germination aux joints à basse température; puis, lorsque la température s'élève, précipitation dans les dislocations; et enfin, lorsque la température est suffisamment élevée (pour que la diffusion en volume du gaz et des lacunes intervienne) on note une germination homogène. Aux températures élevées, tous ces types de précipitations peuvent être observés après une durée suffisante : les bulles associées aux joints et aux dislocations étant alors formées dans les tout premiers stades sont alors plus grosses (figure 5).

b) Influence de la concentration d'hélium à une température donnée - Lorsque la sursaturation en hélium est faible, l'hélium précipite sur les joints de grains, puis lorsque la concentration croît, on observe des bulles sur les dislocations, et enfin une germination homogène (en plus des 2 modes de germination précédents).

c) Influence de la concentration des défauts (dislocations joints) - Les atomes d'hélium, à cause de leur effet de taille ont tendance à ségréger dans les joints ou les dislocations. Comme, de plus, aux températures pas trop élevées la diffusion est très rapide dans ces défauts ( $10^5$  à  $10^{10}$  fois plus grande que dans le volume) il s'y forme rapidement des germes stables. Enfin les dislocations et les joints de grains pouvant jouer le rôle de sources de lacunes, il est évident qu'ils seront des sites préférentiels de germination.

Pour qu'une germination homogène soit possible, le temps nécessaire à la formation d'un germe stable devra être inférieur à celui mis par les atomes de gaz rare pour atteindre les dislocations. Si l'on suppose par exemple que 3 atomes de gaz rare constituent un germe stable, un calcul simple permet d'évaluer les conditions de germination homogène : pour une concentration donnée  $C$  en hélium, la distance moyenne entre dislocations  $\bar{l}$ , doit être suffisamment grande, par exemple pour  $C = 5 \cdot 10^{-5}$  at He/at Al  $\bar{l} > 3 \cdot 10^{-4}$  cm et pour  $C = 4 \cdot 10^{-4}$  at He/at Al  $\bar{l} > 1,5 \cdot 10^{-5}$  cm

Ces résultats sont en assez bon accord avec nos observations. On note de plus, qu'il est possible de modifier la répartition des bulles en agissant sur la densité et la distribution des dislocations. En effet, si l'on introduit des réseaux de dislocations en polygonisant les échantillons après irradiation (faible écrouissage suivi d'un recuit à 450°) les bulles précipitent essentiellement sur les réseaux de dislocations (figures 6, 7). Une telle structure réduit les chances de germination homogène (ce qui n'est pas excellent pour la résistance au gonflement) mais aussi celles de la germination aux joints de grains. On peut donc penser que si le gonflement d'un matériau est dû essentiellement à une précipitation de bulles aux joints de grains, l'introduction de joints de polygonisation réduira peut être le gonflement (à titre d'exemple figures 8 a et 8 b).

## 2 - Croissance des bulles

Il est en général difficile de séparer les processus de germination et de croissance, cependant nos observations semblent indiquer que la croissance des bulles est, suivant les conditions expérimentales contrôlée par la diffusion du gaz rare (en volume, dans les joints de grains ou dans les dislocations) ou celle des lacunes

De plus, nous n'avons jamais, dans nos expériences, pu mettre en évidence le phénomène de "migration" des bulles proposé par Barnes pour expliquer la croissance (R.S. BARNES - 1963). Au contraire, l'observation d'échantillons chauffés dans le microscope semble indiquer que les bulles grossissent sur place par diffusion dans les dislocations ou en volume.

a) Diffusion en volume - Des bulles situées au sein des grains, n'ayant pas de dislocation ou de joint de grain à leur voisinage immédiat, grossissent par traitement thermique. La diffusion en volume du gaz ou des lacunes détermine certainement leur croissance. On peut d'ailleurs penser que dans certains cas, la diffusion en volume contribue à la croissance d'une bulle, même si celle-ci est située sur une dislocation.

b) Diffusion dans les dislocations - Si l'on écrouit fortement les alliages contenant une teneur élevée d'hélium (réduction d'épaisseur de 100% par laminage), on constate que la croissance des bulles est fortement accélérée par un recuit ultérieur (2 h à 450°) (figure 8 c) : la taille moyenne des bulles est de l'ordre de 2 000 Å environ alors qu'elle n'est que de 500 Å pour des échantillons identiques mais non écrouis après irradiation. Cet effet ne peut être lié à un déplacement des joints de grains car de tels échantillons ne recristallisent pas à des températures inférieures à 600°. Il faut noter par contre, que la densité de dislocation s'est accrue fortement : elle passe de  $10^7/\text{cm}^2$  à une valeur supérieure à  $10^{10}/\text{cm}^2$ , ce qui semble favoriser l'intercommunication des bulles entre elles. Ceci ainsi que la distribution et l'aspect des bulles conduit à penser que les dislocations favorisent la redissolution du gaz contenu dans les petites bulles au profit des plus grosses, ce qui est en accord avec une hypothèse d'Hasiguti (R. R. HASIGUTI, N. IGATA - 1962).

