

CHAMPEIX L., COBLENCÉ G., DARRAS R.

Rapport CEA n° 1385

Extraction et dosage de l'hydrogène dans l'uranium et le zirconium.

Sommaire. - La méthode de désorption sous vide à chaud en phase solide, méthode qui donne de bons résultats dans le cas des aciers, a été appliquée à l'uranium et au zirconium. Dans ces deux métaux, l'hydrogène se trouve surtout à l'état d'hydrure.

Il s'agit essentiellement de déterminer la température optimum et la durée du chauffage nécessaire pour obtenir une extraction d'hydrogène pratiquement complète.

Deux considérations interviennent dans le choix de la température. Elle doit être telle que, d'une part la décomposition de l'hydrure se fasse rapidement et complètement sous la pression réduite réalisée et d'autre part que la diffusion de l'hydrogène à travers le métal soit assez rapide.

L'appareil et le mode opératoire utilisés sont décrits ; des essais systématiques ont conduit à adopter une température de 650 °C pour l'uranium et de 1050 °C pour le zirconium.

1959

16 pages
+ 11 figures

CHAMPEIX L., COBLENCÉ G., DARRAS R.

Report CEA n° 1385

Extraction and determination of hydrogen in uranium and zirconium.

Summary. - The method of desorption under vacuum at high temperatures in the solid phase, which gives good results in the case of steels, has been applied to uranium and zirconium. In these two metals hydrogen is found mainly in the form of hydride.

It is chiefly a question of determining the most suitable temperature and the heating time necessary to obtain an almost total extraction of hydrogen.

Two considerations must be taken into account in the choice of temperature. It should be such that on the one hand the hydride decomposes rapidly and completely at the reduced pressure applied, and on the other hand the diffusion of hydrogen through the metal takes place fairly quickly.

The apparatus and the method used are described : systems-

PREMIER MINISTRE
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

EXTRACTION ET DOSAGE DE L' HYDROGENE DANS L' URANIUM ET LE ZIRCONIUM

par

L. CHAMPEIX, G. COBLENCE et R. DARRAS

Rapport CEA N° 1385

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

- Rapport C.E.A. n° 1385 -

Service de Chimie des Solides

**EXTRACTION ET DOSAGE DE L'HYDROGENE
DANS L'URANIUM ET LE ZIRCONIUM**

par

L. CHAMPEIX, G. COBLENCÉ et R. DARRAS

COMMUNICATION AUX JOURNEES D'AUTOMNE 1959

- 1959 -

EXTRACTION ET DOSAGE DE L'HYDROGENE

DANS L'URANIUM ET LE ZIRCONIUM

RESUME -

La méthode de désorption sous vide à chaud en phase solide, méthode qui donne de bons résultats dans le cas des aciers, a été appliquée à l'uranium et au zirconium. Dans ces deux métaux, l'hydrogène se trouve surtout à l'état d'hydrure.

Il s'agit essentiellement de déterminer la température optimum et la durée du chauffage nécessaire pour obtenir une extraction d'hydrogène pratiquement complète.

Deux considérations interviennent dans le choix de la température. Elle doit être telle que, d'une part la décomposition de l'hydrure se fasse rapidement et complètement sous la pression réduite réalisée et d'autre part que la diffusion de l'hydrogène à travers le métal soit assez rapide.

L'appareil et le mode opératoire utilisés sont décrits ; des essais systématiques ont conduit à adopter une température de 650° pour l'uranium et de 1050° pour le zirconium.

A) INTRODUCTION

La présence d'hydrogène dans l'uranium et le zirconium, même en faible quantité, peut modifier notablement leurs propriétés, et plus particulièrement leurs propriétés mécaniques (1) (2). De plus, au cours de l'utilisation des éléments combustibles nucléaires, certains phénomènes liés à la présence d'hydrogène sont très importants. Ainsi, l'évolution d'hydrogène contenu dans un barreau combustible en uranium peut conduire à un gonflement de la gaine, et à un incident fâcheux. Dans le cas du zirconium ou du zircaloy utilisés comme gaine, leur teneur en hydrogène influe notablement sur leur résistance à la corrosion aqueuse (3). Dans les deux cas, il est donc essentiel de disposer d'une méthode éprouvée permettant de doser l'hydrogène.

B) CAS DE L'URANIUM

I - BIBLIOGRAPHIE -

Dès 1951, KATZ et RABINOWITCH (4) citent trois méthodes utilisées dans les laboratoires américains pour doser l'hydrogène dans l'uranium : la désorption sous vide en phase solide, la combustion, et la mesure de pression d'équilibre après chauffage dans une enceinte préalablement vidée et dégazée.

A la même époque, SLOMAN et HARVEY (5) publient un travail comparant des résultats obtenus par désorption en phase solide et par fusion réductrice sous vide à 1800°, qui constitue donc une quatrième méthode. D'après ces auteurs, l'extraction sous vide ne serait pas complète, même au bout d'un temps très long (fig. 1) : après 12 heures à 600°, il serait encore possible de recueillir de

.../...

- Tableau I -

| Laboratoire | Température °C | Durée min. | Résultats (ppm) | | |
|-------------|-------------------|---------------|-----------------|-------------|------------|
| | | | Série 1 | Série 2 | Série 3 |
| A | 500 | 150 | <u>2,9</u> | <u>0,25</u> | 5,8 |
| B | 800 | 20 | 4,3 | 0,4 | 6,0 |
| C | 820 | 300 | 4,5 | <u>2,2</u> | <u>4,8</u> |
| D | 875 | 25 | 3,7 | 0,4 | 5,8 |
| E | 900 | 10 | 3,7 | 0,4 | 5,6 |

l'hydrogène par fusion ultérieure. Comme nous le verrons, nos essais, sans doute effectués dans des conditions différentes, nous ont conduits à des temps de dégazage beaucoup plus courts, rejoignant les conclusions d'autres auteurs tels que MOGARD et CABANE (6).

Par la suite, ces quatre méthodes furent utilisées : la combustion par GREGG (7), HOLT et BLOMENTHAL (8), l'extraction en phase solide par GARDNER (9), WABER et WRIGHT (10), MYERS (11), BRYSON et al. (12), la fusion réductrice par MALLET et GRIFFITH (13), la mesure de pression d'équilibre par DAVIS (14).

Pour comparer ces diverses méthodes, onze laboratoires américains ont analysé, en 1955, trois séries d'échantillons prélevés dans des uraniums de teneurs différentes en hydrogène. Les résultats ont été rassemblés par MALLET et GRIFFITH (15) ; nous les avons explicités sur les figures 2 et 3. Leur dispersion est assez importante, mais il n'apparaît aucune différence systématique entre les méthodes ; en particulier, les résultats de la méthode d'extraction sous vide ne sont pas inférieurs à ceux des trois autres méthodes.

Considérons maintenant les cinq résultats d'extraction en phase solide, obtenus dans cinq laboratoires utilisant des conditions opératoires différentes. Nous avons indiqué sur le tableau 1 la température, le temps d'extraction et les résultats obtenus. Ceux-ci sont cohérents, sauf dans le cas de l'extraction à 500°, où ils sont plus faibles pour les séries 1 et 2. L'extraction à 820° donne deux résultats divergents, mais ceci est peut être à rapprocher de la durée particulièrement longue de cette extraction (5 heures).

De leur côté, les métallographes ont réussi à identifier l'hydrogène par micrographie [MATTHEWS (16), MOGARD et CABANE (17), DICKERSON et al. (18), ROBILLARD et al. (19), ROBILLARD et CALAIS (20)]. La plus petite quantité d'hydrogène ainsi discernable serait de l'ordre de 1 à 2 ppm (14), et même inférieure avec la méthode développée au laboratoire du Professeur Lacombe (19), (20).

.../...

II - CONSIDERATIONS THEORIQUES -

Il convient tout d'abord de rappeler certaines données :

1 - Les hydrures d'uranium ne sont stables qu'à basse température : la variété α se transforme à 140° en variété β (21), qui est complètement dissociée à 436° sous une pression d'hydrogène égale à 760 mm de mercure (22).

2 - La solubilité de l'hydrogène atomique dans l'uranium est relativement faible, mais augmente avec la température ; elle présente de plus des discontinuités aux points de transformation $\alpha - \beta$ et $\beta - \delta$, ainsi qu'au point de fusion (fig. 4).

