

C. N. E. A. Biblioteca

ARCHIVO PUBLICACIONES

Nº

1 1959

04.59.02

NELLY H. A.
DE LIBANATI

*

RECRISTALLISATION
SECONDAIRE ET
RECRISTALLISATION
PAR ECROUISSAGE
CRITIQUE DE
L'URANIUM DE
HAUTE PURETE



AMBROSIS de LIBANATI

H E S E

présentée

à la Faculté des Sciences
de l'Université de Paris

pour obtenir le titre de

DOCTEUR EN SCIENCES MATHÉMATIQUES

le 20 Mars 1939

par

M. J. L. DE BRASSE

Professeur à l'Université
(Université de La Plata, Argentine)

La Commission de lecture et de certification
sur le manuscrit a été constituée le 20 Mars
1939.

Le 20 Mars 1939 devant la Commission d'examen.



M. G. CHATELAIN

Président

M. J. L. DE BRASSE

Examinateur

M. P. LACOMBE

Examinateur

INTRODUCTION

Nous avons cherché à comprendre les mécanismes de formation des gros cristaux obtenus dans l'uranium de haute pureté par les deux traitements suivants : une recristallisation secondaire due à une texture primaire prononcée, développée par recuit d'un métal fortement déformé, une recristallisation après un écrouissage faible de cette même texture de recristallisation primaire.

Dans la première partie de notre travail, nous avons déterminé les conditions d'apparition des gros grains secondaires et leurs orientations cristallographiques.

Dans la deuxième partie, nous avons étudié les facteurs qui permettent d'obtenir des gros grains par un écrouissage critique, et déterminé les orientations et relations cristallographiques des cristaux obtenus.

A priori, on pourrait penser qu'il n'y a pas de différence fondamentale entre les deux mécanismes de croissance, mais la discussion des résultats nous conduira à suggérer qu'il s'agit de deux processus différents. Dans le premier cas, on serait en présence de grains secondaires qui proviendraient de la croissance de quelques grains primaires privilégiés, tandis que dans le second cas, il s'agirait de gros grains développés par le mécanisme classique de germination et croissance.

REMERCIEMENTS

Cette étude a été réalisée au Centre de Recherches Métallurgiques de l'Ecole des Mines de Paris, sous la direction de Monsieur Paul Lacombe, Professeur de Métallurgie et Directeur du Centre de Recherches Métallurgiques. Nous le prions de bien vouloir agréer notre vive reconnaissance pour l'orientation qu'il a donnée à nos recherches et l'intérêt constant qu'il nous a manifesté.

Nous remercions très sincèrement Monsieur le Professeur Chaudron, Membre de l'Institut, de l'intérêt qu'il a bien voulu nous témoigner en acceptant de présider notre jury de thèse.

Nous exprimons nos remerciements à tous les membres du Centre de Recherches Métallurgiques avec qui nous avons eu de fructueuses discussions, et plus particulièrement Monsieur Calais et Madame Simenel, qui nous ont apporté leur collaboration très efficace.

Ière PARTIE

RECRISTALLISATION SECONDAIRE DE L'URANIUM

D'une manière générale, on peut distinguer deux types de recristallisation secondaire : celle due à une texture primaire prononcée et celle provenant d'une phase dispersée.

Cette dernière a été étudiée par Fisher (1) pour l'élaboration de monocristaux d'uranium « .

C'est la recristallisation secondaire obtenue à partir d'une texture de recristallisation primaire prononcée qui fait l'objet de notre étude.

Ce phénomène qui consiste en une seconde génération de cristaux de grande taille par recuit prolongé d'une tôle fortement déformée par laminage condirectionnel, a déjà été observée sur de nombreux métaux et alliages de différentes structures. (cuivre O.F.H.C., Aluminium, Fer doux, Ferro-silicium, Ferro-nickel, Zinc, etc.).

Fisher a signalé son apparition sur des barreaux d' uranium obtenus par filage. Il a étudié son apparition sur des métaux de différente pureté et ayant subi différents traitements thermiques antérieurement au filage.

Nous avons étudié l'apparition et le développement du phénomène dans l'uranium de haute pureté, écroui par laminage à froid.

Cette étude comprend quatre parties :

- A) Méthodes expérimentales
- B) Description du phénomène
- C) Facteurs de croissance des cristaux secondaires
- D) Orientations des cristaux secondaires.

A) METHODES EXPERIMENTALES.

1) Préparation des échantillons.

L'uranium brut de fonderie est laminé à 300°C jusqu'à une certaine épaisseur, l'écroutissage final, donné par laminage à froid, sera toujours exprimé en % par la formule :

$$\frac{e_{\text{initial}} - e_{\text{final}}}{e_{\text{final}}}$$

Le découpage des échantillons est réalisé à la cisaille après laminage à froid.

2) Traitements thermiques.

Tous les traitements thermiques ont été effectués en enrobant dans des feuilles de Tantale les échantillons préalablement polis électrolytiquement, et en les scellant dans des ampoules de pyrex sous pression réduite d'argon, purifié par un "getter".

Après recuit, les échantillons apparaissent encore polis mais présentant une attaque thermique prononcée (2).

3) Métallographie.

Les échantillons ne sont soumis en aucun cas à une abrasion mécanique, car l'uranium, en raison de sa structure orthorhombique, présente une très grande sensibilité à toute déformation mécanique.

L'élimination des couches superficielles se fait exclusivement par polissage électrolytique avec le bain acétochromique signalé par Pruna, Lehr et Chaudron (3).

Pour l'observation microscopique ou macroscopique de la grosseur de grain, on procède à un gravage dans le même bain, selon les conditions signalées par Robillard, Mademoiselle Durand et Lacombe (4). Cette méthode met en évidence plus clairement les faibles désorientations que l'observation en lumière polarisée.

4) Rayons X.

Les orientations des gros grains ont été déterminées par diagrammes de Laue en retour, effectués avec une anticathode de tungstène, sous 45 KW et 5 mA, et un colli-mateur de 0,4 mm.

B) DESCRIPTION DU PHENOMENE.

1) Après un recuit à haute température dans des conditions précisées plus loin, il apparait à la surface des tôles quelques gros grains de forme allongée dans une

direction parallèle à celle du laminage, d'une longueur moyenne de 3 à 4 mm, et de 1 à 2 mm de large, disséminés dans une structure à grains fins (fig 1). Cet aspect morphologique ressemble à celui de la croissance de cristaux secondaires, aux dépens d'une texture primaire à grains fins, observée pour d'autres métaux. Les contours des cristaux secondaires sont déchiquetés et se déplacent vers leur centre de courbure, en absorbant la texture primaire, conformément au critère proposé par Beck (5) pour distinguer cette croissance secondaire dite exagérée, ou "discontinue" de la croissance "continue" (fig. 2).

Dans la matrice à grains fins, on peut voir également allongées dans le sens de laminage des zones polycristallines à forte texture, qui devraient favoriser la croissance ultérieure des grains secondaires, à condition que ceux-ci aient une orientation très différente de celle de la texture (fig. 3). En aucun cas, et même après les plus longs recuits effectués (500 heures), on ne peut obtenir de gros grains envahissant toute la largeur de la tôle.

2) Les gros grains secondaires sont, du moins à l'échelle des diagrammes classiques de Laue (fig. 4), exempts d'une polygonisation, comme celle qui apparaît par contre dans les gros cristaux produits avec changement de phase $\beta \rightarrow \alpha$ (6). D'autre part, ils sont en général, exempts de macles.

C) FACTEURS DE CROISSANCE DES CRISTAUX SECONDAIRES.

1) Influence de la pureté.

C'est l'uranium de haute pureté préparé par électrolyse ignée (7) et refusion sous vide élevé (8)* qui manifeste la plus grande aptitude à la croissance secondaire.

Pour démontrer l'effet de la pureté, nous avons effectué un recuit de 48 heures à 650°C avec mise brutale en chauffe sur quatre uraniums de puretés différentes.

Le premier présente l'analyse suivante (p.p.m) :

C	N	Al	Cu	Mg	Fe	Si
34	<10	7	2	1	4	10

Deux autres ont un pourcentage d'impuretés voisin de celui-ci, mais avec une teneur en O et en N plus élevée (appréciée qualitativement par l'examen microscopique).

Le quatrième est un uranium de pureté nucléaire courante élaboré par le Commissariat à l'Energie Atomique dont l'analyse est la suivante :

B	Cr	Cu	Fe	Mn	Ni	Si	H ₂
0,1	4	22	25	4	6	80	1

La grosseur de grain et le nombre de gros grains

* Nous tenons à remercier Monsieur Chiswich, d'Argonne National Laboratory à qui nous devons l'uranium de haute pureté.

diminuent au fur et à mesure que la pureté décroît (fig. 5-6-7-8) et au delà d'un certain degré de pureté le phénomène n'apparaît plus, même après de très longs recuits (du moins pour la durée maximum de 500 heures de nos essais).

Nous avons donc effectué par la suite, toutes nos expériences de recristallisation secondaire avec l'uranium le plus pur, correspondant à l'analyse ci - dessus.

2) Influence de l'épaisseur.

Pour observer la recristallisation secondaire, il ne faut pas descendre par laminage l'épaisseur des éprouvettes en dessous d'une certaine valeur. Dans le cas de l'uranium elle est de 0,5 mm. Cet effet de l'épaisseur a déjà été signalé pour d'autres métaux comme les ferro-silicium, par Dunn (9) et le fer doux par Coulomb (10). On l'attribue à l'importance croissante prise par les défauts de surface par rapport à l'épaisseur totale de l'échantillon, qui empêchent la migration des joints par un simple effet géométrique. Dans le cas de l'uranium, il apparaît en effet, au cours du recuit, des fossés d'attaque thermique, à l'aplomb des contours de grains primaires, qui bloquent ainsi leur migration ultérieure (2).

3) Influence de l'écroutissage.

Nous avons étudié l'apparition de la croissance exagérée après un recuit de 48 heures à 650°C sur des échantillons laminés de 80%, 100%, 400% et 1000%. L'écroutissage de

80 % se révèle insuffisant pour développer des cristaux secondaires, du moins dans les conditions de recuit utilisées. La grosseur de grain et le nombre de gros cristaux croissent du simple au triple pour une variation d'écrouissage de 400 à 1000 % (fig. 9 - 10).

4) Influence des conditions de traitements thermiques

a) D'une manière générale une température de recuit élevée (en α), un traitement prolongé, une mise en chauffe brutale, sont plus favorables au développement de la recristallisation secondaire.

Celle-ci apparaît pour des températures comprises entre 600°C et la température maximum correspondant à la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ (662°C).

Nous avons effectué nos recuits essentiellement à 650°C maximum, pour nous ménager une marge de sécurité.

La période d'incubation est très faible, de l'ordre d'une dizaine d'heures, dans le cas d'une montée rapide en température (100°C/ minute) et de l'ordre de 50 heures pour une montée lente (100°C/ heure).