c) Diffusion aux joints de grains - Les bulles précipitées aux joints de grains grossissent plus vite que celles qui sont situées dans la matrice; ceci est certainement dû au fait que la diffusion du gaz est plus rapide dans le joint que dans le volume. Si l'on provoque la recristallisation du métal (par écrouissage et recuit) après irradiation, on constate de plus que le déplacement du joint provoque une redistribution du gaz contenu dans les bulles : elles deviennent plus grosses et moins nombreuses. Comme dans le cas des dislocations, on peut penser que la présence du joint favorise la redissolution du gaz contenu dans les petites bulles au profit des plus grosses.

## VI - Gonflement de l'uranium en phase alpha

Le gonflement de l'uranium en phase alpha est un phénomène beaucoup plus difficile à comprendre à cause de l'intervention de la croissance et de l'anisotropie de dilatation.

Dans ces conditions, la structure du métal avant irradiation ainsi que sa pureté semblent jouer un rôle considérable. C'est pourquoi nos observations ont porté sur des échantillons de trois types :

- uranium trempé depuis le domaine beta (grains sensiblement équiaxes)
- uranium brut de coulée (gros grains)
- uranium martelé à froid et recuit en phase alpha (petits grains et forte texture [010] )

Les températures d'irradiation étaient comprises entre 430 et 600°C, les taux de combustion s'étagaient entre 1200 et 5500 Mwj/t.

## 1 - Irradiations à température comprise entre 430 et 500°

A ces températures, la croissance de l'uranium par irradiation qui est encore importante s'effectue sans provoquer de tensions internes dans l'uranium à forte texture recristallisé après martelage; les différents grains croissant tous dans des directions voisines de l'axe de l'échantillon. Aussi les contraintes intergranulaires et les déformations dans les grains, relativement faibles, expliquent-elles l'aspect micrographique (figure 9) : pas de fissures, peu ou pas de macles, présence de petites bulles réparties régulièrement dans les grains. Le gonflement dû en majeure partie aux bulles est dans ce cas particulièrement faible : 12% pour un taux de combustion de 3000 Mwj/t.

Le comportement de l'uranium brut de coulée ou trempé depuis la phase beta est très différent. A cause de leur cristallisation sensiblement équiaxe, la croissance et les cycles thermiques dans la pile provoquent des contraintes et des déformations importantes qui se traduisent surtout par un maclage des grains (figure 10). Ces macles sont d'autant plus fines et plus nombreuses que la température d'irradiation est basse; leur contour est d'autant plus sinueux que l'échantillon est plus irradié. Aux faibles taux de combustion (1000 Mwj/t) les porosités ne sont visibles qu'au microscope électronique : elles apparaissent sous la forme de petites bulles dont la plupart sont alignées sur les joints de macle (figure 11). A des taux de combustion plus élevés (2800 Mwj/t) les bulles alignées le long de certains systèmes de macles grossissent et coalescent pour former des amorces de fissures (figure 12). Des aspects analogues ont été décrits par R.D. LAGETT, B. MASTEL et J.W. WEBER (1963). En outre, la matrice non maclée contient un grand nombre de bulles plus petites. La formation de fissures sur les joints de macle semble la cause du gonflement considérable que l'on observe si l'irradiation se poursuit (de l'ordre de 100% pour 5000 Mwj/t).

## 2 - Irradiations à température comprise entre 575 et 600°C

A ces températures la croissance de l'uranium est encore notable : des échantillons recristallisés après martelage à froid voient leur longueur augmenter de 50% pour des taux de combustion de 5000 Mwj/t. Les joints de grains des échantillons à cristallisation équiaxe sont soumis à de fortes contraintes, la température est d'autre part suffisamment élevée pour que leur déformation par cisaillement soit possible. La précipitation des gaz de fission facilite considérablement leur rupture par un mécanisme de " cavitation " souvent observé dans les expériences de fluage à haute température (A.H. COTTRELL - 1961) : les petites bulles de gaz qui précipitent sur les