3 - A une température donnée, la solubilité est directement proportionnelle à la racine carrée de la pression d'hydrogène en présence de l'échantillon (fig. 5).

4 - Le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans l'uranium augmente avec la température (tableau II) :

Tableau II -

| Température °C | D Coefficient de diffusion cm ² /sec |
|-------------------|---|
| 566 | 7 x 10 ⁻⁶ |
| 593 | 11 x 10 ⁻⁶ |
| 640 | 22 x 10 ⁻⁶ |

5 - A une température donnée, la quantité de gaz q traversant la surface S d'un échantillon est donnée par la formule (23) :

$$q = \frac{DSK}{d} (\sqrt{P_1} - \sqrt{P_2}),$$

dans laquelle D est le coefficient de diffusion, S la surface de

.../...

l'échantillon, d son épaisseur, K une constante qui dépend du métal et du gaz considéré, et P_1 et P_2 les pressions de part et d'autre de la surface.

Il y a donc intérêt à opérer sous vide poussé, mais on est pratiquement limité à 10^{-5} mm de mercure. Il faudrait également utiliser des échantillons présentant une surface maximum et une épaisseur minimum, mais l'influence de l'état de surface ne doit pas être trop accru.

Il reste à choisir la température et la durée de l'extraction, ce qui ne peut être fait qu'au moyen d'essais systématiques.

III - APPAREILLAGE -

L'appareil utilisé est classique (fig. 6). Toutefois, une pompe à diffusion de mercure a été placée entre le tube d'extraction et la pompe Toepler pour améliorer le vide et réaliser un entraînement plus rapide des gaz extraits. Le vide au voisinage de l'échantillon métallique est ainsi maintenu entre $5 \cdot 10^{-5}$ et 10^{-5} mm de mercure pendant toute la durée de la désorption.

Le tube d'extraction est en silice transparente ; il comporte une butée qui permet de maintenir les échantillons à son entrée pendant le dégazage de sa partie inférieure chauffée. Une simple rotation du rodage sphérique permet ensuite de les laisser glisser successivement au fond du tube.

IV - MODE OPERATOIRE-

Les échantillons sont prélevés à la scie, dégrossis à la lime puis au papier abrasif. Ils sont enfin soumis à un décapage électrolytique en bain sulfo-phosphorique, rincés à l'eau distillée puis séchés.

Ces échantillons restant situés à l'entrée non chauffée du tube de silice, on dégase l'ensemble durant 3 heures, la partie inférieure du tube étant portée à 900°C ; après quoi, l'essai à

.../...

blanc doit donner une quantité de gaz inférieure à $0,05 \text{ cm}^3/\text{heure}$, ce qui correspond à $0,2 \text{ ppm}$ d'hydrogène par heure, pour un échantillon de 20 g .

La température est ensuite abaissée à celle désirée pour la désorption du gaz, l'appareil placé sous vide statique par le jeu d'un robinet, puis le premier échantillon est amené dans la partie chauffée du tube. La pompe à diffusion refoule alors le gaz dégagé vers la pompe Toepler, qui permet de le transférer en totalité dans l'éprouvette graduée où l'on mesure son volume et sa pression. L'opération est terminée lorsqu'on ne recueille plus que des quantités de gaz correspondant à la valeur de l'essai à blanc ; le vide alors mesuré au moyen de la jauge de MacLeod doit être redescendu à 10^{-5} mm de mercure.

V - ETUDE DU TEMPS DE DEGAZAGE A DIVERSES TEMPERATURES -

On remarquera tout d'abord qu'un échantillon d'uranium poli laissé dans l'appareil sous vide à la température ambiante pendant 3 heures n'a pas abandonné une quantité de gaz mesurable. Aucune perte d'hydrogène n'est donc à craindre dans ces conditions (24).

Les extractions de gaz ont été effectuées sur des échantillons d'uranium provenant d'une même barre, aux températures de :

500° et 600° , c'est-à-dire nettement en phase α ;

650° , soit juste avant la transformation $\alpha \rightarrow \beta$;

720° , soit en phase β ;

800° , soit en phase δ .

Les échantillons étaient des demi-cylindres de 30 mm de diamètre et 4 mm de hauteur ; ils pesaient environ 20 grammes .

Les résultats obtenus sont indiqués dans le tableau III.

.../...

Tableau III -

| Température °C | % de gas recueilli | | | Durée de l'extraction complète | Volume de gas recueilli cm ³ /100 g |
|-------------------|--------------------|-----------|-----------|-----------------------------------|--|
| | en 15 min | en 30 min | en 45 min | | |
| 800 | 85 % | 100 % | 100 % | 30 min | 5,92 |
| 720 | 76 | 95 | 100 | 40 min | 5,91 |
| 650 | 75 | 95 | 100 | 45 min | 5,98 |
| 600 | 60 | 85 | 94 | 1 h 30 min | 5,91 |
| 500 | 25 | 50 | 62 | 2 h 30 min | 5,80 |

On remarque que le volume de gas recueilli est pratiquement identique à 800, 720, 650 et 600°, mais la durée de l'extraction croit rapidement si l'on opère au dessous de 650°. Aussi, cette température semble-t-elle la plus favorable, d'autant plus que :

- la durée de la désorption est peu diminuée à 720°
- un essai de désorption à 650° poursuivi à 800° n'a pas provoqué de désorption supplémentaire.

La figure 7 indique la forme de la courbe de désorption, la figure 8, le pourcentage de gas extrait en fonction de la température, pour des durées d'extraction données, et la figure 9, le temps nécessaire pour obtenir une extraction complète suivant la température.

Les deux derniers graphiques montrent bien l'importance du point de transition $\alpha \rightarrow \beta$ et l'intérêt de travailler "en haut de la phase α ". Ceci est évidemment à rapprocher de l'augmentation de solubilité de l'hydrogène au passage du point de transformation $\alpha - \beta$.

.../...

La figure 8 comporte également deux points résultant d'essais effectués en Suède par MOGARD et CABANE (5), mais avec des échantillons plus petits (10 g au lieu de 20 g). Il est donc logique que les durées de dégazage alors observées soient aussi légèrement plus faibles, et finalement, l'accord entre les deux résultats apparaît satisfaisant.

VI - PRECISION DE LA MESURE -

A ce sujet, quelques remarques s'imposent tout d'abord :

1 - La teneur en hydrogène du gaz extrait est toujours très forte : 96 % dans les essais rapportés plus haut. En outre, elle semble assez constante pour des échantillons renfermant des teneurs voisines. Cependant, il est prudent de vérifier ce point par une analyse du gaz recueilli, et d'effectuer éventuellement une correction.

2 - Des examens micrographiques ont été effectués par M. CABANE avant et après dégazage : dans le premier cas des particules d'hydrure sont nettement visibles aux joints de grains, mais dans le second, elles sont remplacées par de petites cavités, ce qui indiquerait la disparition de l'hydrure, au moins dans les limites de la sensibilité de l'examen micrographique.

3 - Sur notre appareil, la plus petite quantité de gaz décelable peut être estimée à $0,0013 \text{ cm}^3$ (1 cm^3 sous une pression d'un mm de mercure). Cela correspond à $0,013 \text{ cm}^3/100 \text{ g}$ pour un échantillon de 10 g.

Cela étant, les erreurs relatives sur les mesures apparaissent dans le tableau IV en fonction du poids de l'échantillon et de sa teneur en hydrogène :

.../...

Tableau IV -

| Poids de l'échantillon g | Teneur en hydrogène cm ³ /100 g | | | | |
|--------------------------------|---|--------|-------|-------|-------|
| | 1 | 5 | 10 | 50 | 100 |
| 1 | 8 % | 4 % | 2 % | 1,5 % | 1 % |
| 10 | 0,8 % | 0,4 % | 0,2 % | 0,1 % | 0,1 % |
| 50 | 0,15 % | 0,08 % | - | - | - |

Cependant, ce calcul d'erreur ne se rapporte qu'à la mesure du volume d'hydrogène recueilli et ne se prononce pas sur l'achèvement effectif de l'extraction du gaz qui, bien que fort probable vu l'allure asymptotique des courbes de désorption, reste impossible à prouver en toute rigueur.