De plus, une montée lente en température réduit considérablement la vitesse de croissance des grains secondaires. Il faut 300 heures de recuit à 650°C après une montée lente en température pour obtenir une grosseur de grain comparable à celle obtenue après 48 heures, après une montée rapide en température. Ces observations sont à rapprocher de celles de Rathenan et Custers (11) sur la recristallisation des ferro-nickel qui ont bien montré aussi l'influence de la vitesse de mise en température sur la croissance exagérée.

Par contre, un échantillon porté lentement en température, recuit 48 heures à 650°C, refroidi, puis porté brutalement à la même température conduit au même résultat que s'il avait été directement recuit après une montée rapide en température (fig. 11).

Ceci peut s'expliquer par le fait qu'au cours du refroidissement l'anisotropie des coefficients de dilatation provoque un écrouissage des cristaux qui accélère la croissance ultérieure des cristaux secondaires.

La recristallisation secondaire semble stoppée quand on atteint une certaine grosseur de grains. Ainsi, après une montée rapide en température, un recuit de 300 heures ne modifie plus la grosseur de grain obtenue après 48 heures de recuit.

Le fait que les grains secondaires n'envahissent pas toute la surface de la tôle peut être expliqué par la coexistence dans la texture de recristallisation primaire de plusieurs composantes d'orientation différente. Celles-ci sont absorbées plus ou moins facilement par les cristaux secondaires suivant les relations d'orientation entre cristaux primaires et secondaires.

D) ORIENTATIONS DES CRISTAUX SECONDAIRES.

Plusieurs auteurs ont étudié les textures de laminage et de recristallisation primaire dans l'uranium. Nous donnerons un bref aperçu des résultats obtenus par ces auteurs dans le cas d'écrouissage comparable à celui de nos essais,

pour les relier si possible aux textures de recristallisation secondaire que nous avons observées.

1) Texture de laminage.

Mueller, Kuott et Beck (12) ont décrit la texture de l'uranium laminé de 87 % à 300°C en la rapportant à quatre "orientations idéales", rassemblées dans le tableau I. Seymour (13) trouve pour l'uranium laminé à froid de 90 % une texture double, dont chaque composante coïncide sensiblement avec deux des composantes décrites par Mueller, Kuott et Beck. Mitchell et Rowland (14) ont trouvé pour un laminage à froid de 60 % une texture simple voisine de la composante n° 2 de Mueller, Kuott et Beck.

2) Texture de recristallisation primaire.

Mueller, Kuott et Beck (12) ont établi quatre "orientations idéales" comme composantes de la texture présentée par l'uranium laminé à 300°C et recristallisé à 525°C.

Mitchell et Rowland (14) trouvent la même texture de laminage après recristallisation.

3) Texture de recristallisation secondaire.

Nous avons déterminé par diagramme de Laue en retour l'orientation de 40 gros cristaux secondaires pris dans diverses tôles ayant subi des écrouissages variant de 400 à 1000 %. Etant donné le nombre relativement faible de cristaux observables pour chaque écrouissage, il n'a pas été possible de déterminer si l'augmentation du taux d'écrouissage diminuait la dispersion des textures. D'autre part, la méthode de rayons X utilisée ne permettant l'examen que des cristaux ayant atteint au moins 1 mm de large, les résul-

tats obtenus pour la texture de recristallisation secondaire n'ont qu'une valeur moyenne et limitée à un certain nombre de cristaux. Les figures 12- 13- 14- 15 montrent les figures de pôle (010), (100), (001) et (110) obtenues.

Malgré les restrictions signalées ci-dessus, la figure de pôle (010) montre clairement que l'axe [010] de tous les cristaux secondaires est aligné parallèlement à la direction de laminage. Par contre, il y a une concentration des pôles (100) à 20° - 30° du plan de la tôle dans la direction de laminage et une autre à 40° - 50° du plan de la tôle dans la direction transverse.

L'interprétation de ces figures de pôle conduit à déterminer deux "orientations moyennes" définissant la texture de recristallisation secondaire (fig. 16). Celles-ci sont représentables par les indices :

(203)	[010]	(010)	n° 1 *
(110)	[110]	(140)	n° 2

Les symboles \odot , \triangle , \square , \circ placés sur les figures de pôle signalent les points choisis pour

* Rappelons que selon l'habitude prise par différents auteurs, chaque composante d'une texture consiste en réalité en une paire, orientée symétriquement par rapport à la direction de laminage (ou par rapport à la direction transverse).

déterminer ces "orientations moyennes".

Comme le montre le tableau n° I, la texture n° 1 a sensiblement la même direction que la composante principale de laminage et que la composante mineure de recristallisation primaire. La texture n° 2 a la direction voisine d'une composante mineure de recristallisation primaire.

Le fait que les textures de recristallisation secondaire aient les mêmes directions que certaines composantes de la recristallisation primaire expliquerait que la recristallisation secondaire soit stoppée après un certain développement. En effet, les gros grains secondaires buteraient contre des grains primaires d'une orientation voisine de la leur, donc d'orientation défavorable pour être absorbés.

IIIème PARTIEECROUISSAGE CRITIQUE DE L'URANIUM

La recristallisation secondaire conduisant à des grains de grosseur relativement faible, nous avons pensé que la croissance exagérée pourrait être facilitée par un faible écrouissage appliqué après la recristallisation primaire, comme l'avait fait Fisher (15) sur des barreaux filés.

La gamme de traitements mécaniques et thermiques utilisée dans cette deuxième partie est la suivante :

- a) Ecrouissage élevé par laminage à froid
- b) Recuit en α dans des conditions ne permettant que le développement de la texture de recristallisation primaire.
- c) Ecrouissage faible par traction (de 2 à 7 %) à la température ambiante.
- d) Recuit à haute température en α .

L'étude de la grosseur du grain en fonction du taux d'écrouissage appliqué aux grains primaires et celle des textures de recristallisation a montré qu'il s'agissait là d'un grossissement provoqué par écrouissage critique et non pas d'une accélération de la croissance exagérée.

Notre étude comporte trois parties :

- A) Historique et méthodes expérimentales
- B) Description du phénomène et conditions d'apparition
- C) Orientations des cristaux obtenus.

A) HISTORIQUE ET METHODES EXPERIMENTALES.

L'intérêt que présentent les monocristaux parfaits d'uranium a poussé différents auteurs à appliquer la méthode d'écroissance critique à ce métal.

Cahn (16) a fait une étude systématique sur un uranium, dont la pureté n'est pas spécifiée, filé à froid, recristallisé à 630°C, déformé par traction et recuit. Les meilleurs résultats ont été obtenus par une montée lente en température (environ 1 - 2 jours pour passer de 550°C à 630°C) et maintien de 24 heures à 630°C. Les plus gros grains obtenus par cette méthode atteignaient 2 à 3 mm de diamètre et étaient entourés d'une matrice de grains fins d'environ 1 mm de diamètre. La valeur de l'écroissance critique était de 1 %.

Fisher (15) et Holden (17) ont trouvé la même valeur d'environ 1 % pour différentes qualités d'uranium. Ils ont obtenu des gros grains dont la croissance a été interprétée par ces auteurs comme due à une accélération de la croissance exagérée.

Tous ces auteurs ont utilisé une montée lente en température pour le recuit après déformation, et ils n'ont pas étudié l'influence de la grosseur du grain primaire.

Nous avons repris systématiquement l'étude de l'évolution par écrouissage et recuit d'échantillons d'uranium en étudiant les différents facteurs : grosseur de grain initiale, écrouissage, durée du recuit, etc. Nous avons utilisé un uranium de pureté telle qu'après laminage à froid de 150 % il n'y ait pas possibilité de croissance de cristaux secondaires au cours des traitements thermiques relativement courts suivant le laminage (par exemple, 10 heures à 630°C). L'uranium choisi correspond au lot n° 2 décrit dans la première partie. Les échantillons sous la forme d'éprouvettes plates, ont été tractionnés soit avec une micromachine Chevenard, soit avec une machine Testwell.

B) DESCRIPTION DU PHENOMENE ET CONDITIONS D'APPARITION.

Le recuit après faible écrouissage par traction de la texture de recristallisation primaire donne naissance à des grains qui peuvent envahir complètement la tôle et venir en contact les uns avec les autres. Il ne subsiste donc plus, contrairement à la croissance secondaire, des régions à grains fins représentant les restes de la texture de recristallisation primaire (fig. 17), du moins si l'écrouissage par traction est convenable et la durée de recuit assez longue.

Les facteurs déterminant l'apparition de ces gros grains sont les suivants :

1) Taux de déformation par traction.

Pour une grosseur de grain primaire donnée, la taille du grain final passe par un maximum en fonction de la valeur de l'écroutissage. Nous prendrons comme exemple une grosseur de grain de départ, obtenue par recuit de 5 heures à 630° (fig. 18). Les échantillons sont soumis aux écroutissages mentionnés ci-dessous et recuits 48 heures à 650° après une mise brutale en température.

Après 2 % d'allongement, on observe une restauration partielle (fig. 19), en ce sens que la grosseur du grain n'a pas varié, et la majeure partie des macles créées par la déformation subsiste.

Après 4,5 % d'allongement, on observe quelques gros grains dans la matrice polycristalline restaurée (fig. 20).

Après 5 - 5,5 % d'allongement, des gros grains envahissent toute la tôle et peuvent atteindre 7 mm de long (fig. 20). La matrice peut, ou bien disparaître complètement (fig. 21), ou bien subsister sous la forme de quelques petits grains insulaires ou disposés aux limites des grains (fig. 22).

Des écroutissages croissants font diminuer progressivement la grosseur du grain (fig. 20).

Si l'on porte la grosseur du grain obtenue en fonction du taux d'écroutissage, on obtient la courbe classique de la recristallisation après écroutissage critique. (fig. 23).






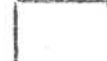



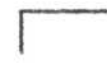
2) Etat structural précédant la déformation.

L'écroutissage critique croît avec la grosseur du grain primaire.

L'uranium laminé à froid de 150 % a été soumis à des

recuits de durées différentes à diverses températures, afin d'obtenir une gamme de grosseur de grain croissante avant la traction.

Le tableau ci-dessous donne la valeur de l'écroutissage critique déterminé dans chaque cas, en fonction de la grosseur du grain primaire.

Recuit primaire	Gross. de grain	Ecroutissage	Recuit final	Observations
470°C 	10 μ	1,5 %	48 h. 650°C 	Très gros grain
		5 %		Grain fin
5 h. 550°C 	16 μ	2 %	48 h. 650°C 	Très gros grain
		5 %		Grain fin
5 h. 640°C 	25 μ	2 %	48 h. 650°C 	Restauration
		4,5 %		Quelques gros grains
		5-5,5 %		Très gros grain
		6 %		La taille des gros grains diminue
10 h. 640°C 	35 μ	2 %	48 h. 650°C 	Restauration
		5,5-6 %		Très gros grain
		7 %		La taille des gros grains diminue
48 h. 640°C 	mixte	2 %	48 h. 650°C 	Restauration
		6 %		Gros grain

C'est-à-dire que l'écroûissage critique augmente avec la grosseur du grain. On peut signaler à la limite que pour les monocristaux de changement de phase, Calais, Lacombe et Madame Simenel (18) ont trouvé des taux d'écroûissage critique qui peuvent atteindre 12 % pour certaines orientations.