jointes de grains forment des amorces de cavités qui croissent par apport de lacunes sous l'effet des contraintes. Aussi observe-t-on dans l'uranium sans texture de larges fissures dans la plupart des joints de grains et dans certains joints de polygonisation (figure 13) dès 2000 Mwj/t. A ces températures la déformation des grains ne se produit plus par maclage mais par glissement. A ces glissements il semble qu'on puisse associer la précipitation de bulles de gaz dans les bandes allongées qui apparaissent en sombre sur la figure 14. Ces bandes se présentent au microscope électronique comme des zones très riches en bulles qui traversent une matrice à peu près libre de toute précipitation (figure 15). Cette répartition hétérogène de bulles conduit à des gonflements importants de l'ordre de 15 à 20% pour 2000 Mwj/t. La précipitation est au contraire à nouveau tout à fait régulière dans les échantillons d'uranium à forte texture. On observe cependant l'apparition progressive de la décohésion intergranulaire sans relation apparente avec les bulles, le gonflement est alors assez faible : 20% pour 5000 Mwj/t.

### Conclusion

L'ensemble des problèmes posés par l'irradiation de l'uranium requiert un affinement de nos connaissances sur les défauts de réseau de ce métal. On est en particulier amené à travailler avec de l'uranium très pur, à étudier les défauts ponctuels (résistivité) et les dislocations (microscopie électronique).

Dans le domaine du gonflement, on peut penser que :

- la diffusion du gaz rare en volume ou dans les défauts (plans ou linéaires) joue un rôle important sur la croissance des bulles
- les défauts cristallins : joints de grains, parois de polygonisation, joints de macles, dislocations, jouent un rôle important dans la germination et la croissance des bulles
- certains aspects du gonflement de l'uranium irradié en phase alpha comme la " cavitation " aux joints de grains ne paraissent pas être caractéristiques de la précipitation des gaz de fission mais plutôt de la fragilisation de l'uranium sous irradiation; les bulles de gaz de fission ne jouent alors qu'un rôle d'amorce dans la fissuration intergranulaire.

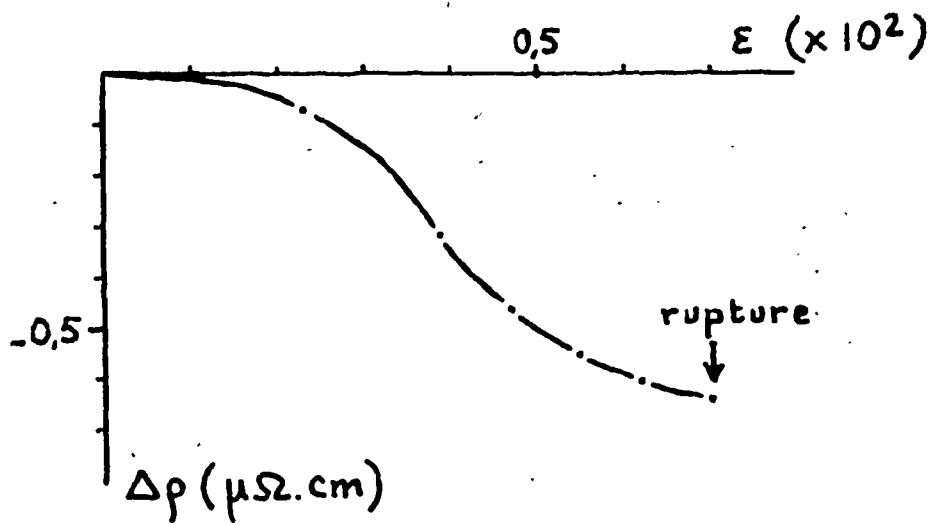


Fig. 1 - Variation de la résistivité à 20°K d'uranium recuit en phase  $\gamma$ , par écrouissage à 20°K.  $\epsilon$  est l'allongement relatif (E. OSTERTAG - 1964)

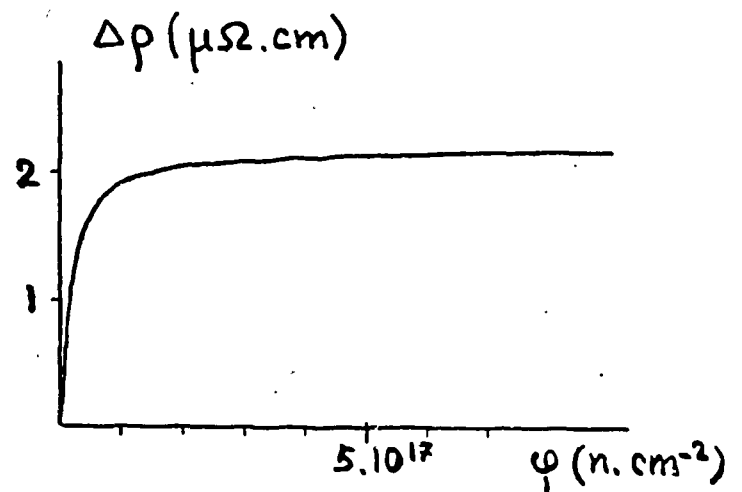


Fig. 2 - Variation de la résistivité à 77°K d'uranium brut de tréfilage, par irradiation à 77°K.  $\phi$  = flux de neutrons thermiques