L'utilisation de la méthode de fusion réductrice sous vide (5) apporte toutefois un nouvel élément positif : opérant sur des échantillons prélevés dans un fil d'uranium de diamètre 5 mm, nous avons obtenu les teneurs en hydrogène suivantes :

par désorption sous vide : $3,10 \pm 0,1 \text{ cm}^3/100 \text{ g}$
 par fusion sous vide : $3,02 \pm 0,5 \text{ cm}^3/100 \text{ g}$
 par fusion sous vide après désorption : $\leq 0,25 \text{ cm}^3/100 \text{ g}$ (ordre de grandeur de l'essai à blanc).

C) CAS DU ZIRCONIUM

I - BIBLIOGRAPHIE -

Une grande partie de ce qui vient d'être dit pour l'uranium est valable pour le zirconium ; nous nous limiterons donc aux différences essentielles.

On retrouve trois des méthodes déjà citées : la combustion (7), (25), (26), la désorption en phase solide (27), la fusion réductrice (5). La méthode par pression d'équilibre ne semble pas avoir été utilisée pour ce métal.

Récemment GOWARD et JACOBS (28) ont discuté ces méthodes en accordant leur préférence à la désorption en phase solide.

II - CONSIDERATIONS THEORIQUES -

Le zirconium se différencie de l'uranium essentiellement par son aptitude beaucoup plus grande à dissoudre l'hydrogène. De plus, les hydrures de zirconium sont plus stables que les hydrures d'uranium. Aussi faut-il distinguer entre la solubilité dans la phase métallique ("solubilité finale") qui croît avec la température, et la "solubilité maximum", avec formation d'hydrures, qui diminue au contraire lorsque la température augmente (29). La figure 10 donne les isothermes d'absorption entre 375 et 943°C.

Dans ces conditions, il est essentiel de connaître, avec une certaine précision, la pression d'équilibre de l'hydrogène en fonction de sa concentration dans le zirconium. Ce travail a été effectué en 1954 par SCHWARTZ et MALLETT (30) dont les résultats sont donnés par la figure 11.

En 1955, GULBRANSEN (29) conteste la validité de certaines extrapolations faites par SCHWARTZ et MALLETT et donne de nouveaux chiffres, également reportés sur la figure 11. Pratiquement, les deux auteurs sont d'accord dans la zone qui nous intéresse présentement :

.../...

DM N° 764

entre 1000 et 1100°C, pour un zirconium contenant 1 ppm d'hydrogène la pression d'équilibre est de l'ordre de 1 à $5 \cdot 10^{-5}$ mm Hg.

D'autre part, le coefficient de diffusion D de l'hydrogène dans le zirconium augmente avec la température.

Ces diverses considérations permettent d'envisager une extraction satisfaisante à condition d'opérer sous un vide de l'ordre de 10^{-5} mm Hg et à une température élevée. C'est bien ce qui a été vérifié expérimentalement.

III - APPAREILLAGE ET MODE OPERATOIRE -

L'appareillage et le mode opératoire sont identiques à ceux décrits pour l'uranium. Notons seulement que le zirconium est décapé électrolytiquement dans un bain acéto-perchlorique et que le dégazage préliminaire est réalisé à 1100°C.

IV - ETUDE DE L'EXTRACTION A DIVERSES TEMPERATURES -

Les échantillons étaient sensiblement parallélépipédiques, de dimensions 10 x 5 x 3 et pesaient environ 1 gramme. Dans tous les cas, la teneur du gaz en hydrogène est supérieure à 99,9 %.

Les essais effectués à diverses températures ont conduit aux résultats suivants (tableau V)

Tableau V -

| Température °C | % gaz recueilli | | | Essai à blanc cm ³ /h | Durée de l' extraction complète | Volume recueilli cm ³ /100 g |
|-------------------|-----------------|----------|----------|---|---------------------------------------|---|
| | en 15min | en 30min | en 45min | | | |
| 1100 | 99,8 | 100 | - | 0,03 | 25 min | 91 ± 0,9 |
| 1050 | 96,0 | 100 | - | 0,02 | 30 min | 92 ± 0,9 |
| 1000 | 88,4 | 97 | 100 | 0,02 | 40 min | 90 ± 0,9 |
| 950 | 75,7 | 91 | 98 | 0,02 | 50 min | 88 ± 0,9 |
| 900 | 76,0 | 87 | 95 | 0,01 | 1 heure | 86 ± 0,9 |
| 850 | 27,0 | 48 | 63 | 0,01 | 2 heures | 75 ± 0,8 |

.../...

Ces résultats montrent qu'il est nécessaire d'opérer au moins à 1050° pour obtenir une extraction complète en un temps acceptable. De plus, cette température de 1050° apparaît bien suffisante : en effet, dans plusieurs essais sur diverses qualités de zirconium à 1000°, 1050°, 1100°, nous n'avons jamais obtenu à 1100° un volume d'hydrogène supérieur à celui recueilli à 1050°. Par contre, le volume extrait à 1050° est parfois supérieur à celui obtenu à 1000°C.

D) CONCLUSIONS

La désorption de l'hydrogène en phase solide est une méthode simple et assez rapide. Elle donne de bons résultats pour l'uranium et le zirconium si on tient compte des deux impératifs suivants :

- Etablir et maintenir un vide suffisant au dessus de l'échantillon, et par suite évacuer le gaz extrait aussi rapidement que possible.

- Choisir rationnellement la température.

A ce dernier point de vue, et compte tenu des travaux effectués par ailleurs sur d'autres métaux, il semble permis d'énoncer une règle empirique, selon laquelle, pour un métal donné, la température optimum de désorption serait de l'ordre de 60 % de sa température de fusion.

Le tableau VI donne quelques exemples de résultats obtenus. 1 cm³ d'hydrogène par 100 g de métal correspond à 0,893 ppm.

.../...

Tableau VI -

| Métal | Teneur en hydrogène cm ³ /100 g de métal |
|------------------|---|
| <u>URANIUM</u> | |
| Coulé sous argon | 4,5 |
| Coulé sous vide | 0,5 |
| <u>ZIRCONIUM</u> | |
| Van Arkel A | 26,9 |
| B | 22,8 |
| C | 35,1 |
| Kroll Z 3 D | 65,5 |
| Z 1 D | 92 |

Enfin, notons que ces résultats peuvent être, dans une certaine mesure, extrapolés au dégazage industriel de lingots ou de pièces importantes : dans ce cas, les températures minima de chauffage précédemment déterminées doivent rester valables, le temps de désorption étant par contre allongé.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) DARRAS R. et CAILLAT R. - Progress in Nuclear Energy - 1959 - Série V - vol. 2 - Pergamon Press - p. 19-27.
- (2) LUSTMAN B. et KERZE F. - The Metallurgy of Zirconium - 1955 - Mc Graw Hill Book Cy. p. 491.
- (3) GRALL L. - Rapport CEA - DM N° 767 - 1959 - non publié.
- (4) KATZ J.J. et RABINOWITCH E. - The Chemistry of Uranium - 1951 - Mc Graw Hill Book Cy. - p. 183.
- (5) SLOMAN H.A., HARVEY C.A. et KUBASCHEWSKI O. - J. Inst. of Metals - 1952 - Vol. 80 - n° 7 - p. 391-407.
- (6) MOGARD H. et CABANE G. - Rapport CEA - MCA N° 138 - 1952 - non publié.
- (7) GREGG C.G., WARTEL W.S. et KOPELMAN B. - SEP 22 - 1949.
- (8) HOLT B.D. et BLUMENTHAL B. - ANL-FF-403 - 1955.
- (9) GARDNER H.R. - BMI-X-128 - 1955 - p. 29.
- (10) WABER J.T. et WRIGHT E.S. - BMI-X-128 - 1955 - p. 34.
- (11) MYERS H.W. - BMI-X-128 - 1955 - p. 38.
- (12) BRYSON T.C., GOWARD G.W. et TRETOWE - WAPD-C (AR)-108 - 1955.

/.....