3) Vitesse de mise en chauffe et durée de recuit.

Nous avons essayé trois vitesses de mise en chauffe.

- a) Montée rapide en température (100°C/heure)
- b) Montée lente en température (100°C/minute)
- c) Recuit dans un gradient de température.

C'est la première solution qui donne les plus gros grains.

Si l'écroûissage critique est atteint, une recristallisation complète peut être obtenue en 48 heures. Mais si par suite d'hétérogénéités dans la déformation on observe après recuit de 48 heures les gros grains de recristallisation dans une matrice restaurée à grain fin la croissance des gros grains aux dépens des petits grains se produit plus lentement au cours du recuit prolongé comme le montrent les figures 24 - 25.

Ce ralentissement de la croissance des gros grains peut être dû au grossissement simultané des grains primaires.

4) Hétérogénéité de la déformation.

La déformation des échantillons d'uranium polycristallins est très hétérogène (19), surtout si l'on emploie des éprouvettes rectangulaires sans congé. Pour ces éprouvettes la rupture se produit avant l'allongement correspondant à l'écroûissage critique, le recuit amène alors à une

recristallisation partielle dans les zones les plus déformées.

L'utilisation des échantillons avec congé permet des écrouissages plus homogènes et donnent de meilleurs résultats, bien que pour le métal utilisé possédant une texture primaire prononcée, la consolidation ne soit pas terminée quand on atteint la rupture.

Quand la structure de départ ne présente pas une taille de grain uniforme (cas de la présence de quelques gros grains secondaires), il est impossible de définir un écrouissage critique, car les grains fins et les gros grains nécessitent des taux très différents. Et pour un écrouissage donné, on aura dépassé la déformation critique de la structure fine tandis que les gros grains subiront une déformation inférieure à l'écrouissage critique (fig. 26 - 27 - 28).

C) ORIENTATION DES GROS GRAINS DEVELOPPES PAR ECROUISSAGE CRITIQUE.

1) Nous avons déterminé l'orientation de 150 gros cristaux obtenus par écrouissage critique. Les figures 29 - 30 - 31 - 32 montrent les figures de pôle (010) , (100) , (001) et (110) obtenues.

On voit que l'axe [010] des cristaux développés par écrouissage critique joue encore un rôle essentiel dans la recristallisation. Cet axe est encore orienté parallèlement

à la direction de laminage. D'autre part ceci est vrai aussi quand la traction de la texture primaire a été réalisée soit parallèlement à la direction de laminage, soit normalement à celle-ci, fig. 33 - 34.

Les pôles (001) et (100) occupent toutes les positions possibles, compte tenu de la direction sensiblement fixe de l'axe [010]. Alors que dans la recristallisation secondaire leurs positions étaient nettement plus localisées.

La représentation des plans dans le gradient stéréographique (100) (001) (010), figures 35 - 36 montre plus clairement la différence entre les textures de recristallisation primaire et d'écroutissage critique. D'autre part, pour une tôle écroutie au delà de la valeur de l'écroutissage critique, qui présente une grosseur de grain moyenne de 1 mm, nous avons trouvé que les orientations des cristaux étaient beaucoup plus dispersées, comme le montre la figure 37.

2) Nous avons étudié les relations cristallographiques entre les cristaux voisins de recristallisation par écroutissage critique, et nous avons trouvé qu'il existe des relations de **macle** approchées entre cristaux directement contigus.

Il est intéressant de préciser la méthode que nous avons utilisée pour déterminer ces relations d'orientation.

Supposons que nous ayons dans l'espace deux cristaux de symétrie orthorhombique ayant une orientation relative quelconque. J. Friedel a rappelé (20) que l'on peut trouver pour ces deux cristaux 4 axes cristallographiques de mêmes indices, qui sont parallèles 2 à 2 dans les 2 cristaux. En conséquence, on peut superposer ces deux cristaux en faisant subir à l'un deux une rotation autour d'un des 4 axes communs.

La méthode graphique pour déterminer les quatre ^{axes} communs consiste à chercher, sur la projection stéréographique les pôles des plans bissecteurs (externe et interne) des trois plans principaux (100) (010) (001) homologues. Ces six pôles sont alignés trois par trois et les quatre grands cercles que l'on peut faire passer par ces alignements déterminent les quatre plans communs aux deux cristaux ; les pôles de ces quatre plans fixent les axes de rotation communs. On peut alors déterminer la valeur de l'angle de rotation autour de chaque axe, nécessaire pour superposer les deux cristaux. En général, si l'orientation relative est quelconque, ces 4 angles de rotation sont quelconques et différents. Au contraire, Friedel a montré qu'il y a macle entre les deux cristaux primitifs quand :

- 1) L'angle de rotation autour d'un (ou de plusieurs) de ces quatre axes communs (ceux-ci étant d'indices rationnels) est égal à $\frac{2\pi}{n}$ ($n = 2, 3, 4, 6$),
- 2) quand il y a symétrie par rapport à un centre de symétrie

Toutes les combinaisons permises par la symétrie orthorhombique montrent qu'il existe 13 sortes de macles possibles dans ce système cristallin.

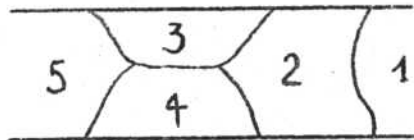
Mais un deuxième cas peut être possible : c'est celui des macles approchées, quand :

1) l'angle de rotation est égal exactement à $\frac{2\pi}{n}$, mais l'axe de rotation ou le plan de symétrie sont irrationnels, c'est à dire voisins d'un axe (ou d'un plan) d'indices simples.

2) l'angle de rotation est voisin de la valeur $\frac{2\pi}{n}$ (par exemple à 5° près), mais l'axe (ou le plan perpendiculaire) ont des indices simples rationnels.

Par exemple, la figure 38 montre la construction faite pour déterminer les relations d'orientation entre les cristaux 2 et 4 que nous étudierons ci-dessous, A et A' représentent les pôles des plans bissecteurs des plans (100) ; B et B' ceux des plans (010) et C et C' ceux des plans (001). En pointillé sont les grands cercles qui déterminent les quatre plans communs et $P_1 P_2 P_3 P_4$ sont les pôles de ces quatre plans, c'est à dire les quatre axes communs.

Nous avons étudié par exemple les relations entre 5 gros cristaux qui se présentaient dans le plan indiqué sur le croquis, et les résultats obtenus sont les suivants :



Entre les cristaux 1 - 2 : macle approchée ; rotation de 174° autour de l'axe [515]
 Entre les cristaux 2 - 3 : aucune relation ;

- Entre les cristaux 2-4 : macle approchée ; rotation de 177°
autour de l'axe $[101]$
- Entre les cristaux 3-4 : macle rigoureuse ; rotation de 90°
autour de l'axe $[3\bar{6}1]$
- Entre les cristaux 4-5 : macle approchée ; rotation de 124°
autour de l'axe $[712]$
- Entre les cristaux 3-5 : macle approchée ; symétrie par rapport au plan $[634]$

Ces relations de macle approchée entre cristaux contigus de recristallisation après écrouissage critique ont été observées également par Monflard (21) sur le fer et par Lehr (5) dans le cas de la croissance de gros cristaux par changement de phase $\delta \rightarrow \alpha$.

Ceci est en accord avec le fait bien connu depuis les expériences de Burgers (22) d'une part, et de Lacombe et Berghezan (23) d'autre part que des cristaux contigus, d'orientation voisine ou en relation de macle approchée ou rigoureuse ne peuvent s'absorber. Ces états correspondent en effet à une énergie interfaciale minimum à leur limite de grains.

En conclusion, nous pensons qu'il ne faut pas attribuer à ces relations d'orientation de macle approchée une signification concernant une corrélation entre la croissance de 2 cristaux voisins ; on ne peut pas par exemple, concevoir que le cristal (1) a donné naissance au cristal (2) en raison d'un accident dans sa croissance comme c'est le cas des macles fines de recuit observées dans le cuivre ou les aciers inoxydables, etc. Nous pensons plutôt que les 2

cristaux (1) et (2) se sont développés simultanément mais indépendamment l'un de l'autre à partir de deux germes distincts. Au bout d'un certain temps de croissance, ces 2 cristaux arrivent en contact, s'affrontent dans leur croissance, c'est à dire que leur limite se stabilise en raison même de leur relation approchée de macle.

DISCUSSION DES RESULTATS.

Il est intéressant de comparer la croissance des gros grains après écrouissage élevé (croissance secondaire) et celle obtenue par écrouissage faible d'une texture de recristallisation primaire à grains fins.

En première analyse, on pourrait penser qu'il n'y a pas de différence fondamentale entre les deux processus de croissance. Un écrouissage faible par traction appliquée à une texture de recristallisation primaire à grains fins pourrait avoir pour effet d'accélérer la croissance ultérieure des cristaux secondaires par l'apport d'un supplément d'énergie. Autrement dit, l'écrouissage par traction modifierait simplement la cinétique de croissance des cristaux secondaires.

Certains des résultats précédents nous conduisent plutôt à adopter l'idée que la croissance après faible traction est comparable à celle observée dans la méthode d'é-

crouissage critique qui entraîne une recristallisation par germination. Les arguments à l'appui de cette idée sont les suivants :

1) Conformément à la courbe classique : grosseur de grain en fonction de l'écroutissage, au delà de l'écroutissage donnant les plus gros grains, la grosseur de grain diminue avec l'écroutissage croissant.

2) Bien que les cristaux développés après traction possèdent une texture, celle-ci est plus étalée que pour les cristaux secondaires. Pour une tôle écrouie au delà de la valeur de l'écroutissage critique, les orientations des cristaux obtenus sont encore plus dispersées. Ceci appuie l'hypothèse d'un mécanisme de germination. Plus l'écroutissage subi par une texture primaire polycristalline est élevé, plus les chances de former de nombreux germes d'orientation différente est grande. Dans la recristallisation secondaire, on admet au contraire que l'apparition des gros grains correspond au grossissement de certains cristaux existant dans la texture de recristallisation primaire. Ce sont en général les cristaux appartenent à une composante mineure de telle sorte qu'en général l'orientation des cristaux secondaires est plus proche de la texture de déformation que de la texture principale de recristallisation primaire.