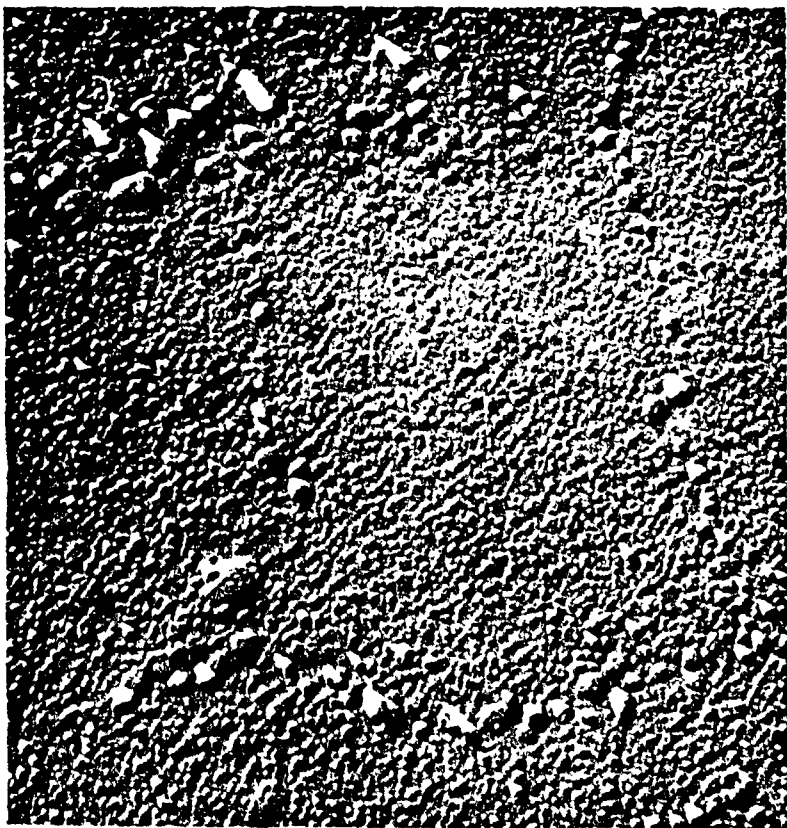


Figure 3 - Alliage U Mo irradié ( X 3150 )