- (13) MALLET M.W. et GRIFFITH - BMI-X-128 - 1955 - p. 28.
- (14) DAVIS W.D. - KAPL 1548 - 1956.
- (15) MALLET M.W. et GRIFFITH - BMI-X-128 - 1955 - p. 13-22.
- (16) MATTHEWS C.O. - TID 5243 - 1954 - p. 46-58.
- (17) MOGARD H. et CABANE G. - Revue de Métallurgie - 1954 - LI.n° 9.
- (18) DICKERSON R.F., GERDS A.F. et VAUGHAN D.A. - J. Metals - 1956 -
8, 4 - p. 456-460.
- (19) ROBILLARD A., DURAND J. et LACOMBE P. - C.R. Académie des
Sciences - 1956 - 242 - p. 508.
- (20) ROBILLARD A. et CALAIS - C.R. Académie des Sciences - 1957. 245-
p. 59.
- (21) CAILLAT R., CORIOU H., et PERIO P. - C.R. Académie des Sciences -
1953 - 237 - p. 812.
- (22) Mac WOOD G.E. - RL-4-7-602, 1945 - cité par KATZ et RABINOWITCH,
p. 191.
- (23) DUSHMAN S. - Vacuum Technique - 1949 - J: Wiley - p. 607.
- (24) DARRAS R. - Rapport CEA - MCA N° 155 - 1954 - non publié.
- (25) HOLT B.D. - Anal. Chem. - 1956 - 28 - p. 1153.
- (26) CODELL M. et NORWITZ - Anal. Chem. - 1956 - 28 - p. 106.

/.....

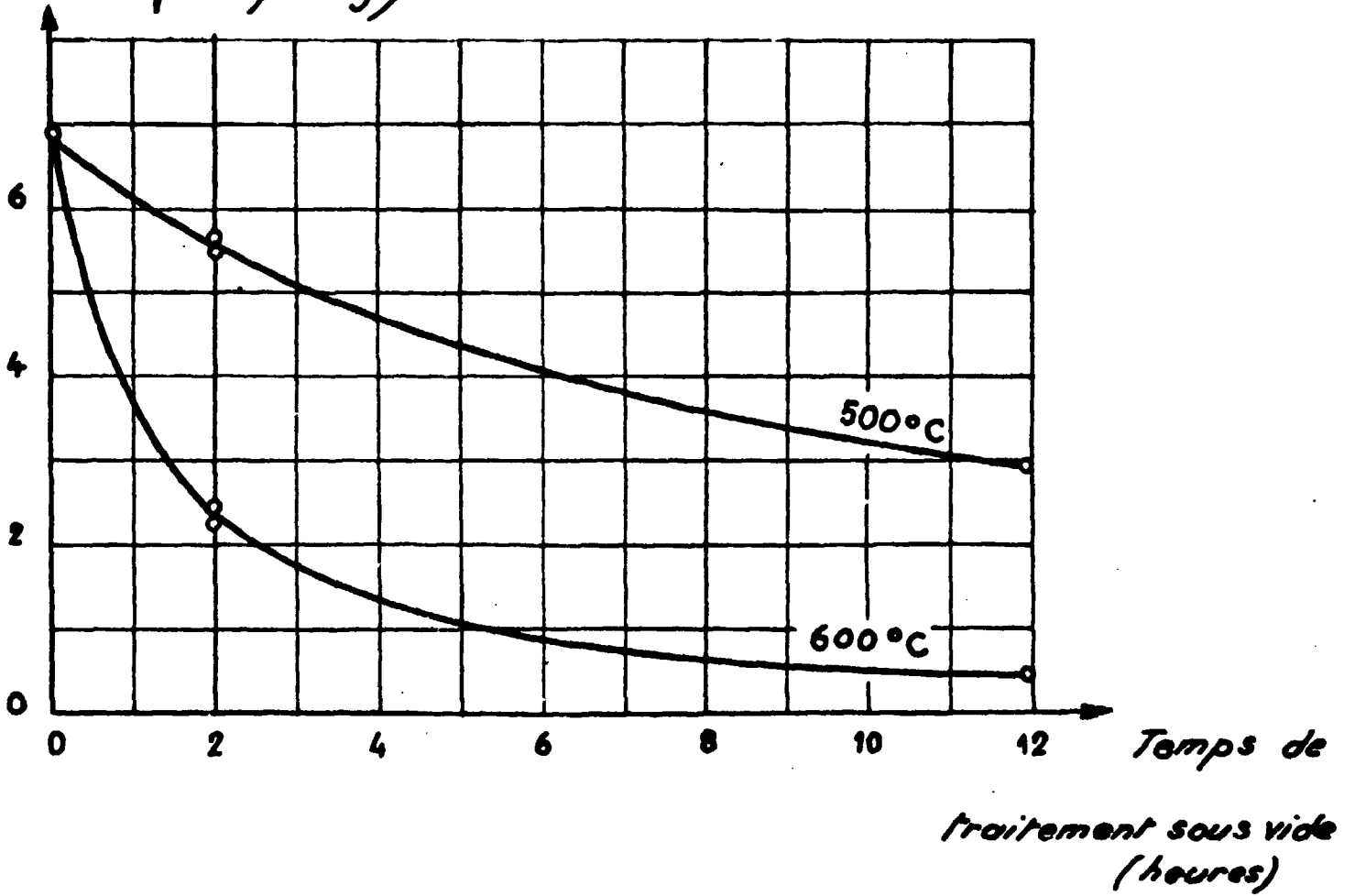
DM N° 764

- (27) Mc GEARY R.K. - Symposium on Zirconium and Zirconium Alloys
ASM - 1953 - p. 168.
- (28) GOWARD G.W. et JACOBS R.M. - Bettis Technical Review
1958 - WAPD - BT - 11 - p. 81.
- (29) GULBRANSEN E.A. et ANDREW K.F.- J. of Metals - 1955 -
7, 1, p. 136-144.
- (30) SCHWARTZ M. et MALLET M.W. - Trans. ASM - 1954 - 46, p. 640-54.

fig. 1

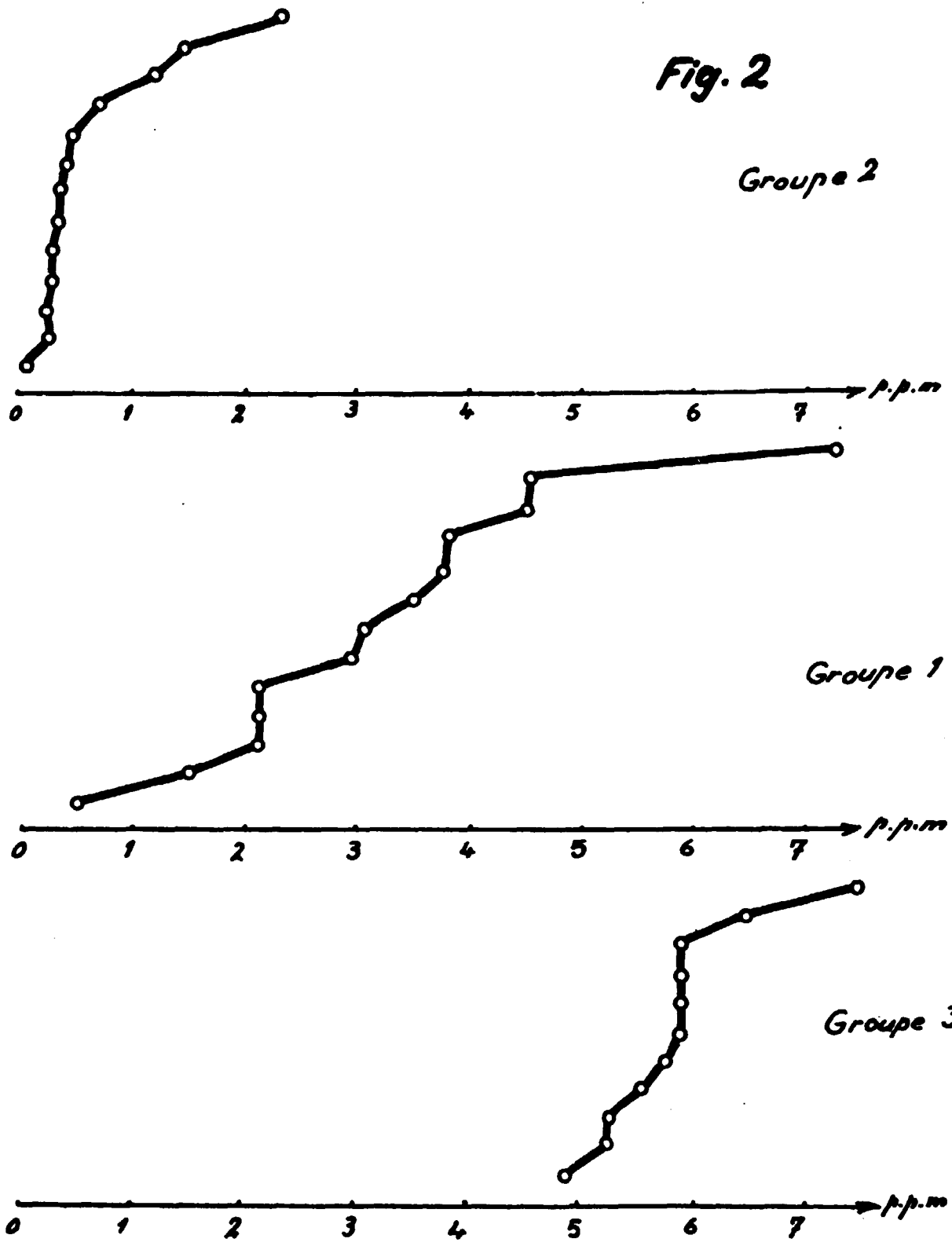
Hydrogène résiduaire

(cm³/100 g.)



