

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

Mme NELLY AMBROSIS DE LIBANATI †, DANIEL CALAIS et PAUL LACOMBE

Centre de Recherches Métallurgiques de l'Ecole des Mines de Paris, France

Reçu le 10 novembre 1962

On a observé sur de l'uranium de haute pureté (d'origine électrolytique) la croissance de gros grains soit par recristallisation secondaire consécutive à un écouissage par laminage élevé et recuit prolongé en haut de la phase α , soit par écouissage critique et recuit appliqué à une texture de recristallisation primaire.

Seul l'uranium de haute pureté donne naissance à ces deux types de croissance de gros grains. Ces deux méthodes de croissance fournissent donc un critère qualitatif très sûr de la pureté de l'uranium.

La recristallisation secondaire donne naissance à des cristaux de plus petite dimension que la croissance après écouissage critique, car il subsiste toujours, quelle que soit la durée et la température du recuit, des restes de la texture à grains fins de recristallisation primaire. Par écouissage critique au contraire, il est possible d'obtenir de très gros grains très parfaits (de 1 à 3 cm² de surface) avec disparition complète de la texture de recristallisation primaire.

Les orientations cristallines d'un très grand nombre de grains formés par les deux méthodes de croissance ont été déterminées par diagramme de Laue en retour. Les cristaux de recristallisation secondaire possèdent une texture beaucoup plus prononcée que celle développée par la croissance de cristaux par écouissage critique. Cependant dans les deux cas, il est remarquable que l'axe b de tous les cristaux semble jouer un rôle essentiel dans la croissance puisqu'il est toujours sensiblement orienté parallèlement à la direction de laminage. C'est seulement dans le cas où l'écouissage appliqué à la texture de recristallisation primaire dépasse nettement le taux d'écouissage critique que l'on observe la croissance par recuit ultérieur de cristaux ayant des orientations très diverses.

On a tenté d'expliquer ces deux modes de croissance par recristallisation secondaire ou par écouissage critique en reliant les textures de déformation obtenues par écouissage élevé par laminage aux textures soit de recristallisation secondaire, soit de recristallisation après écouissage critique.

The growth of large grains, either by secondary recrystallization after deformation by heavy rolling and prolonged annealing at high temperatures in the α phase, or by critical straining and annealing applied to a primary recrystallization texture, has been observed in electrolytic uranium of high-purity. Only uranium of high purity undergoes these two types of exaggerated grain growth. Thus, these two methods of growth provide then a very secure qualitative criterion of the purity of the uranium.

Secondary recrystallization gives rise to crystals of smaller dimensions than growth after critical strain, because there are always whatever may be the length and temperature of anneal, some remnants of the fine grains of the primary recrystallization texture. By critical strain, however, it is possible to obtain very large and very perfect grains (of 1-3 cm² surface area) together with the complete disappearance of the primary recrystallization texture.

The crystalline orientation of a very large number of grains formed by the two methods of growth have been determined by Laue back-reflection diagram. The crystals of secondary recrystallization possess a texture very much more pronounced than that displayed by the crystals produced by critical straining. However, in the two cases, it is remarkable that the b axis of all the crystals seems to play an important role in the growth since it is always oriented essentially parallel to the direction of rolling. It is only when a deformation is applied to the primary recrystallization texture, considerably in excess of the critical deformation that one observes growth during further annealing of crystals having some very diverse orientations.

An attempt has been made to explain these two modes of growth, by secondary recrystallization or by critical strain, by relating the deformation texture obtained on heavy deformation to the textures either of secondary recrystallization or of recrystallization after critical strain.

† Actuellement à la "Comision Nacional de la Energia Atomica", Buenos-Aires, Argentina.

Es wurde das Wachstum grosser Körner an einem elektrolytisch-erzeugten Uranium hoher Reinheit studiert. Dieses Wachstum erfolgt entweder bei sekundären Rekristallisation nach hoher Walz-Verformung und längerem Glühen bei hohen Temperaturen in der α -Phase oder bei kritischer Kaltverformung und Glühen um eine primäre Rekristallisation hervorzurufen. *Allein* das Uranium hoher Reinheit erlaubt das Wachsen der grossen Körner durch beide Mechanismen. Diese beiden Wachstums-methoden sind also für die Reinheit des Uraniums ein sehr sicheres qualitatives Kriterium.

Die sekundäre Rekristallisation erzeugt kleinere Kristalle als diejenigen nach kritischer Kaltverformung; denn welche auch immer die Dauer und die Temperatur des Glühens sein möge, bestehen immer Reste der feinkörnigen Textur der primären Rekristallisation. Im Gegenteil, es ist möglich bei kritischer Kaltverformung sehr perfekte grosse Körner (Oberfläche 1 bis 3 cm²) und vollständiges Verschwinden der primären Rekristallisationstextur zu erlangen.