3) Il resterait cependant pour que les arguments précédents soient décisifs , à vérifier que le développement d'une texture primaire prononcée n'est pas indispensable pour provoquer la croissance des gros grains, par appli-

cation d'un faible écrouissage par traction. Autrement dit, il serait important de comparer les résultats précédents à ceux obtenus par un métal fortement déformé avant recuit primaire par une méthode autre que le laminage unidirectionnel. Comme dans les expériences de Bowles et Bras (24), il faudrait déformer soit par compression soit par laminage croisé à des taux comparables à celui du laminage normal.

CONCLUSIONS.

Nous avons comparé sur de l'uranium de haute pureté la croissance des gros grains par recristallisation secondaire et par écrouissage critique. Les résultats les plus importants sont les suivants :

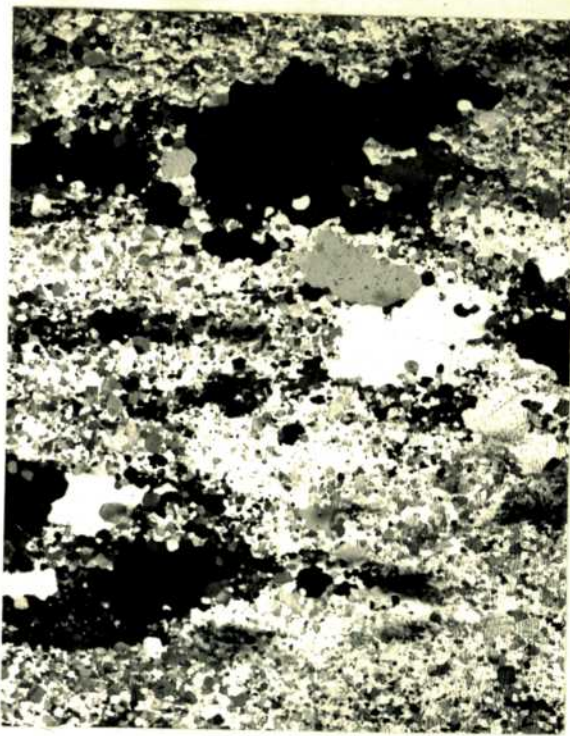
- 1) Seul l'uranium de haute pureté donne naissance à de gros cristaux par les deux méthodes précédentes. Ces deux méthodes de croissance fournissent donc un critère qualificatif très sûr pour apprécier la pureté de l'uranium. L'uranium de pureté nucléaire courante ne donne pas lieu à des phénomènes de croissance exagérée.
- 2) La recristallisation secondaire donne naissance à des cristaux de plus petite dimension que la méthode d'écrouissage critique. Dans le premier cas, il subsiste toujours des cristaux de faibles dimensions représentant les restes de la texture primaire. Dans le second cas, pour certaines valeurs de l'écrouissage, il y a disparition complète des cristaux primaires.
- 3) Les textures de recristallisation secondaire sont beaucoup plus prononcées que celles obtenues ~~[pour les valeurs]~~ pour les valeurs voisines de l'écrouissage critique. Cependant, dans les deux cas, il est remarquable que l'axe b de

tous les cristaux joue un rôle essentiel dans la croissance puisqu'il est toujours sensiblement orienté parallèlement à la direction de laminage. Ceci n'est plus vrai par contre quand l'écroûissage par traction est supérieur à celui de l'écroûissage critique, cas dans lequel on observe une dispersion des orientations obtenues. Ces faits permettent de conclure à une différence du mécanisme de formation des cristaux secondaires et de ceux d'écroûissage critique, les premiers correspondent à la croissance de certains cristaux privilégiés existant dans la texture de recristallisation primaire, les seconds se développant par le mécanisme de germination et de croissance.

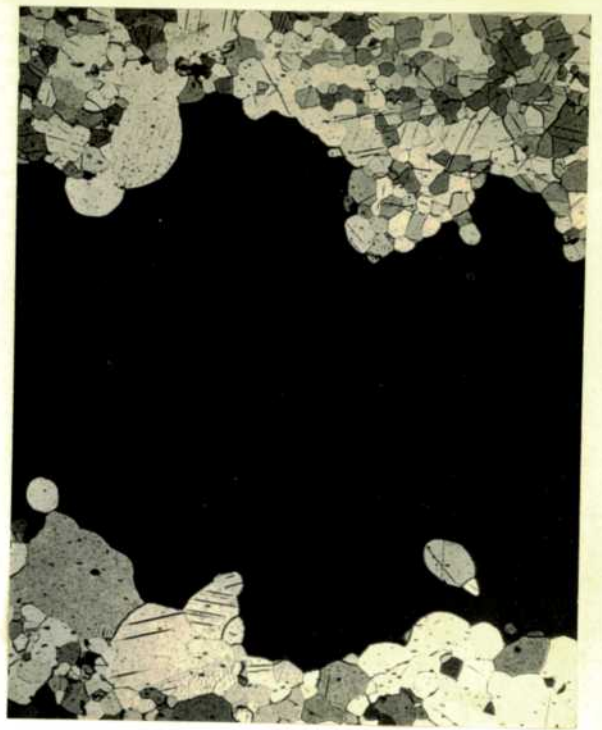
BIBLIOGRAPHIE

- (1) E.S. FISHER. Preparation of Alpha Uranium single crystals. Part. III. Grain coarsening method. USAEC. Rapport ANL. 50-21 (1954) Argonne National Laboratory.
- (2) Mme SIMENEL & D. CALAIS. à paraître.
- (3) M. PRUNA, P. LEHR & G. CHAUDRON. Rev. Met. 51, (1954) 591
- (4) A. ROBILLARD, Melle J. DURAND & P. LACOMBE. C R Acad. Sc. 242 (1956), 508
- (5) P.A. BECK. The Physics of Powder Metallurgy. Mc Graw Hill (1951) p. 40
- (6) P. LEHR. Thèse, Paris ; 1957
- (7) G. MEISTER & W.C. LILLENDAHL. Journal of Metals ; nov (1957) 1445
- (8) B. BLUMENTHAL. Trans AIME 203, (1955) 1119
- (9) J.L. WALTER & C.G. DUNN. Trans AIME 215 (1956) 465
- (10) P. COULOMB. C R Acad Sc. 248 (1959) 662
- (11) G.W. RATHENAU & J.F.H. CUSTERS. Philips Research Lab. Rapport n° 4 (1949) 241
- (12) M.H. MULLER, H.W. KUOTE & P.A. BECK. Trans AIME 203 (1955) 1214
- (13) W. SEYMOUR. Trans AIME 200 (1954) 999
- (14) C.M. MITCHELL & G.F. ROWLAND. Acta Met. 2 (1954) 559
- (15) E.S. FISHER. Preparation of Alpha Uranium single crystals. Part. II. Strain Anneal Method. USAEC. Rapport ANL 51 60 (1954) Argonne National Laboratory.

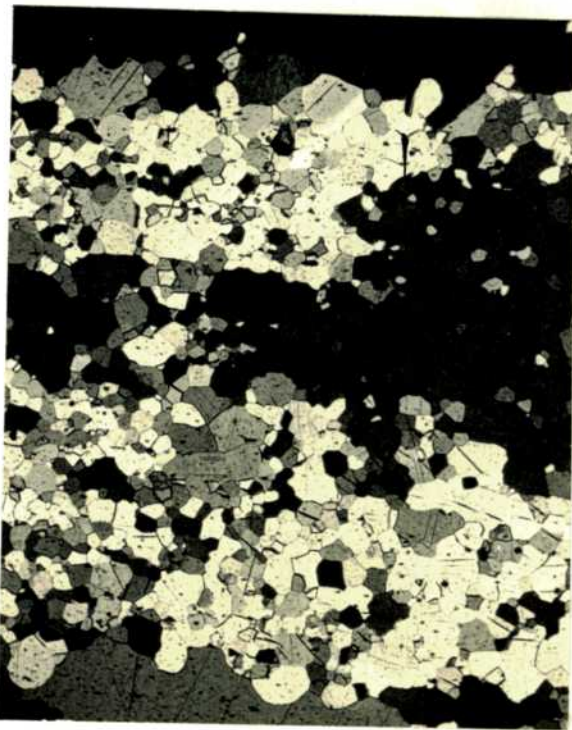
- (16) R.W. CAHN. The preparation of Uranium crystals. Rap. AERE ER/744 (1951) Energy Research Establishment Harwell.
- (17) A.N. HOLDEN . Knolls Atomic Power Laboratory 1951. Travail non publié cité dans "Physical Metallurgy of Uranium. Edit Addison - Werley Publishing Co - 1958.
- (18) D. CALAIS, Mme SIENNEL & P. LACOMBE. Journal des Matériaux nucléaires, à paraître.
- (19) J. BERNARD & G. COURBAU. Rapport CEA n° 193
- (20) FRIEDEL. Société Française de Minéralogie 43 (1920) 246
- (21) R. ROUFLARD. Thèse, Paris 1952
- (22) W.G. BURGERS & W. LAY. Rec Trav Chim Pays Bas 64 (1945) 5
- (23) P. LACOMBE & A. BERGHEZAN. C R Acad Sc 228 (1949) 93
- (24) G.S. BOWLES & W. BOAS. J. Inst. of Metals 74 (1948) 501



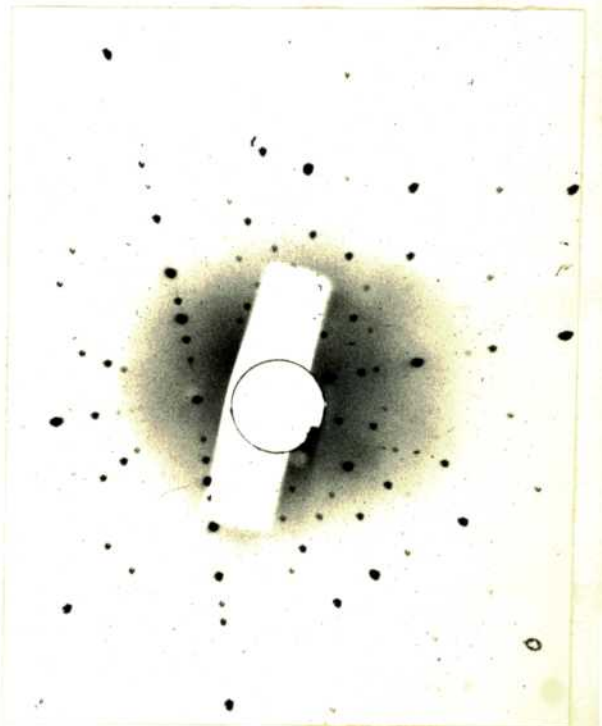
N° 1 - x 20. Macrographie d'une plaque avec cristaux de recristallisation secondaire.