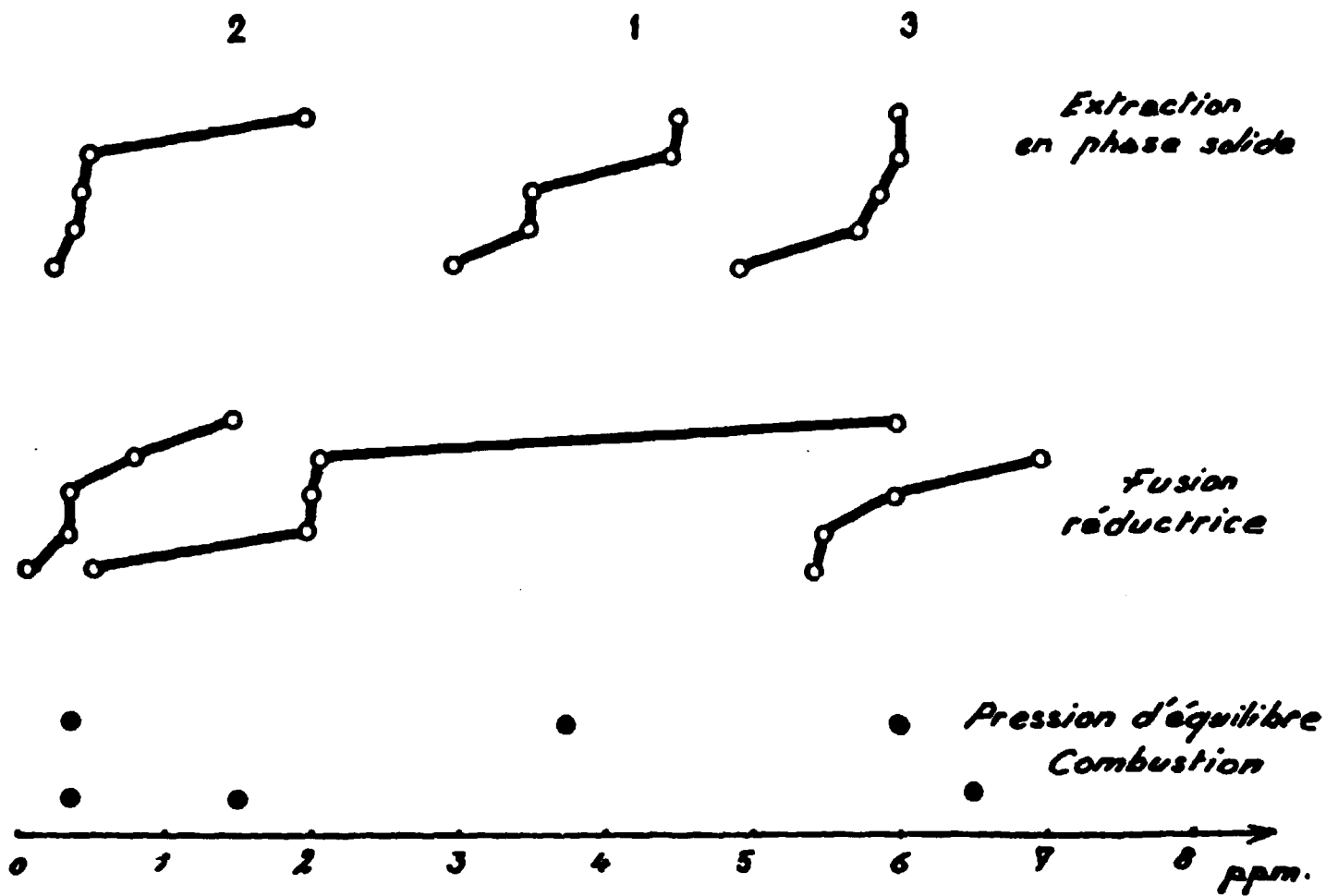
HYDROGÈNE RÉSIDUAIRE DOSÉ PAR FUSION

RÉDUCTRICE APRÈS EXTRACTION SOUS VIDE



DOSAGE DE L'HYDROGÈNE DANS L'URANIUM
RÉSULTATS RASSEMBLÉS PAR MALLET ET GRIFFITH

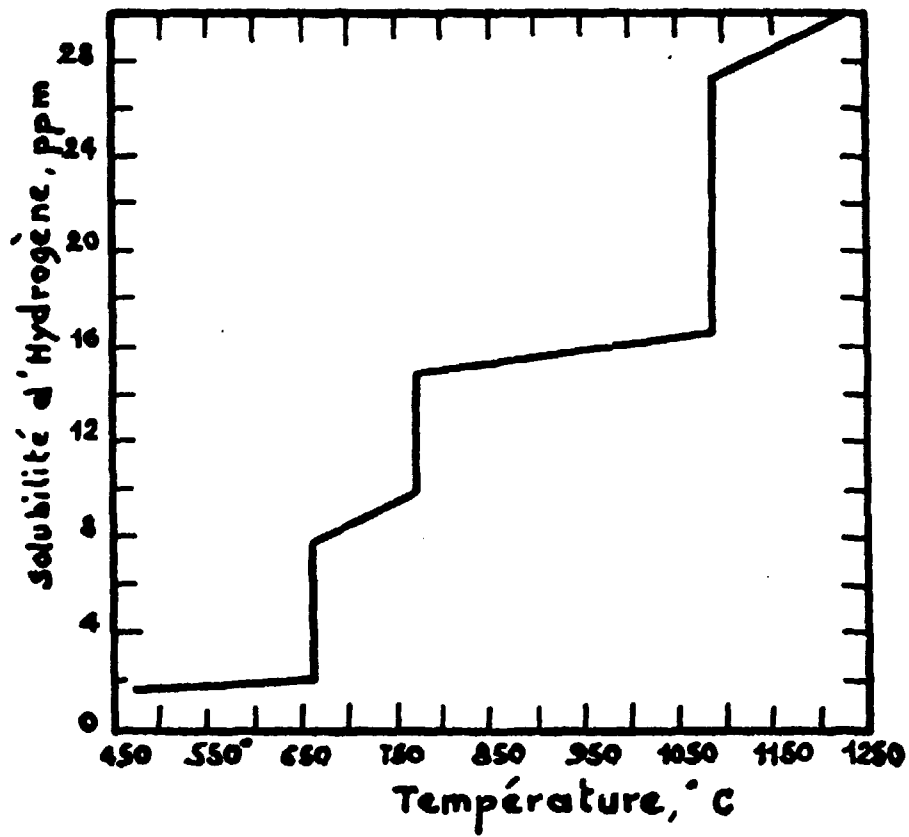
Fig. 3



DOSAGE DE L'HYDROGÈNE DANS L'URANIUM

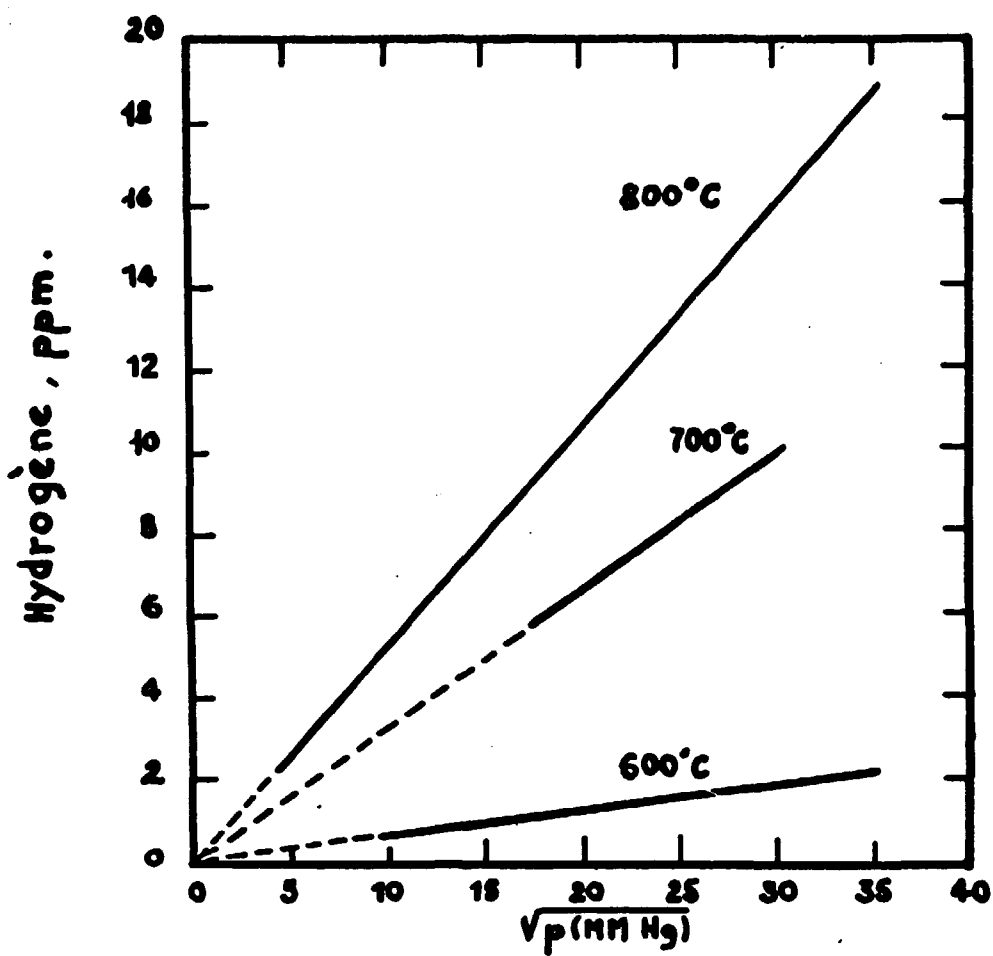