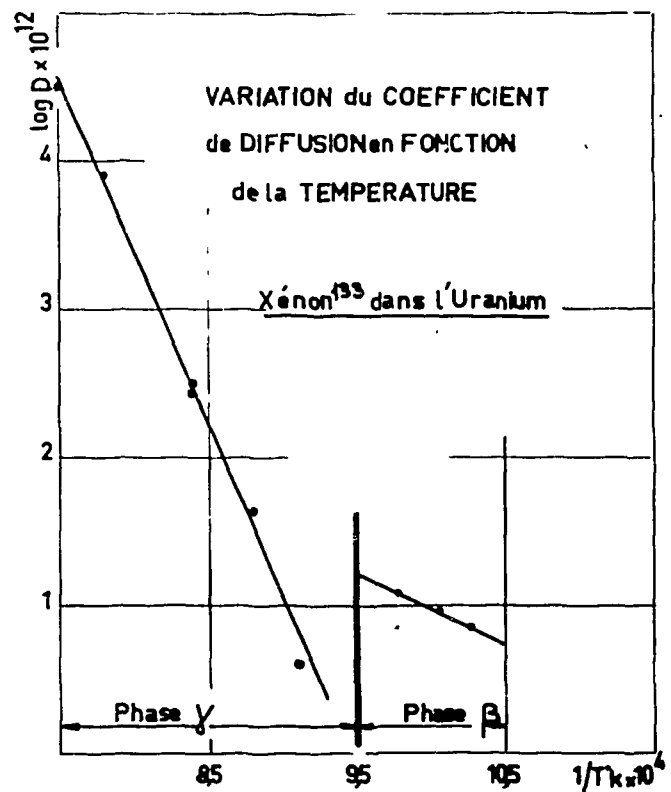


Figure 4



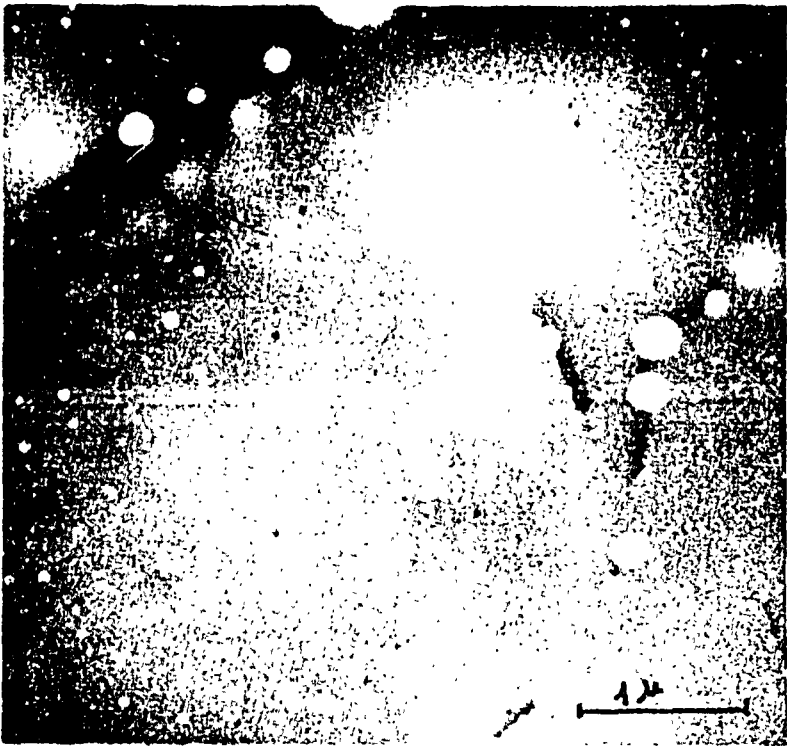


Fig. 5 - Alliage Al-Li irradié à  $8.10^{18}$  nvt, recuit à  $450^{\circ}\text{C}$

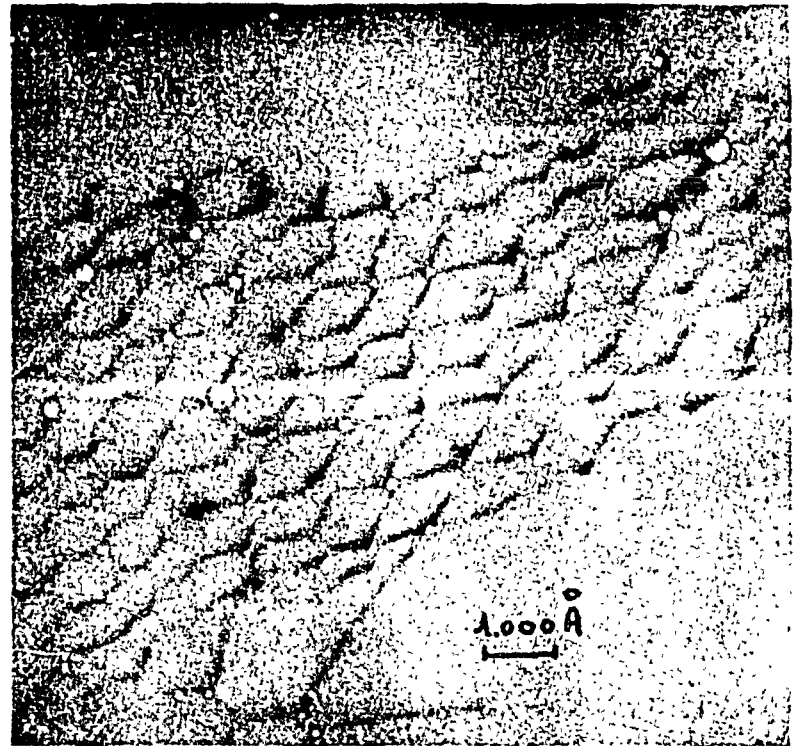


Fig. 6 - Alliage Al-Li irradié à  $8.10^{18}$  nvt, écroui par laminage et recuit 2 h à  $450^{\circ}\text{C}$   
Aspect des bulles sur un sous-joint de polygonisation