Introduction

Nous avons cherché à comparer 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 par laminage, une recristallisation après

Die Kristallorientierungen zahlreicher Körner durch beide Wachstumsmethoden gebildet, wurden durch Laue Rückstrahlung festgestellt. Die aus der sekundären Rekristallisation erwonnenen Körner haben eine ausgeprägtere Textur als die aus der kritischen Kaltverformung erwonnene.

In beiden Fällen aber bemerkt man dass die *b* Achse sämtlicher Kristalle eine wichtige Rolle für das Wachstum spielt, sie läuft nämlich immer der Walzrichtung parallel. Bei späterem Glühen wird das Wachstum von Kristallen verschiedener Orientierungen erst beobachtet wenn die Kaltverformung zu der primären Rekristallisation angewandte Textur deutlich das Verhältniss der kritischen Kaltverformung überschreitet.

Es wurde versucht jene zwei Wachstums-arten der sekundären Rekristallisation und der kritischen Verformung zu erklären indem man die durch hoher Kaltverformung erhaltenen Texturen auf die Texturen der sekundären Rekristallisation oder der Rekristallisation nach kritischer Verformung bezog.

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 par un écrouissage critique et déterminé les orientations et relations cristallographiques des cristaux obtenus.

IÈRE PARTIE

RECRISTALLISATION SECONDAIRE DE L'URANIUM α

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 dispersée¹⁾.

Cette dernière méthode a été utilisée par Fisher²⁾ pour l'élaboration de monocristaux d'uranium α en créant au sein d'un échantillon polycristallin un gradient de concentration en silicium.

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 croissance discontinue de cristaux de grande taille par

recuit prolongé d'une tôle fortement déformée par laminage unidirectionnel, 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 également signalé son apparition sur des barreaux d'uranium obtenus par filage. Il a étudié son apparition sur de l'uranium de différentes puretés après divers traitements thermiques antérieurs au filage³⁾.

Nous avons étudié l'apparition et le développement du phénomène dans l'uranium de *haute pureté* préparé par voie électrolytique et refondu sous vide^{4,5)}, puis écroui par *laminage*.

1. Méthodes expérimentales

1.1. PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS

L'uranium brut de fonderie est laminé à 300° C jusqu'à une certaine épaisseur pour détruire la texture de fonderie. Le métal est ensuite recuit à 600° puis laminé à froid à un taux d'érouissage élevé exprimé en % par la formule :

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

Le découpage de bandes à bords parallèles est réalisé à la cisaille aussitôt après laminage à froid.

1.2. 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 présentent une attaque thermique prononcée ⁶⁾.

1.3. EXAMEN DE LA STRUCTURE

Tous les échantillons sont polis électrolytiquement dans le bain acétochromique préconisé par Pruna, Lehr et Chaudron ⁷⁾.

Pour l'observation microscopique ou macroscopique de la grosseur du grain, on procède à un gravage dans le même bain, selon les conditions signalées par Robillard, Mille Durand et Lacombe ⁸⁾. Cette méthode met en évidence plus clairement les faibles désorientations dues aux sousstructures que l'observation en lumière polarisée.

1.4. RAYONS X

Les orientations des gros grains ont été déterminées par diagramme de Laue en retour, effectués avec une anticathode de tungstène, sous 45 kW et 5 mA, et un collimateur de 0,4 mm, en utilisant la méthode de dépouillement des diagrammes de Laue de Mme Siménel ⁹⁾.

2. Résultats Expérimentaux

2.1. ASPECTS MORPHOLOGIQUES DE LA CROISSANCE SECONDAIRE

Après un recuit à haute température dans des conditions précisées plus loin, il apparaît 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 ^{10,11)} pour distinguer cette croissance secondaire dite exagérée, ou « discontinue » de la croissance « continue » (fig. 2).

Dans la matrice à grains fins, on peut observer également des zones polycristallines à forte texture, allongées dans le sens du laminage, 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 absorbant toute la texture primaire à grains fins.

2.2. PERFECTION DES CRISTAUX

Les gros grains secondaires sont, du moins à l'échelle de la méthode classique de Laue (fig. 4), exempts d'une polygonisation, comme celle qui apparaît par contre dans les gros cristaux produits par changement de phase $\beta \rightarrow \alpha$.

3. Facteurs de croissance des cristaux secondaires

3.1. INFLUENCE DE LA PURETÉ

C'est seulement l'uranium de haute pureté préparé par électrolyse ignée ⁴⁾ et refusion sous