RÉSULTATS REGROUPÉS PAR MÉTHODE

Fig. 4



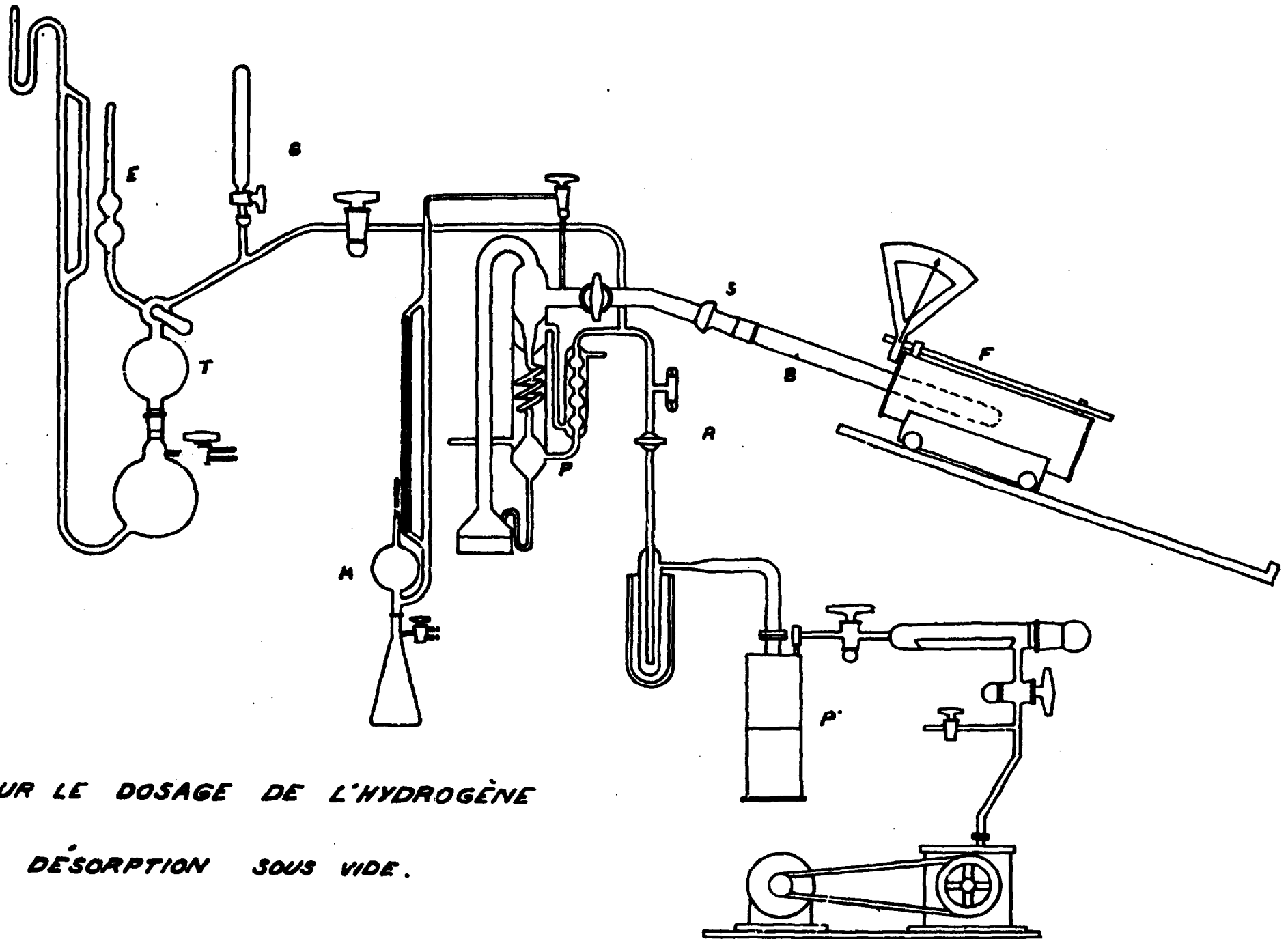
*Solubilité de l'Hydrogène dans l'Uranium
métallique en équilibre avec l'Hydrogène
sous pression atmosphérique.*

Fig.5



*Solubilité de l'Hydrogène dans l'Uranium
métallique en fonction de la pression
d'Hydrogène, à 600°, 700° et 800°C*