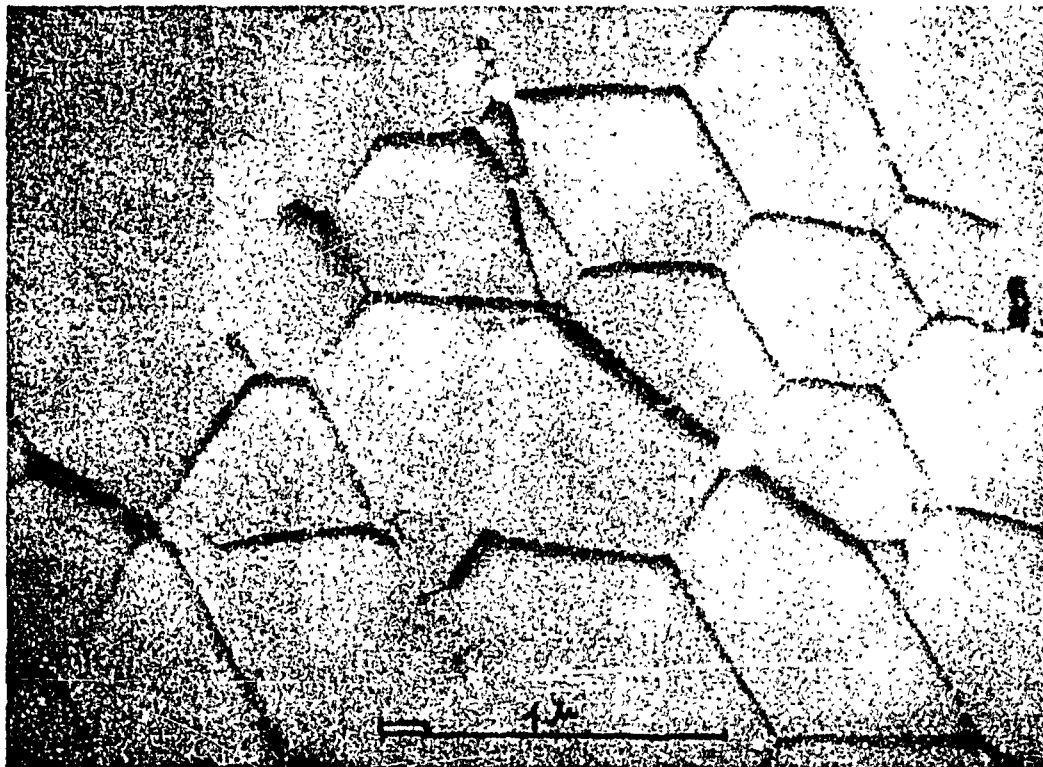
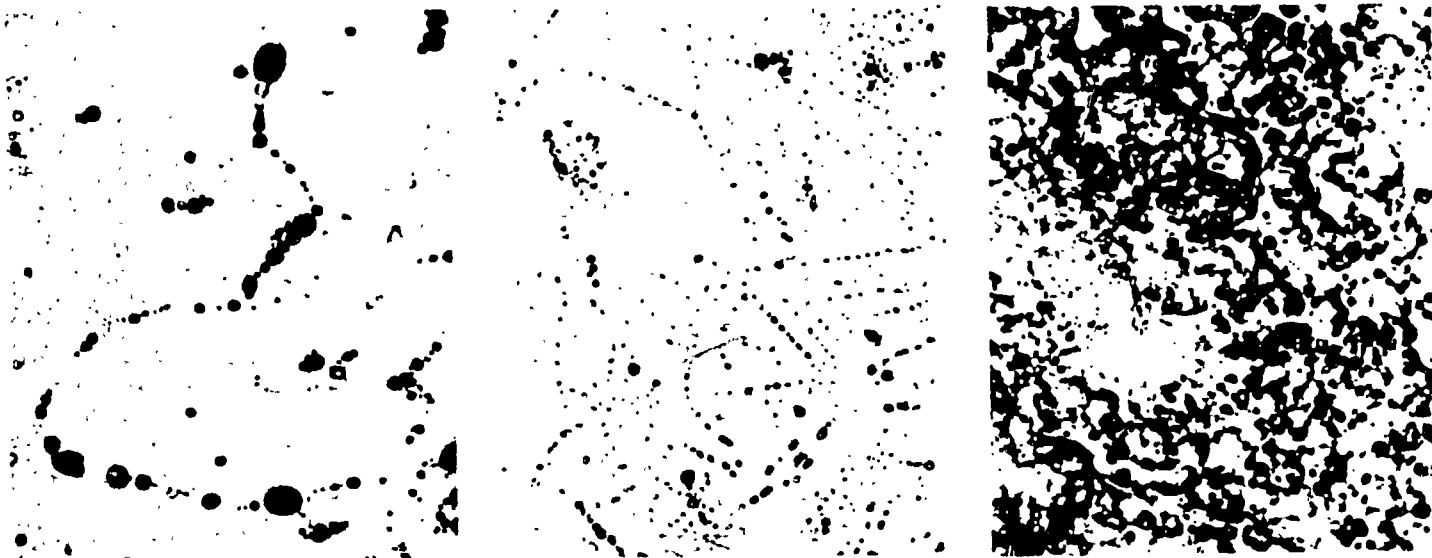