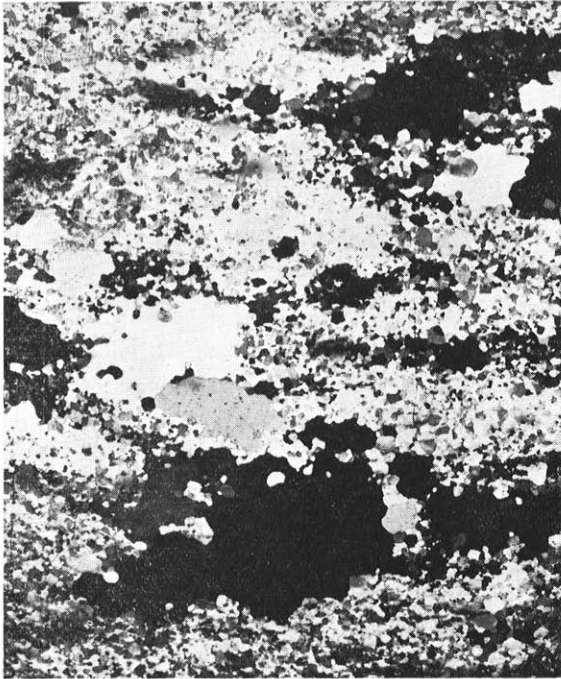


Fig. 1. Macrographie d'une plage à cristaux fins de recristallisation primaire et à gros cristaux de recristallisation secondaire. $\times 20$

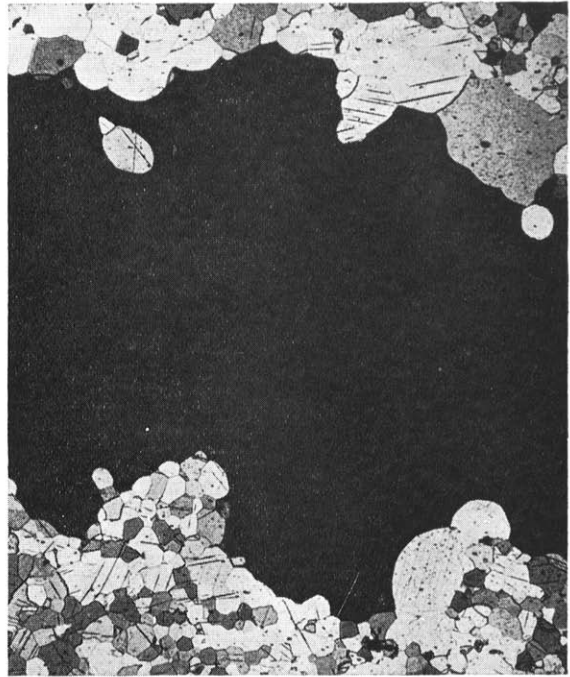


Fig. 2. Croissance typique d'un cristal de recristallisation secondaire: les joints séparant le gros grain de la texture primaire à grains fins se déplacent vers leur centre de courbure. $\times 75$

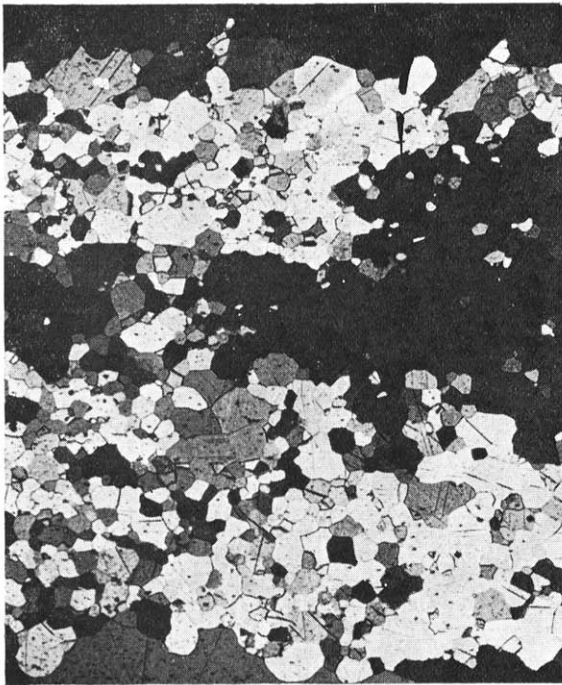


Fig. 3. Zone de grains fins en texture dans la matrice polycristalline de recristallisation primaire. $\times 75$

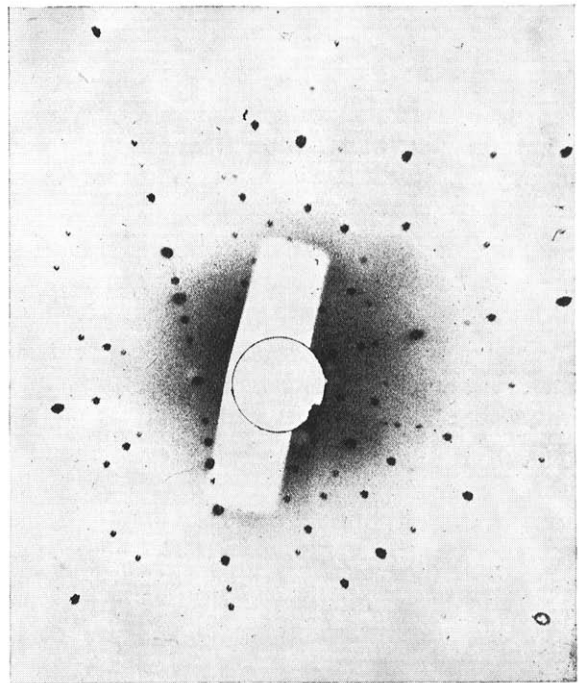


Fig. 4. Diagramme de Laue en retour d'un gros grain de recristallisation secondaire.