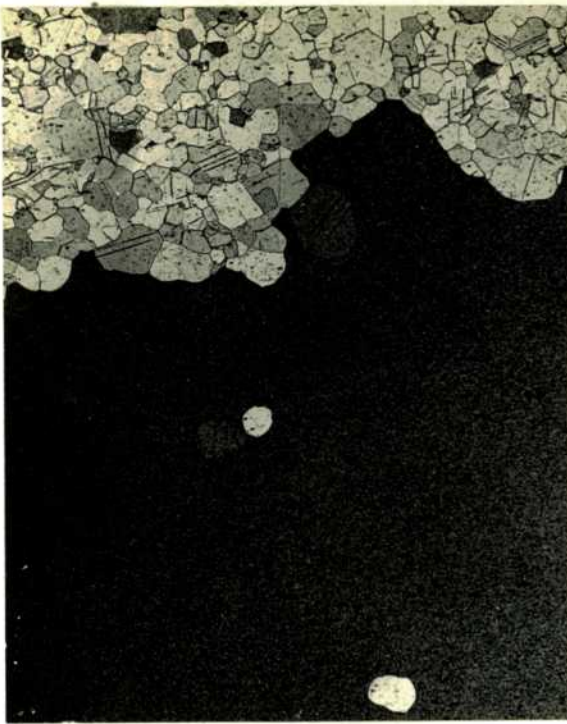
N° 2 - x 75. Croissance d'un cristal de recristallisation secondaire dans une matrice à grains fins.



N° 3 - x 75. Zone de grains fins en texture dans la matrice polycristalline.



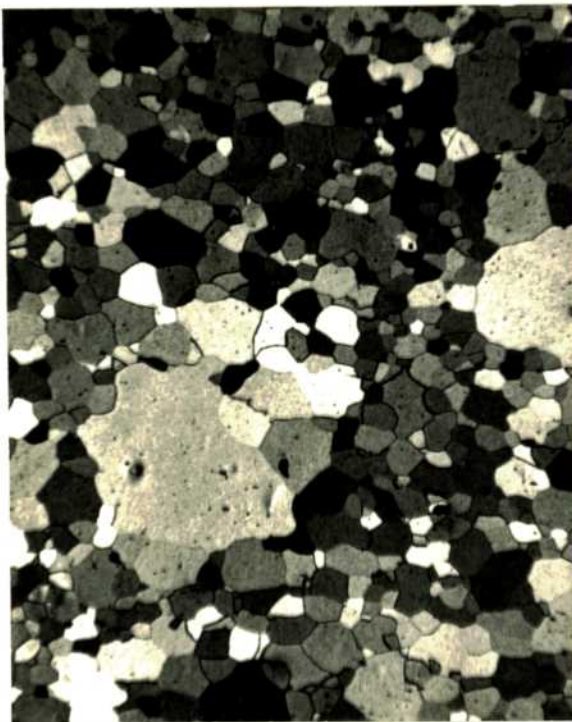
N° 4 - Diagramme de Laue en retour sur un cristal de recristallisation secondaire.



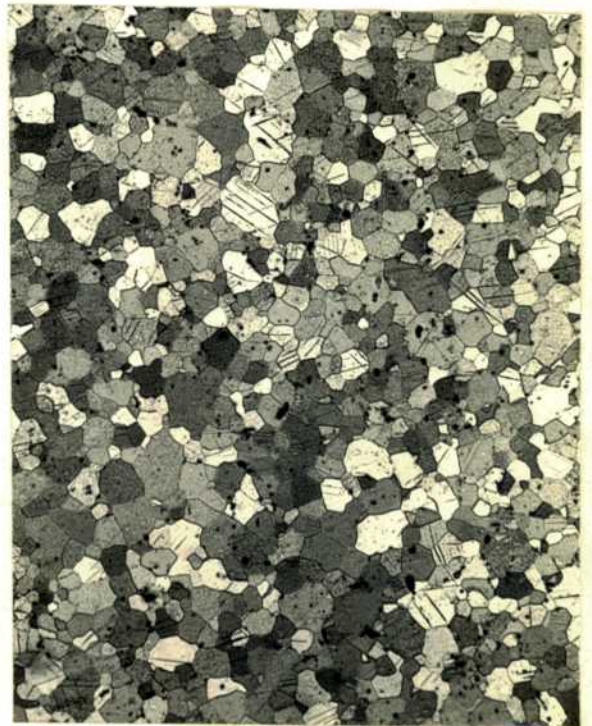
N° 5 - x 75



N° 6 - x 75



N° 7 - x 75

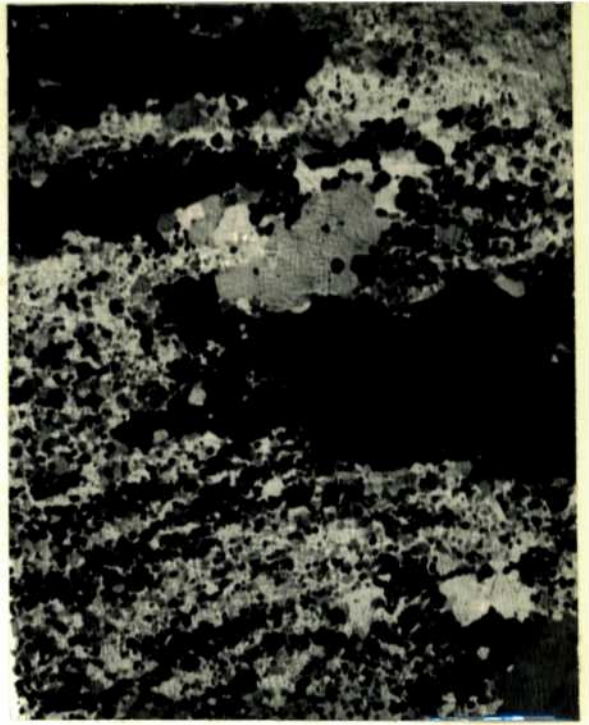
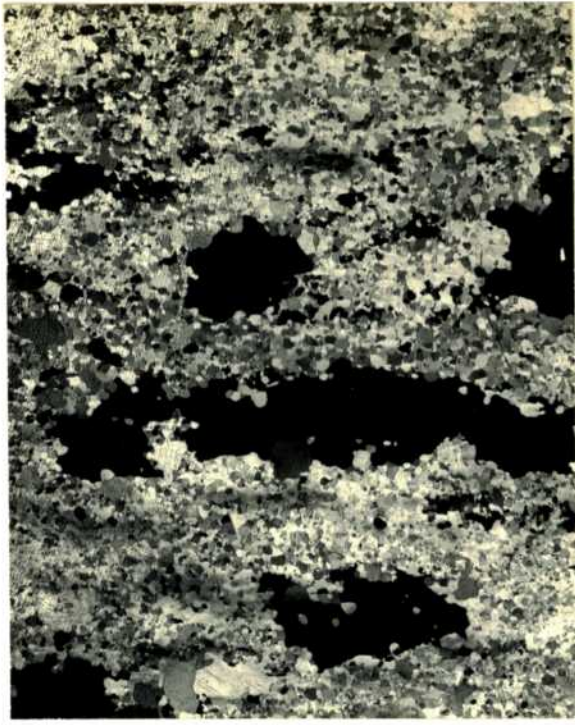


N° 8 - x 75

Importance comparée de la recristallisation secondaire dans le cas d'uraniums de diverses puretés :

N° 5 - Uranium de haute pureté

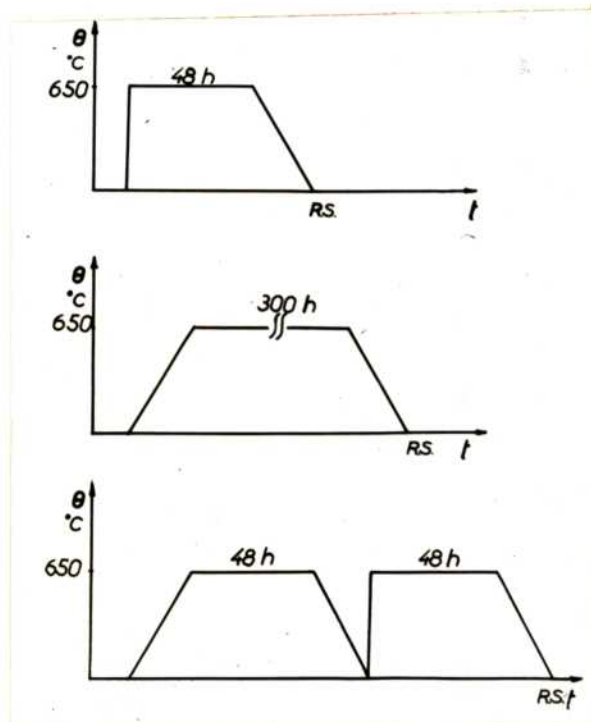
N° 8 - Uranium de pureté nucléaire courante



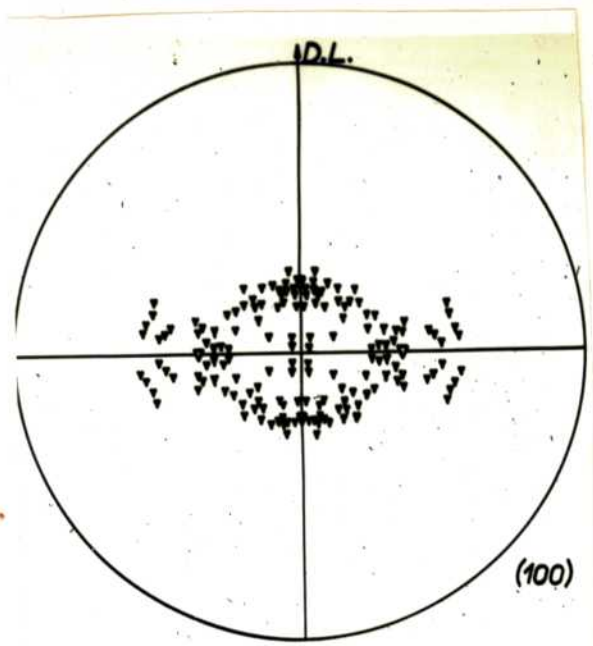
N° 9 - x 20

N° 10 - x 20

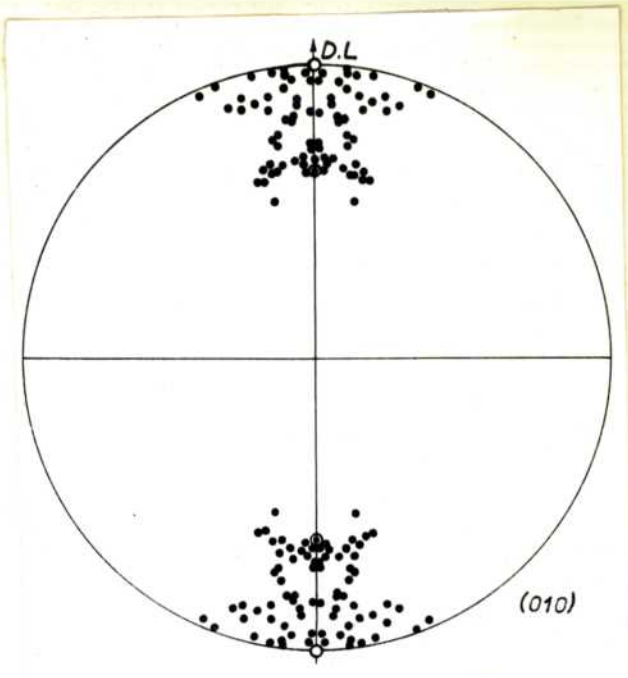
Influence du taux d'écroutissage sur la taille des cristaux secondaires :
 Fig. 9 : écroutissage de 400 μ
 Fig. 10 : écroutissage de 1000 μ