Fig. 7 - Alliage Al-Li irradié à  $8.10^{18}$  nvt faiblement écroui et recuit 2 h à  $450^{\circ}\text{C}$



a)

b)

c)

Fig. 8 - Influence de l'écroissage sur le nombre, la taille et la répartition des bulles d'hélium

- a) Alliage Al-Li irradié à  $8 \cdot 10^{18}$  nvt recuit 2 h à  $450^{\circ}\text{C}$
- b) Alliage Al-Li irradié à  $8 \cdot 10^{18}$  nvt faiblement écroui par laminage croisé et recuit 2 h à  $450^{\circ}\text{C}$  ( polygonisé )
- c) Alliage Al-Li irradié à  $8 \cdot 10^{18}$  nvt réduit de 50% par laminage et recuit 2 h à  $450^{\circ}\text{C}$

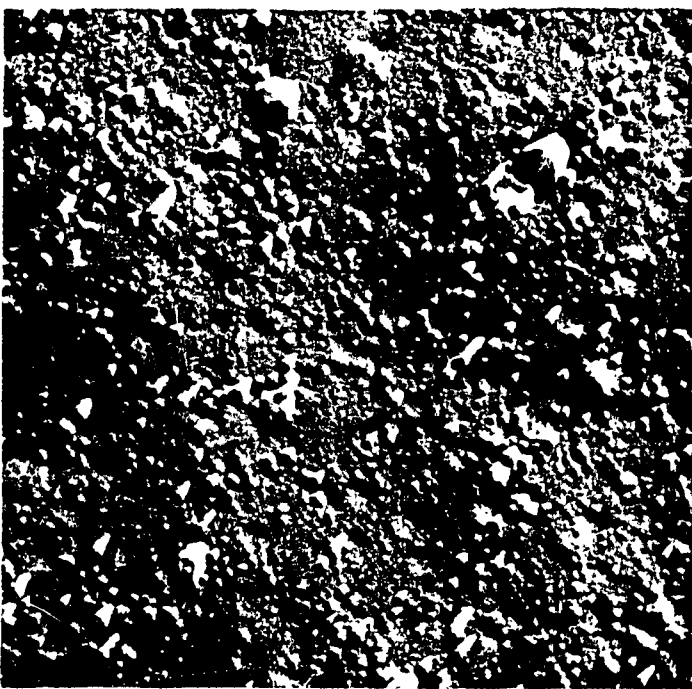


Fig. 9 - Uranium martelé irradié à  $470^{\circ}\text{C}$  ( X 3500 )

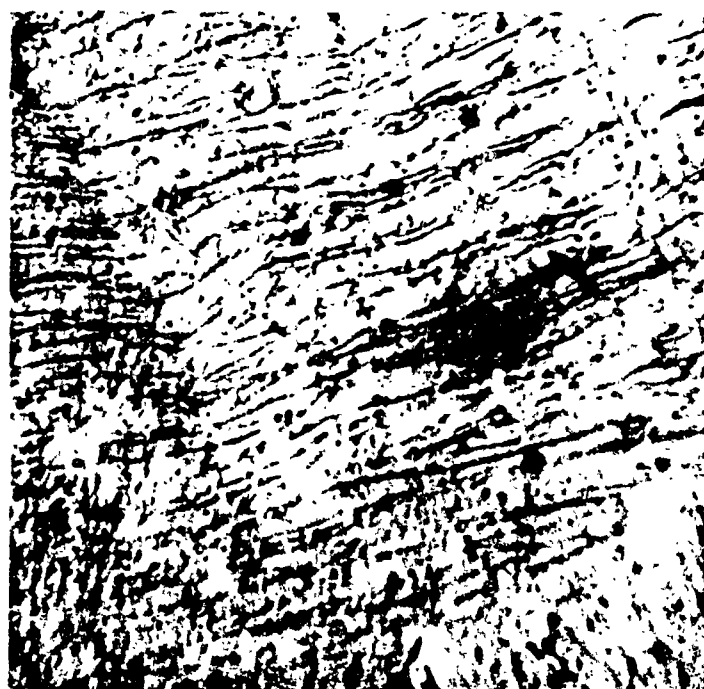


Fig. 10 - Uranium brut de coulée irradié à  $450^{\circ}\text{C}$  ( X 600 )