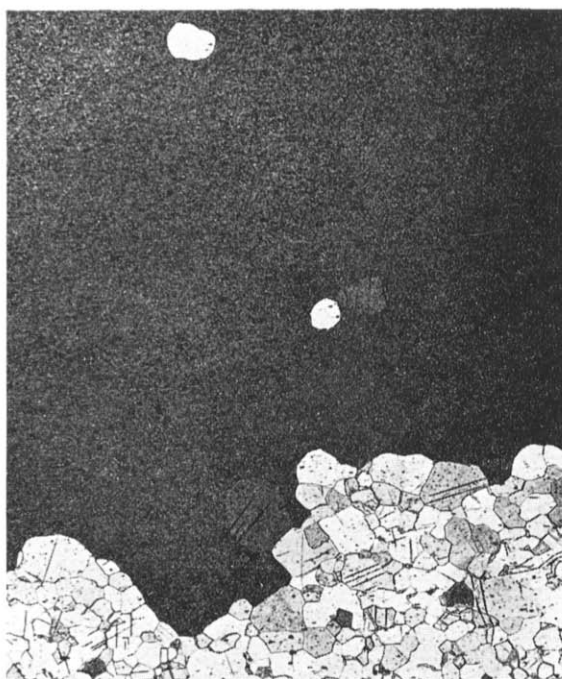


Fig. 5.

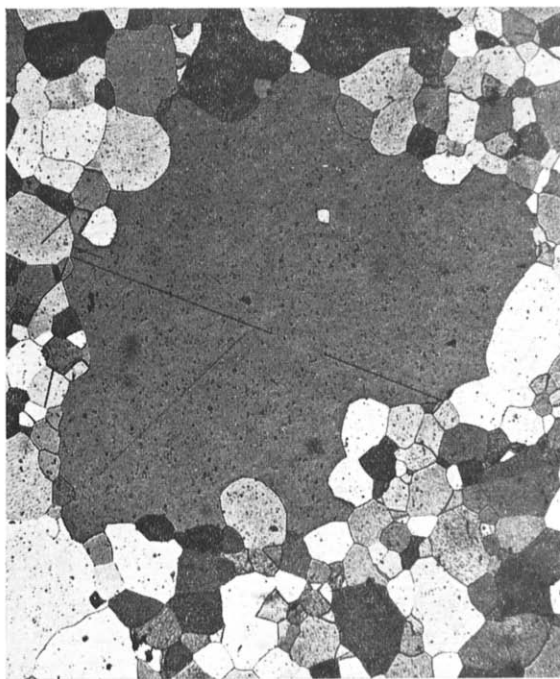


Fig. 6.

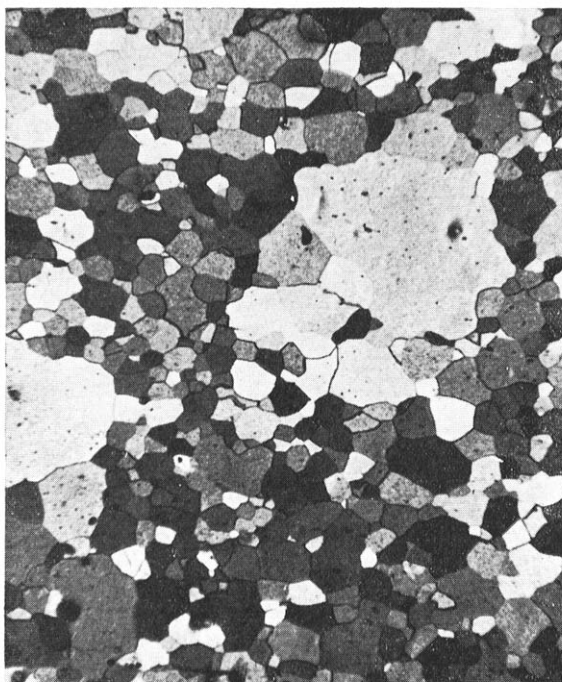


Fig. 7.

Fig. 5-6-7. Importance comparée de la recristallisation secondaire dans le cas de 3 uraniums d'origine électrolytique de pureté décroissante (même traitement de 48 heures à 650° C). $\times 75$