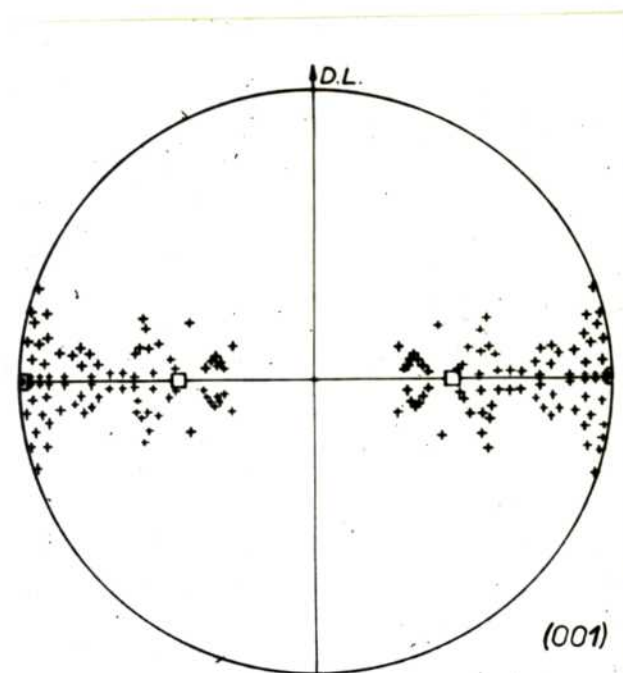
N° 11 - Schémas illustrant les divers types de traitements thermiques conduisant à des cristaux secondaires de taille comparable.



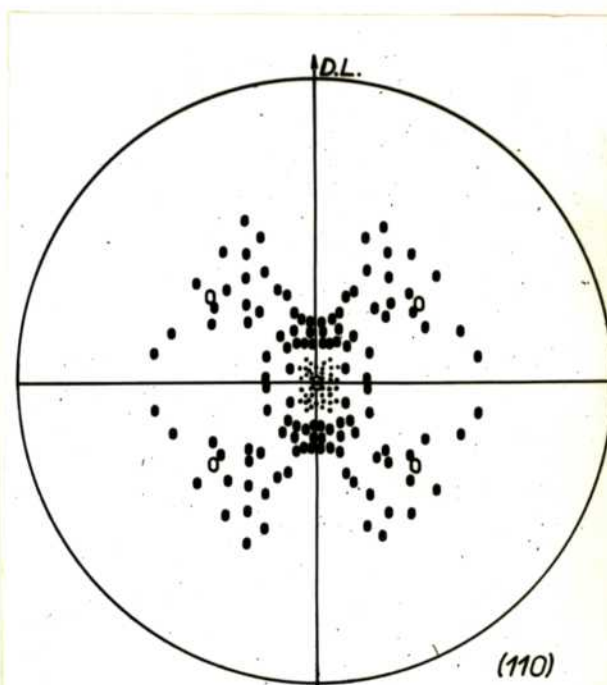
N° 12 -



N° 13 -

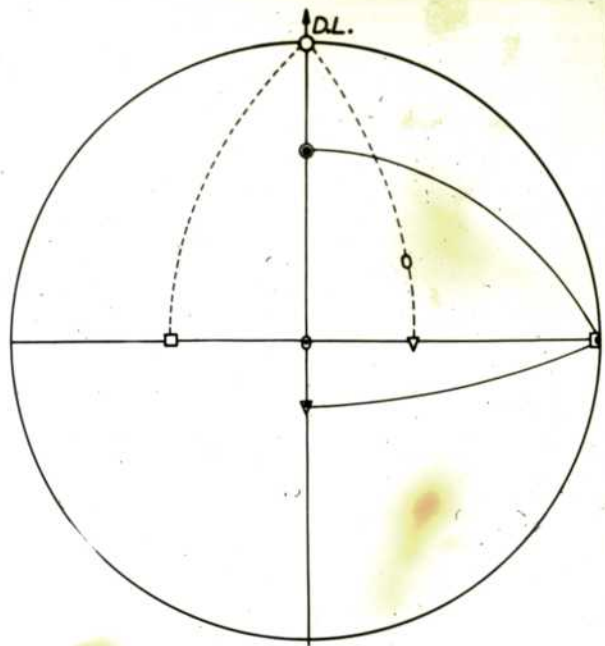


N° 14 -



N° 15 -

Figures de poles (100) - (010) - (001) - (110) obtenues d'après 40 cristaux de recristallisation secondaire.



N° 16 - Orientations moyennes déduites des figures de pôles précédentes :

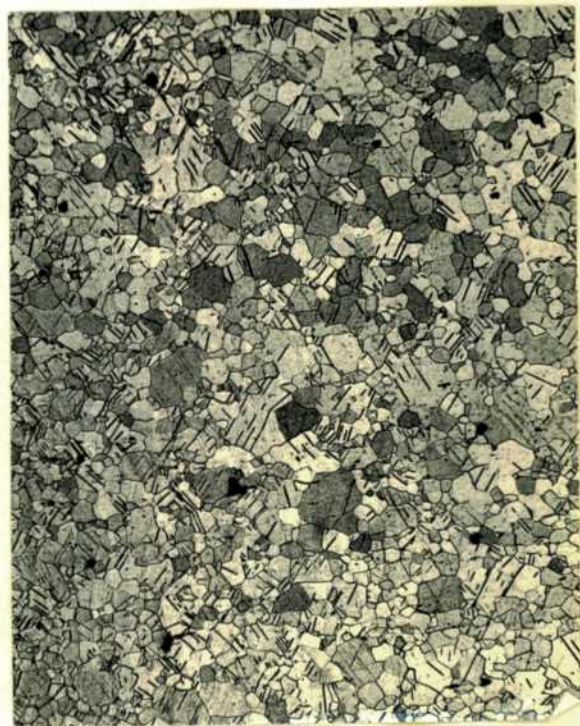
$\odot \odot$ (010) $\triangle \triangle$ (100)
 $\square \square$ (001) $\circ \circ$ (110)



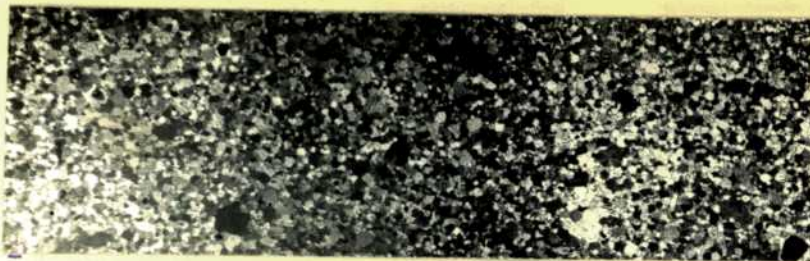
N° 17 - x 20. Cristaux de recristallisation après écouissage (à comparer à la fig. 1)



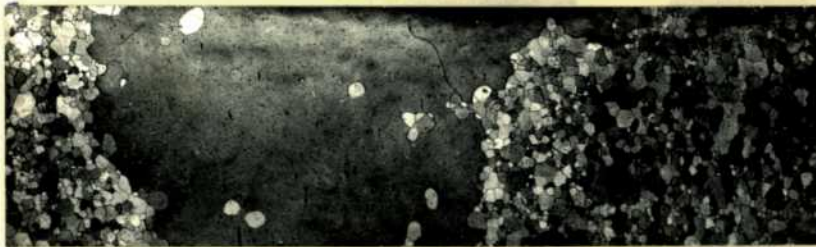
N° 18 - x 75. Grosseur du grain obtenu après 5 H à 630°C.



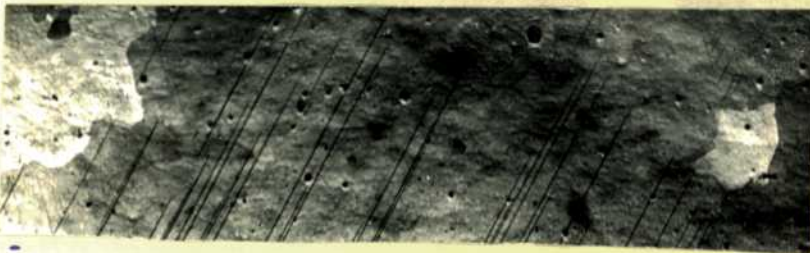
N° 19 - x 75. Grain précédent après un écouissage de 2 % et recuit de 48 H à 650°C : la restauration n'est que partielle.



Écrouissage :
2 %



4,5 %



5 %



6 %

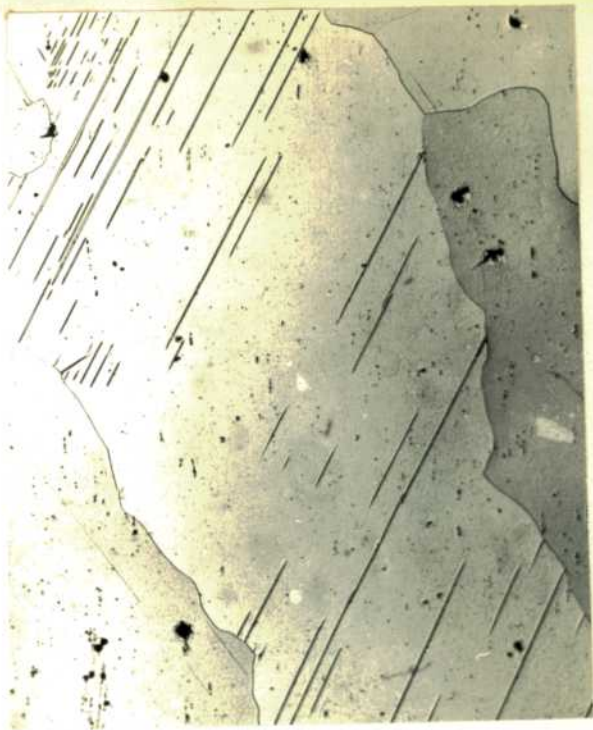


7 %



10 %

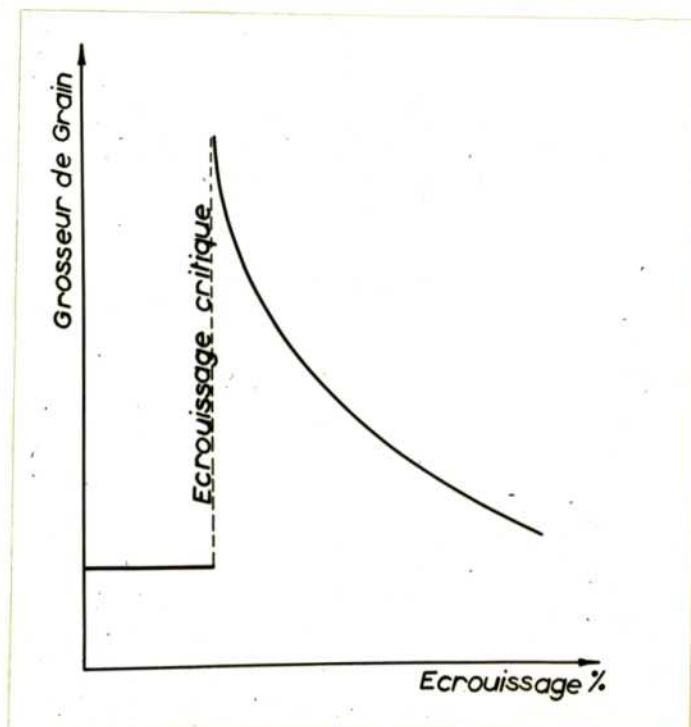
N° 20 - x 20. Grosseur de grain comparée obtenue après divers écrouissages et recuit de 48 heures à 650°C, sur une matrice initialement recuite 5 heures à 630°C.