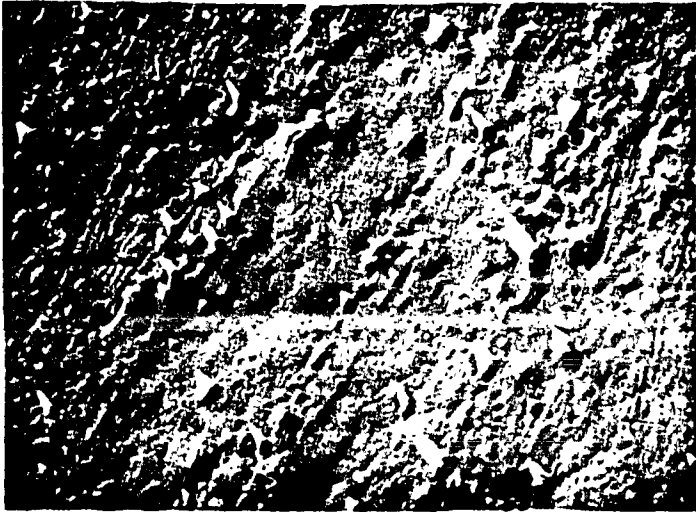


Fig. 11 - Uranium trempé depuis la phase  $\beta$ , irradié à 450°C (X 3500)

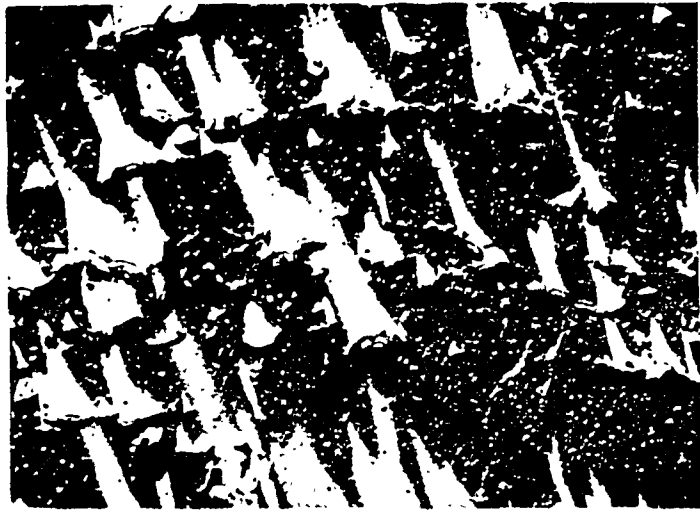


Fig. 12 - Uranium brut de coulée irradié à 450°C (X 2100)



Fig. 13 - Uranium trempé depuis la phase  $\beta$ , irradié à 600°C (X 350)



Fig. 14 - Uranium trempé depuis la phase  $\beta$ , irradié à 600°C (X 200)

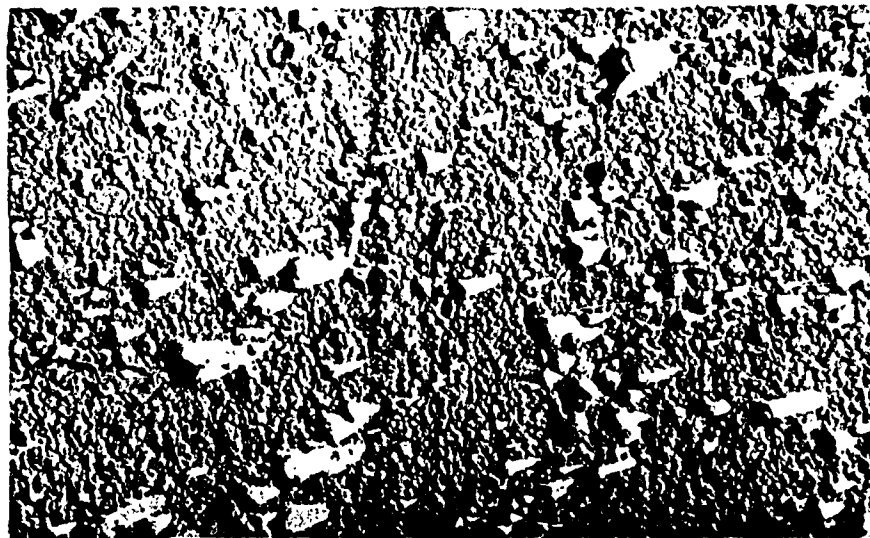


Fig. 15 - Uranium trempé depuis la phase  $\beta$ , irradié à 500°C (X 900)

**FIN**