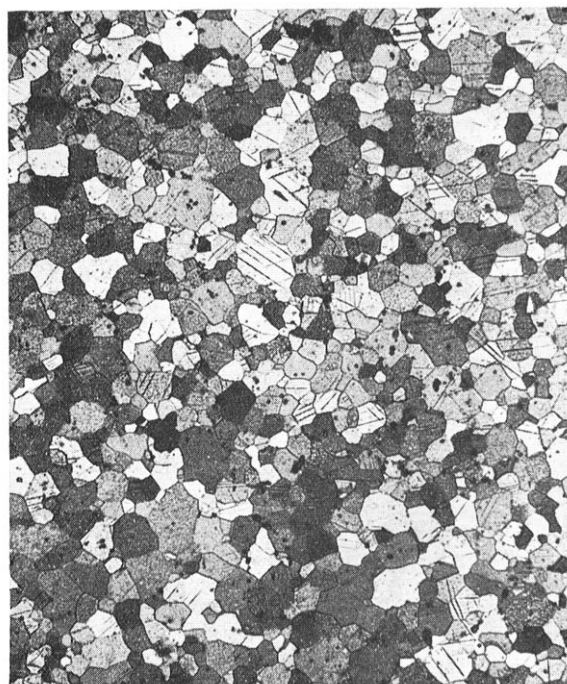


Fig. 8. Structure de l'uranium de pureté nucléaire courante après le même traitement de 48 heures à 650° C. $\times 75$

vide élevé⁵⁾† qui manifeste une aptitude à la croissance secondaire.

Pour montrer 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 pureté différente.

Le premier présente l'analyse suivante (ppm)

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 oxygène et en azote plus élevée (appréciée qualitativement par l'examen microscopique et comptage des inclusions d'oxyde ou de nitrure).

Le quatrième est un uranium de pureté nucléaire courante élaboré par le Commissariat à l'Énergie 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 diminuent au fur et à mesure que la pureté décroît (fig. 5-8) 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.

3.2. INFLUENCE DE L'ÉPAISSEUR

Pour observer la recristallisation secondaire, il ne faut pas amener 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-siliciums par Dunn¹²⁾ et le fer doux par Coulomb¹³⁾. 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 d'ancrage. 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 ultérieure⁶⁾.

3.3. INFLUENCE DE L'ÉCROUISSAGE

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'écroissage de 80 % est 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'écroissage de 400 à 1000 % (fig. 9, 10).

3.4. 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 favorisent le développement de la recristallisation secondaire. Celle-ci apparaît pour des températures comprises entre 600° C et la température maximum correspondant à la transformation $\alpha \rightarrow \beta$ (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/min) et de l'ordre de 50 heures pour une montée lente (100° C/h).

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 montée rapide en température. Ces observations sont à rapprocher de celles de Rathenau et Custers¹⁴⁾ sur la recristallisation des ferro-nickels qui ont bien montré aussi l'influence de

† Nous tenons à remercier le Dr. Chiswick d'Argonne National Laboratory à qui nous sommes redevables de cet uranium de haute pureté.

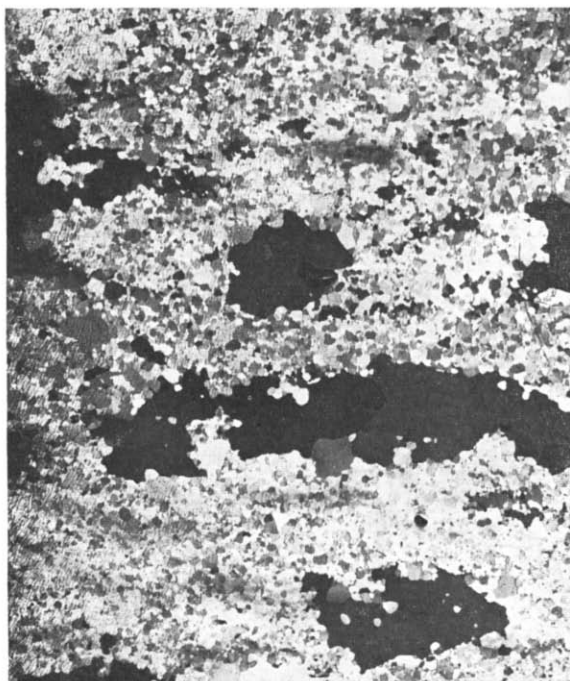


Fig. 9. Ecroissage de 400 %.

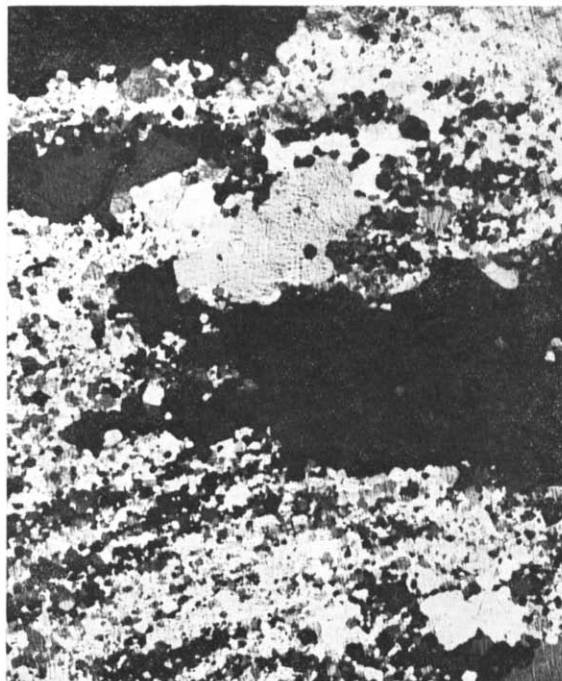


Fig. 10. Ecroissage de 1000 %.