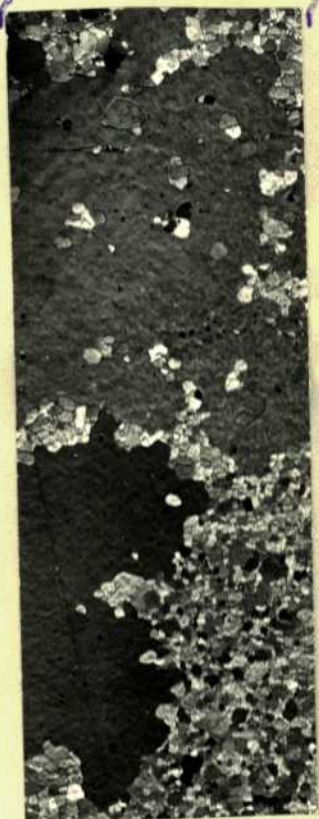
N° 21 - x 75. Gros grains obtenus après écouissage. Le cliché montre la disparition complète de la matrice à grains fins.



N° 22 - x 75. Comme le cliché 21, mais avec quelques grains fins résiduels.



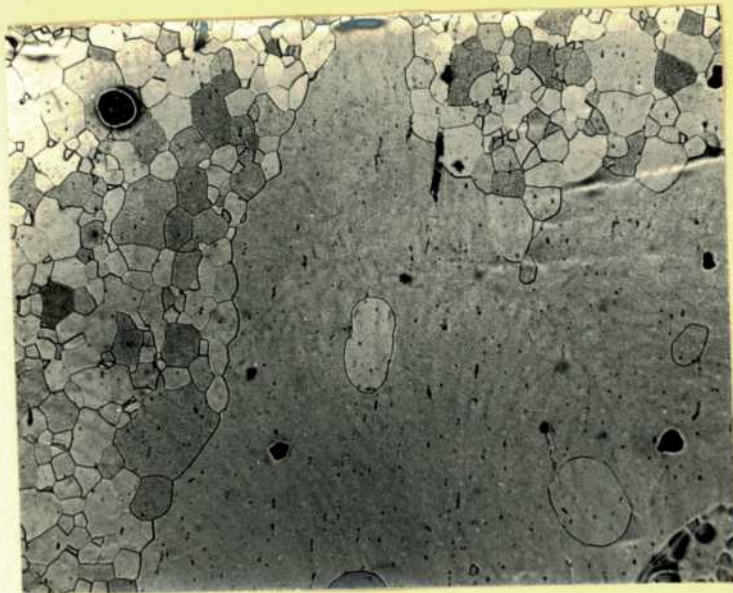
N° 23 - Variations de la taille du grain en fonction du degré d'écouissage.



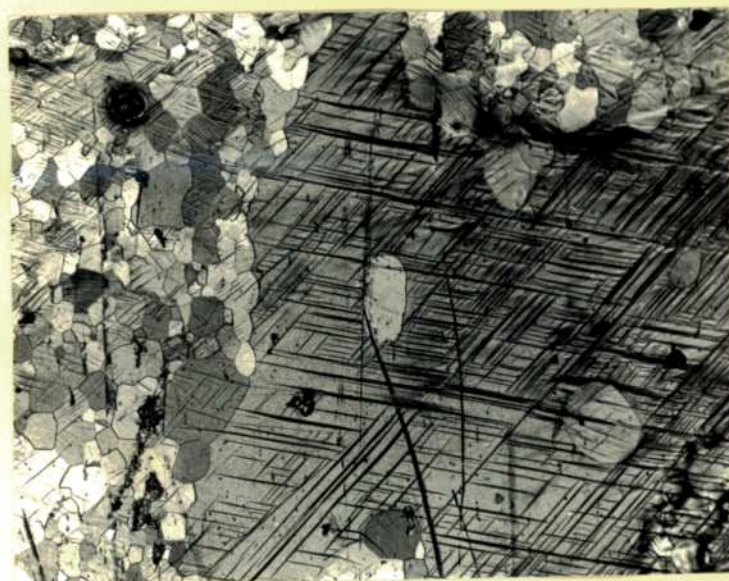
N° 24 - x 20. Grain obtenu après écrouissage et recuit de 48 heures à 650°C.



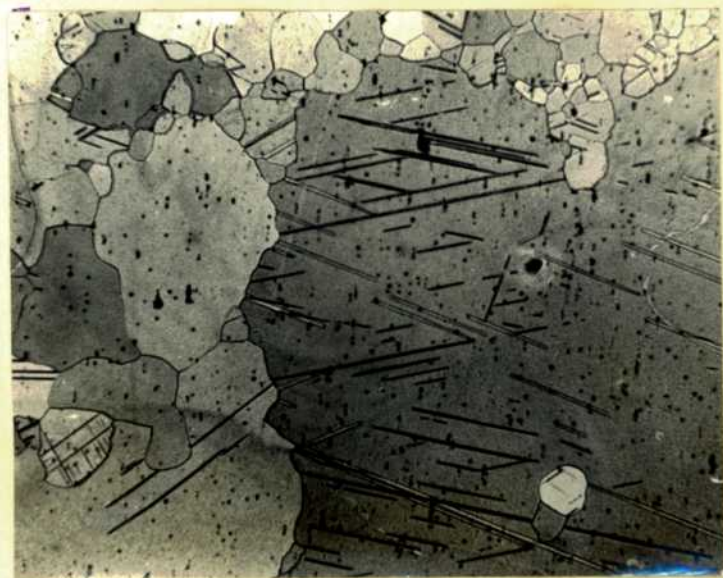
N° 25 - x 20. Même plage que le cliché précédent après 100 heures à 650°C.



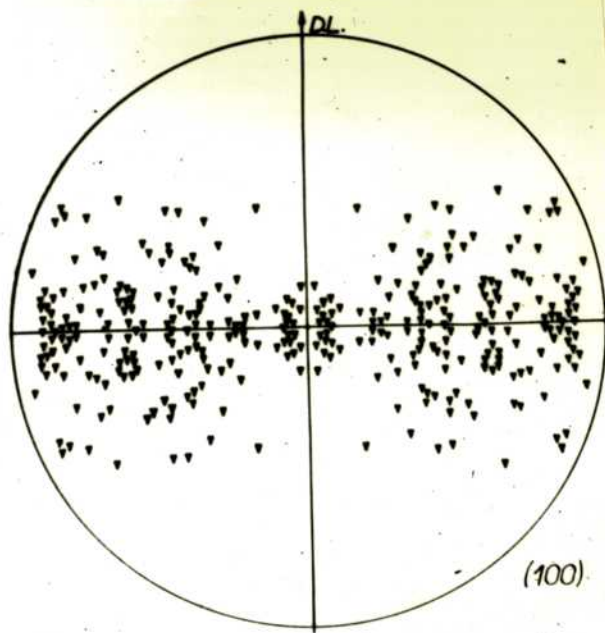
N° 26 - x 75. Gros grain secondaire et matrice à grains fins



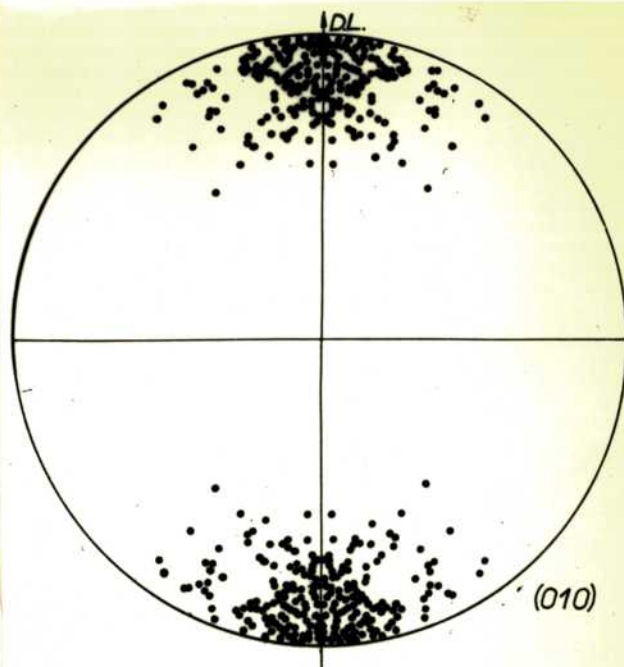
N° 27 - x 75. Même plage que le cliché 26 après écrouissage de 3 %.



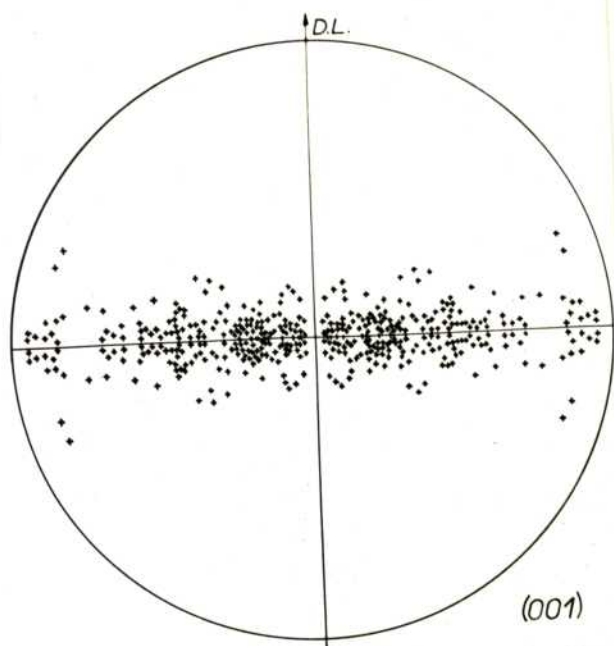
N° 28 - x 75. Même plage que le cliché 27 après recuit de 48 heures à 650°C. (La matrice a recristallisé, le gros grain est restauré.