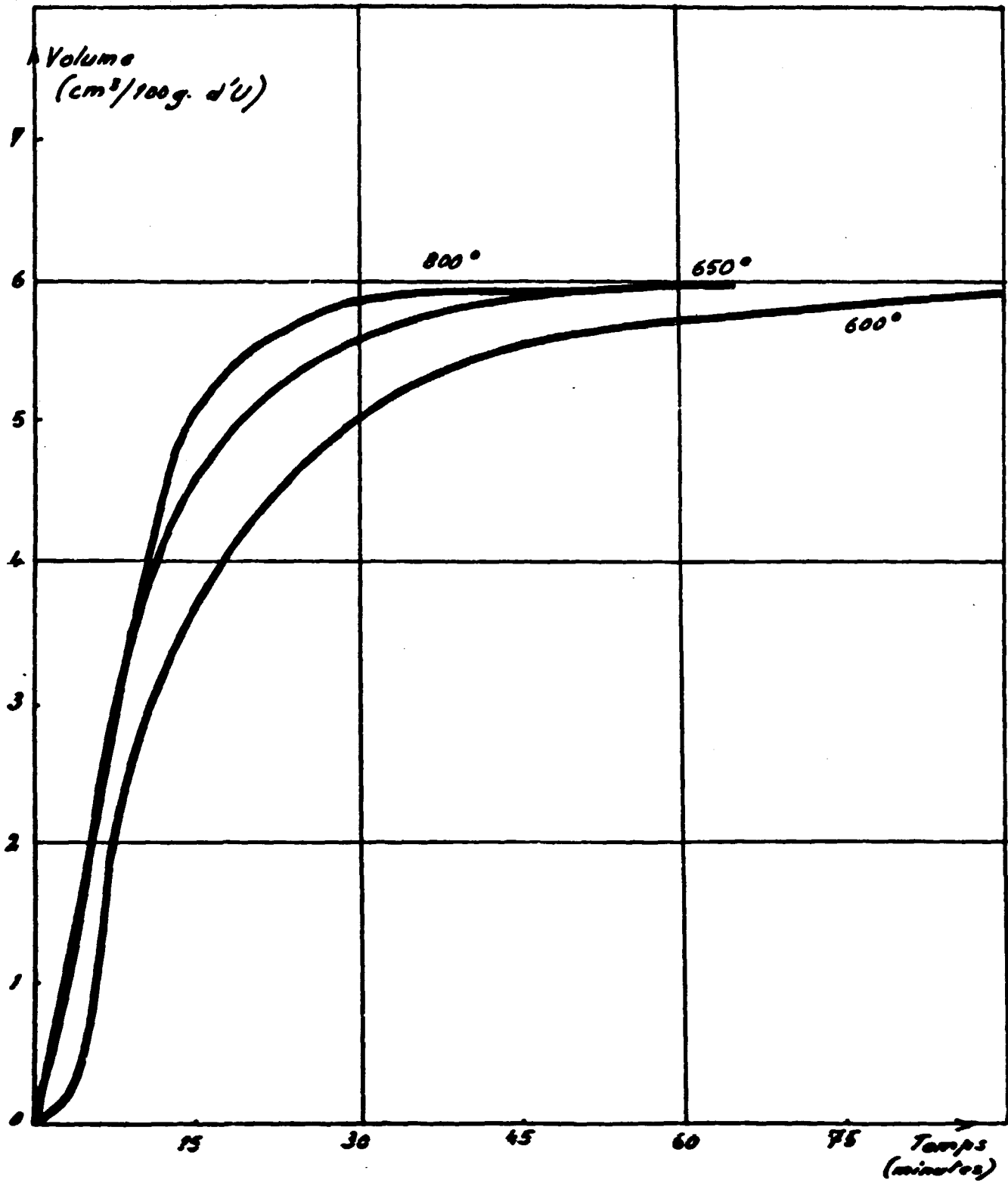
Fig. 6



APPAREIL POUR LE DOSAGE DE L'HYDROGÈNE

PAR DÉSORPTION SOUS VIDE.