Fig. 9 en 10. Influence du taux d'écroissage sur la taille des cristaux de recristallisation secondaire.

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 durant le même temps conduit au même résultat que s'il avait été directement

recuit 48 heures après une montée rapide en température (fig. 11). Ceci pourrait s'expliquer par le fait qu'au cours du refroidissement l'anisotropie des coefficients de dilatation provoque une déformation 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 expliquée par la coexistence dans la texture de recristallisation primaire de plusieurs composantes d'orientation différente dont certaines sont proches de la texture secondaire.

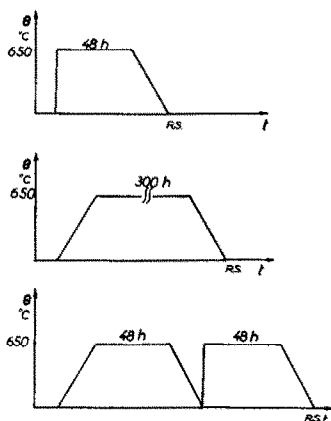


Fig. 11. Schéma représentant les divers types de traitements thermiques conduisant à des cristaux secondaires de taille comparable.

4. 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'écroutissements comparables à ceux de nos essais pour les relier si possible aux textures de recristallisation secondaire que nous avons observées.

4.1. TEXTURE DE LAMINAGE

Mueller, Knott et Beck¹⁵⁾ 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. Seymour¹⁶⁾ trouve pour l'uranium laminé à froid de 90 % une

texture double, dont chaque composante coïncide sensiblement avec deux des composantes décrites par Mueller, Knott et Beck. Mitchell et Rowland¹⁷⁾ ont trouvé après laminage à froid de 60 % une texture simple voisine de la 2ème composante de Mueller, Knott et Beck.

4.2. TEXTURE DE RECRISTALLISATION PRIMAIRE

Mueller, Knott et Beck¹⁵⁾ ont établi quatre « orientations idéales » comme composantes de la texture présentée par l'uranium laminé à 300° C et recristallisé à 525° C.

TABLEAU I

Composantes majeure et mineure des textures de déformation et de recristallisation de l'uranium

Laminage								
Mueller, Knott et Beck ¹⁵⁾			Seymour ¹⁶⁾			Mitchell et Rowland ¹⁷⁾		
1	2	3	1	2	3	1	2	3
(4, 17, 26) ~ (146)	~ [410]	(110)						
(9, 0, 25)* ~ (103)	* [010]	* (010)	(102)	[010]	(010)	(101)	[010]	(010)
(4, 14, 45) ~ (139)	~ [552]	(4, 17, 5) ~ (141)						
~ (038)	~ [031]	~ (041)	~ (014)	[040]	(051)			
Recristallisation primaire						Recristallisation secondaire		
Mueller, Knott et Beck ¹⁵⁾			Mitchell et Rowland ¹⁷⁾			Présente étude		
1	2	3	1	2	3	1	2	3
(9, 0, 25) ~ (103)	[010]	(010)	(102)	[010]	(010)	~ (203)	[010]	(010)
(100)	[010]	(010)				~ (110)	[110]	(140)
(7, 7, 19)* ~ (113)	[110]	(3, 13, 0)* ~ (140)						
(2, 2, 15) ~ (116)	~ [411]	~ (553)						

1. Plan parallèle à la surface de la tôle.
 2. Axe parallèle à la direction de laminage.
 3. Plan perpendiculaire à la direction de laminage.
- * Composante principale.

Mitchell et Rowland ¹⁷⁾ trouvent après recristallisation la même texture que celle de laminage.

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

L'interprétation de ces figures de pôle conduit à déterminer deux « orientations moyennes » définissant la texture de recristallisation secondaire (fig. 15). Celles-ci sont représentables par les indices

- (203) [010] orientation N° 1 †
- (110) [110] orientation N° 2.

Les symboles

○ ○, △ △, □ □, ◊ ◊

placés sur les figures de pôle signalent les points choisis pour déterminer ces « orientations moyennes ».

† Rappelons que selon l'habitude prise par différents auteurs, chaque composante d'une texture consiste en réalité en une paire de pôles disposées symétriquement par rapport à la direction transverse).

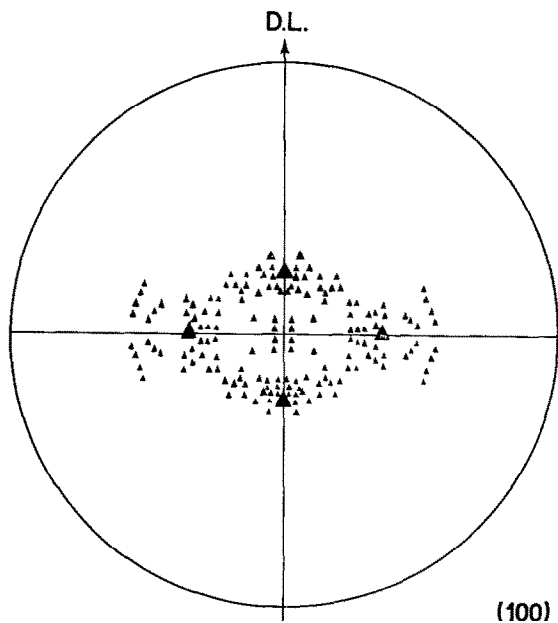


Fig. 12. Figure de pôles (100) correspondant à l'orientation de 40 cristaux de recristallisation secondaire.