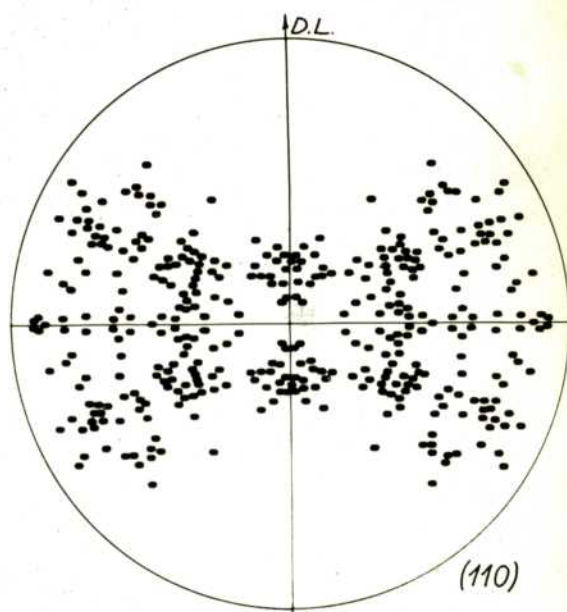
N° 29 -



N° 30 -

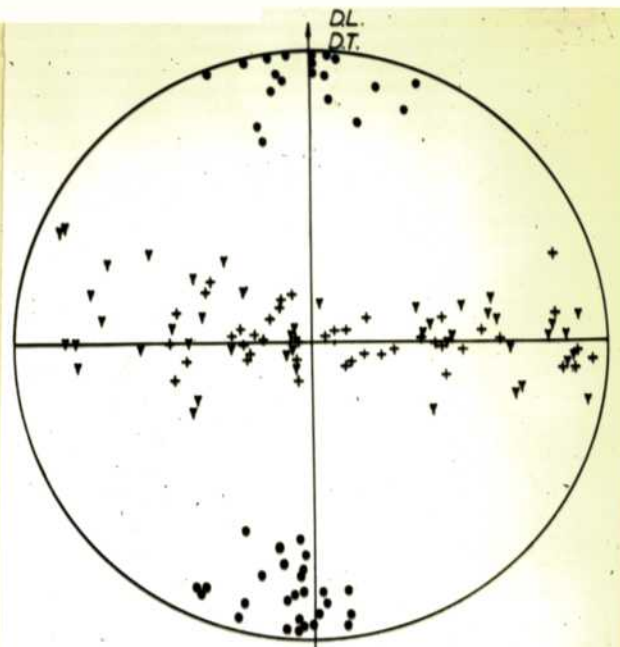
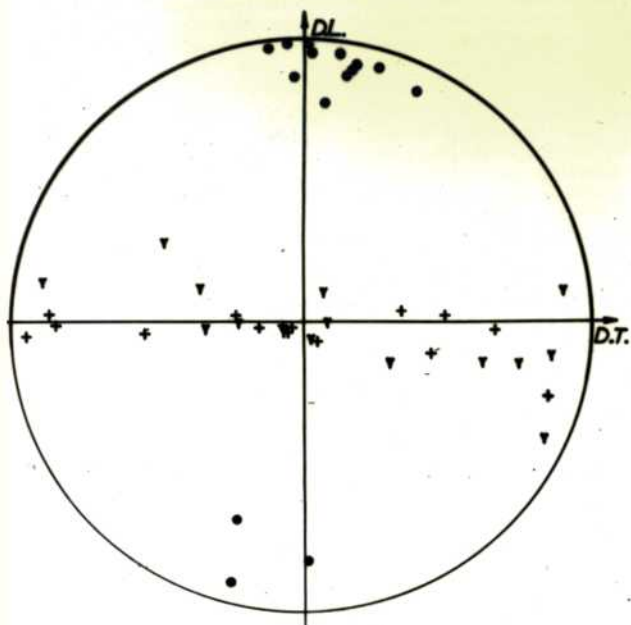


N° 31 -



N° 32 -

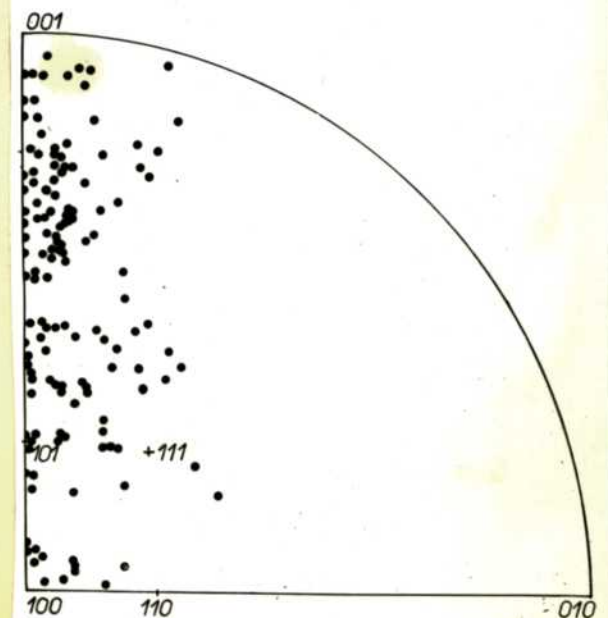
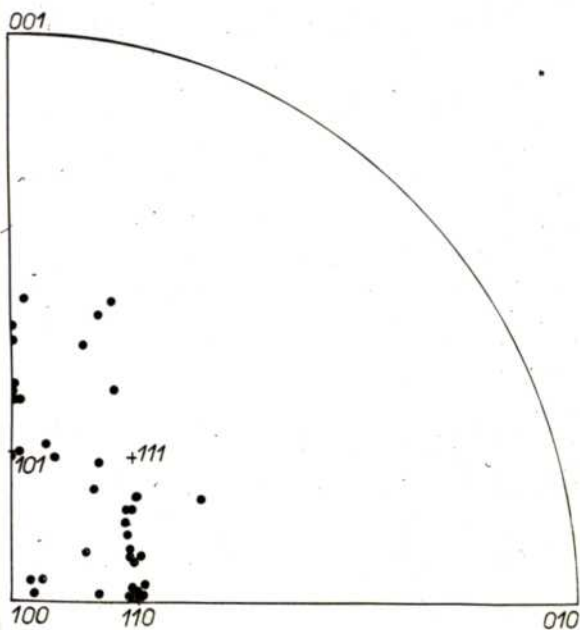
Figures de pôles (100) - (010) - (001) - (110) obtenues d'après 150 cristaux d'écroutissage critique.



Projection stéréographique des pôles des plans (100) Δ (010) \circ et (001) $+$ des cristaux obtenus par écrouissage critique.

N° 35 - Ecrouissage dans la direction de laminage.

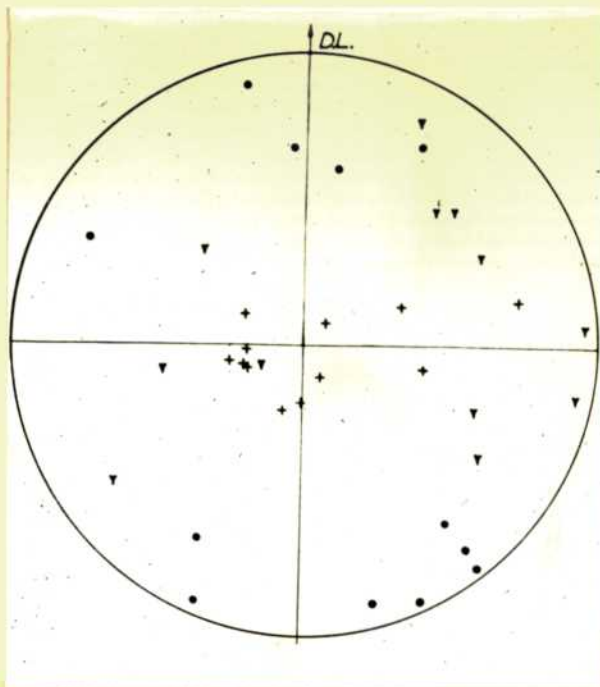
N° 34 - Ecrouissage dans la direction normale au sens du laminage.



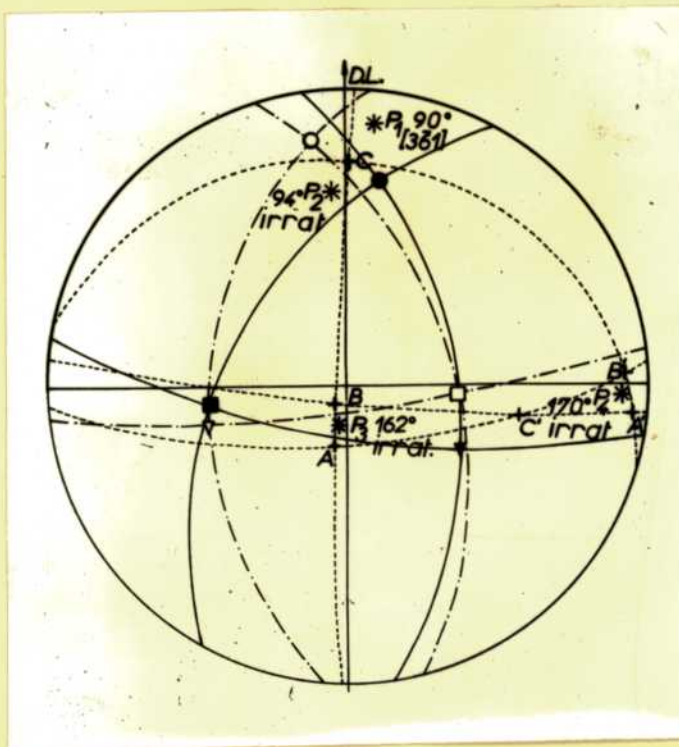
Représentation des normales au plan de la tôle dans la quadrant stéréographique.

N° 35 - Pour 40 cristaux de recristallisation secondaire

N° 36 - Pour 150 cristaux d'écrouissage critique.



N° 37 - Projection stéréographique des poles des plans (100) Δ (010) \circ , et (001) $+$ des cristaux obtenus après un écrouissage supérieur à l'écrouissage critique.



N° 38 - Méthode graphique de détermination des relations d'orientation entre 2 cristaux orthorhombiques.

- \bullet \circ poles des plans (010)
- \blacksquare \square - (001)
- \blacktriangle \triangle - (100)