Fig. 7



COURBES DE DÉSORPTION À 600°, 650° et 800°C

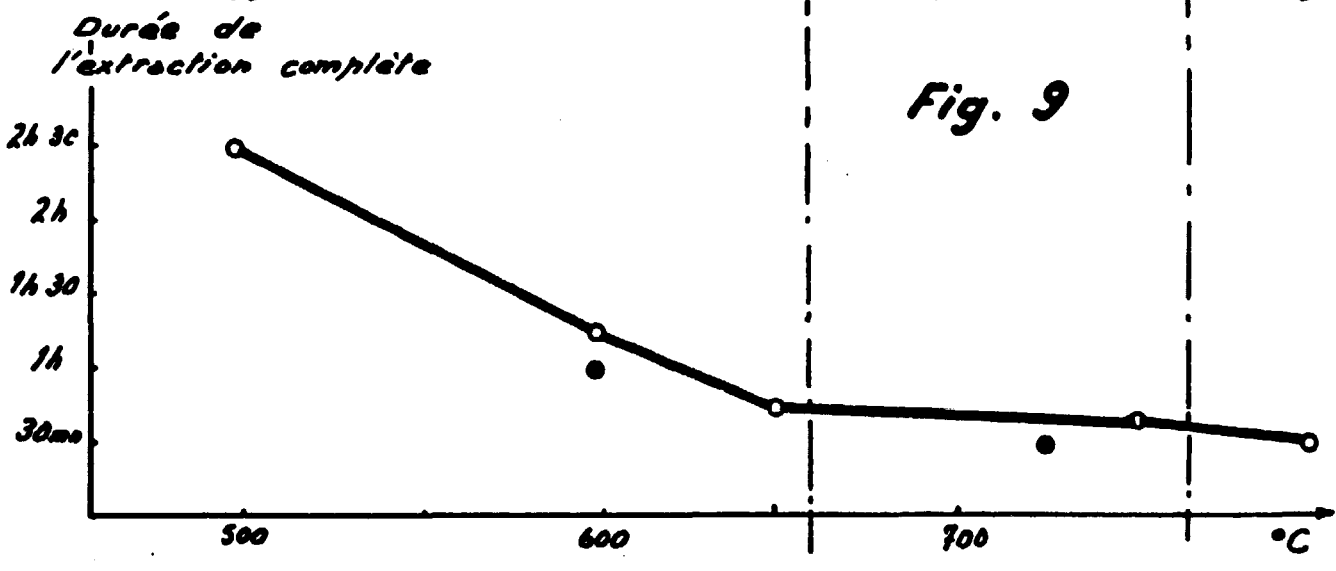
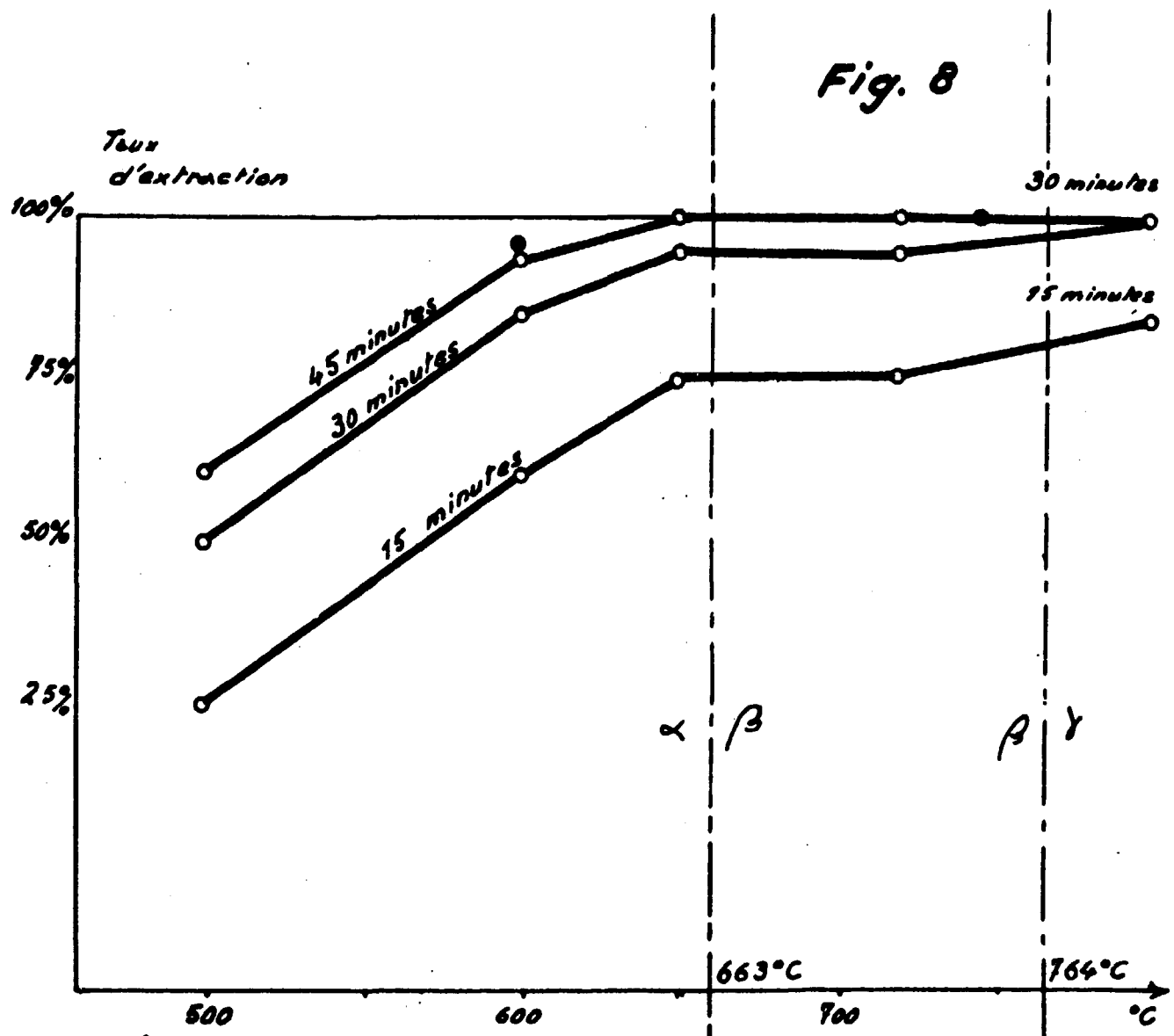
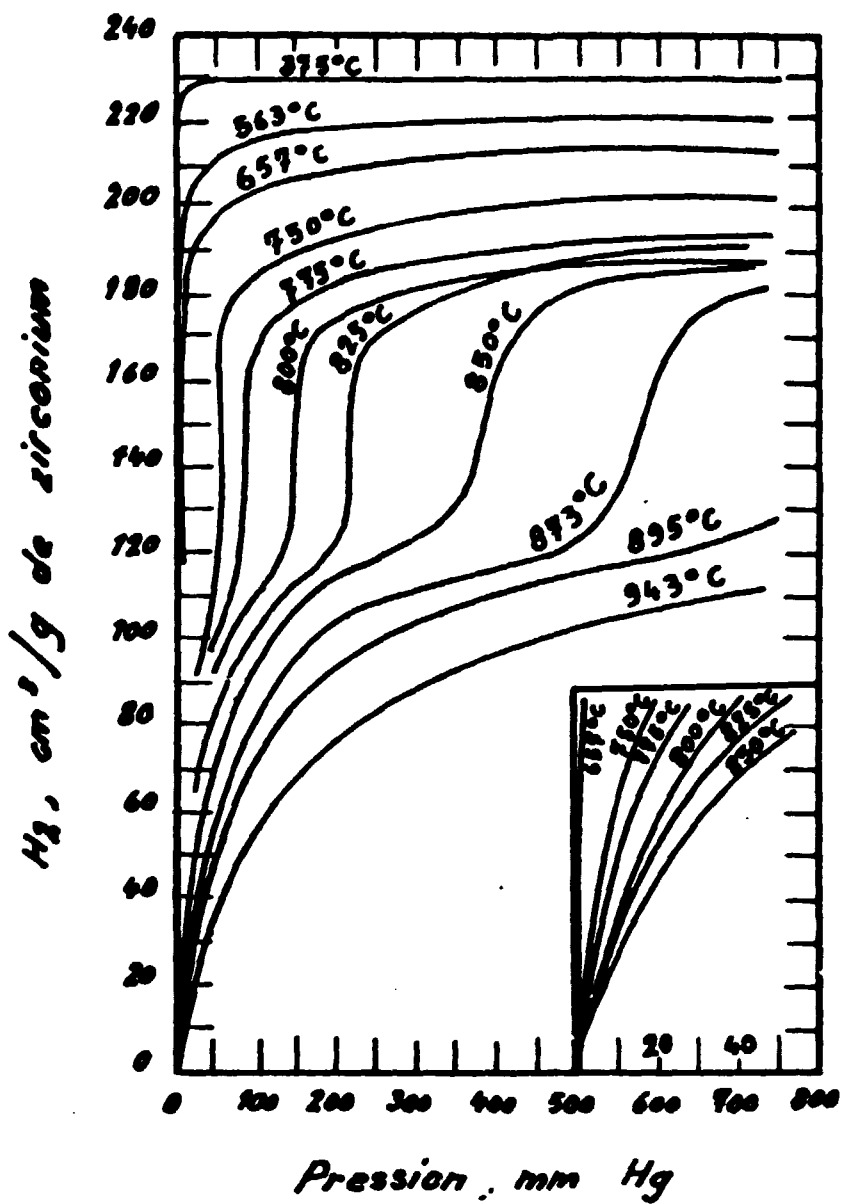
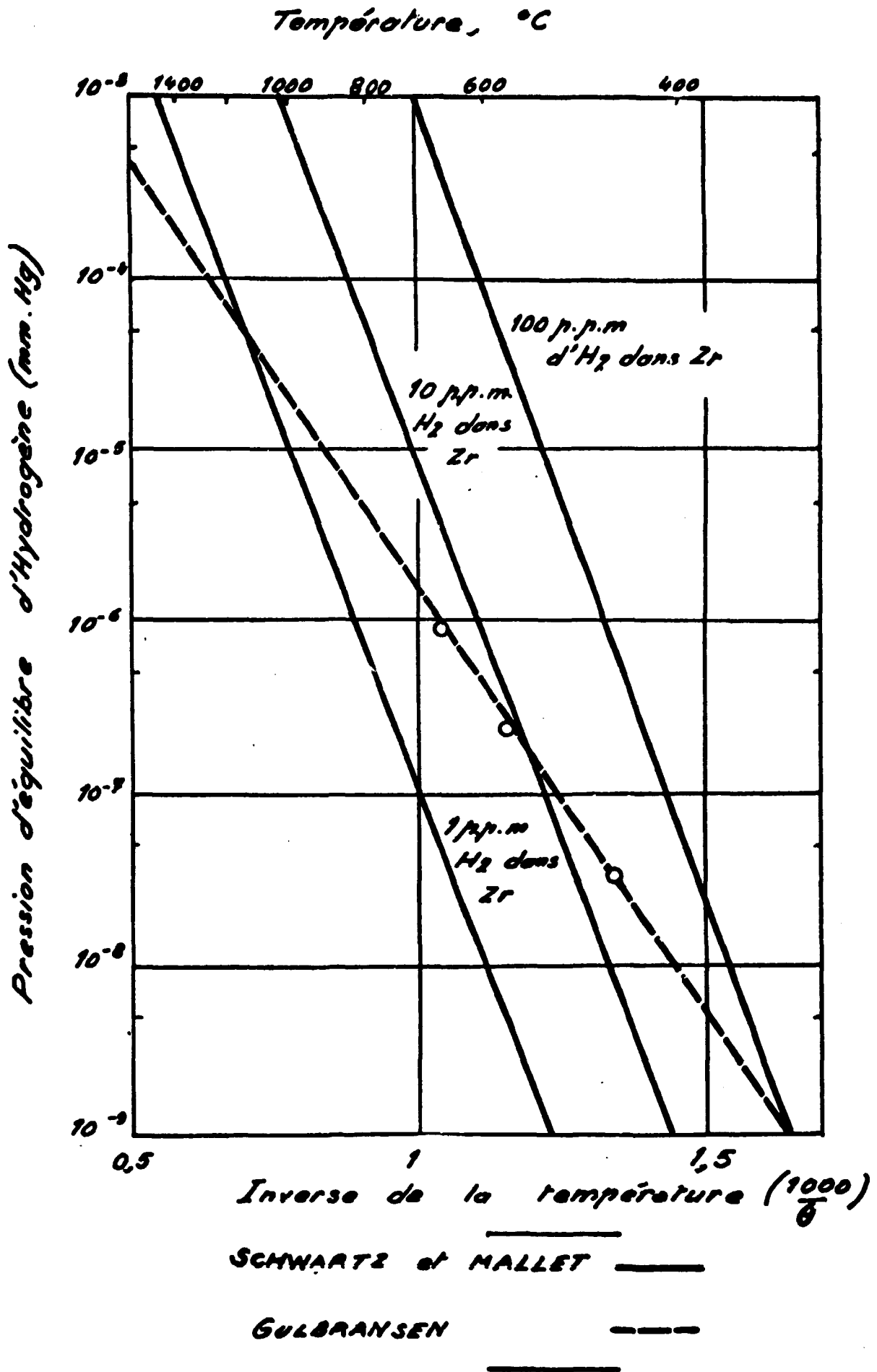


Fig. 10



**ISOTHERMES D'ABSORPTION DE L'HYDROGÈNE
DANS LE ZIRCONIUM**

Fig. 11



PRESSION D'ÉQUILIBRE DE L'HYDROGÈNE SUR LE ZIRCONIUM CONTENANT DES QUANTITÉS DONNÉES D'HYDROGÈNE DISSOUS.

FIN