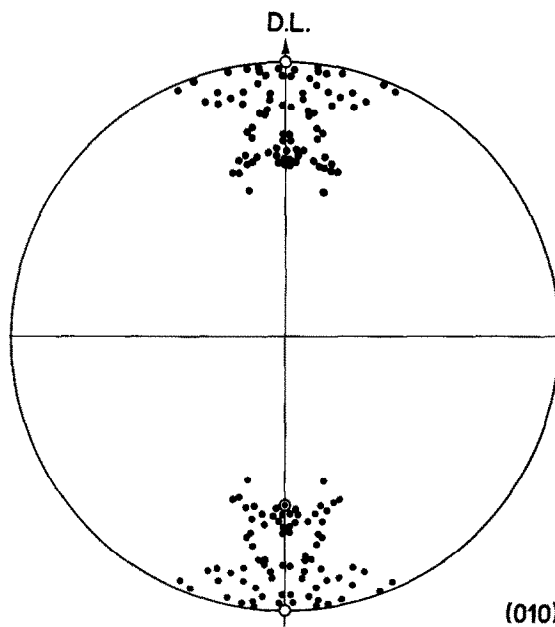


Fig. 13. Figure de pôles (010) correspondant à l'orientation de 40 cristaux de recristallisation secondaire.

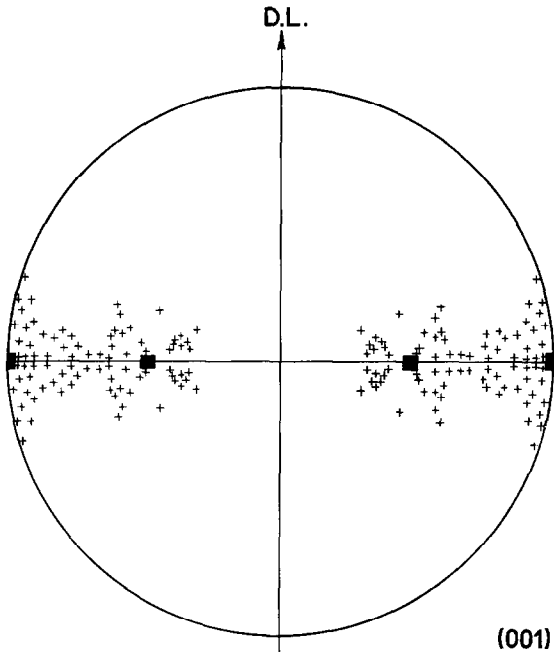


Fig. 14. Figure de pôles (001) correspondant à l'orientation de 40 cristaux de recristallisation secondaire.

Comme le montre le tableau 1, 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 pri-

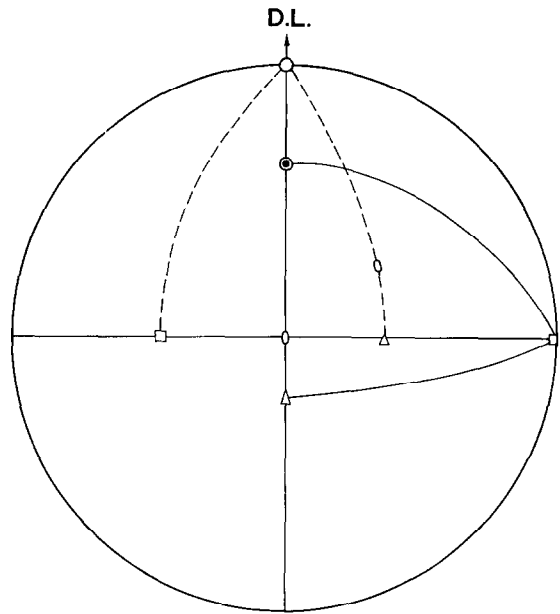


Fig. 15. Orientations moyennes des textures de recristallisation secondaire déduites des figures de pôles précédentes

○ ⊙ (010)	△ Δ (100)
□ ⊠ (001)	◇ ◇ (110)

naire 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 absorbée.

IIÈME PARTIE

CROISSANCE DE GROS CRISTAUX PAR ECROUISSAGE 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 d'après Fisher³⁾ par un faible écrouissage appliqué après la recristallisation primaire. C'est ce que cet auteur a observé sur des barreaux d'uranium filés.

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

- a) écrouissage élevé par laminage à froid (80 % et au-delà)
- b) recuit en α dans des conditions ne permettant que le développement de la texture de recristallisation primaire.
- c) écrouissage 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 d'un grossissement provoqué par écrouissage critique et non pas d'une accélération de la croissance secondaire.

Notre étude comporte trois parties:

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

1. Historique et méthodes expérimentales

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

Cahn¹⁸⁾ 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 à 2 jours pour passer 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'écrouissage critique était de 1 %.

Fisher³⁾, puis Holden¹⁹⁾ 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 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'échan-

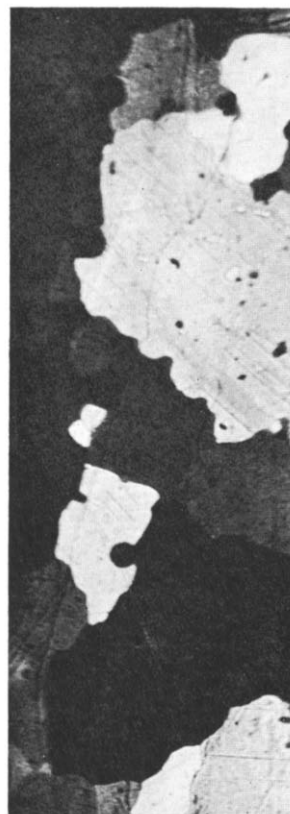


Fig. 16. Cristaux de recristallisation obtenus par écrouissage critique envahissant complètement l'échantillon sans que subsistent des cristaux primaires de petites dimensions (à comparer à la fig. 1). $\times 10$

tillons 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 de 5 × 40 × 1 mm ont été tractionnées, soit avec une micromachine Chevenard, soit avec une machine Testwell.

2. Description du phénomène 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, con-

trairement aux expériences antérieures de recristallisation secondaire, des régions à grains fins primaires (fig. 16), 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:

2.1. 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'écrouissage. Nous prendrons comme exemple une grosseur de grain de départ, obtenue par recuit de 5 heures à 630° (fig. 17). Les échantillons sont soumis aux écrouissages 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. 18), en ce sens que la grosseur du grain n'a pas varié, et la majeure

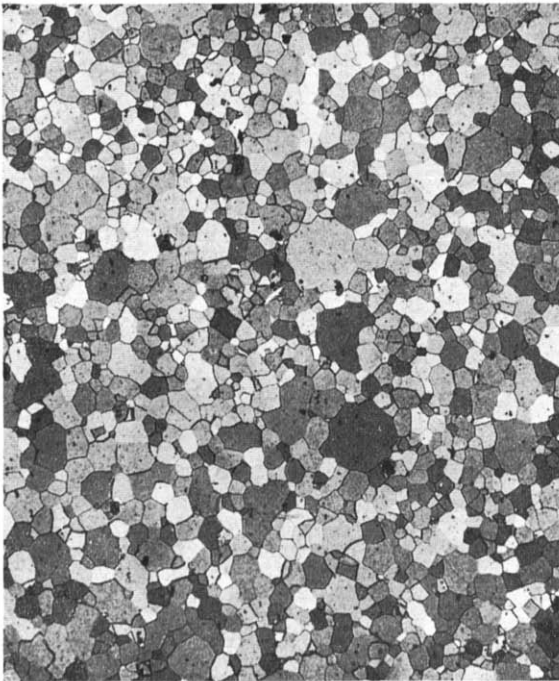


Fig. 17. Grosseur du grain de la texture de recristallisation primaire (obtenue par recuit de 5 heures à 630° C) avant l'application de l'écrouissage critique par traction. × 75

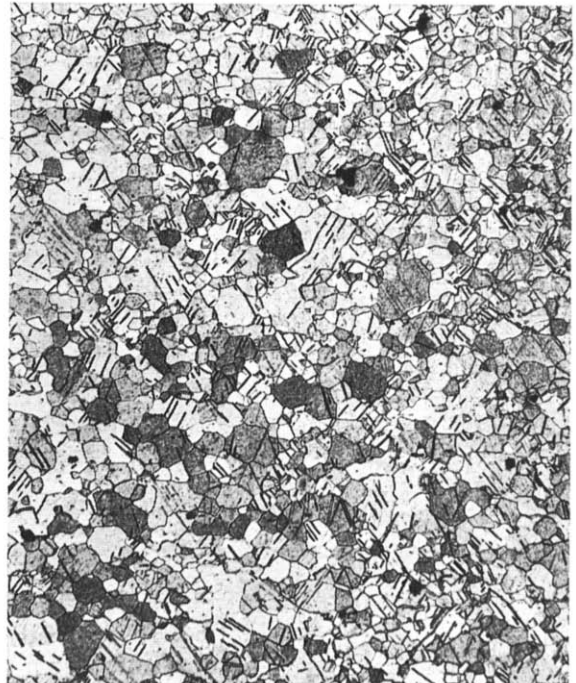


Fig. 18. Même échantillon après écrouissage de 2 % par traction et recuit de 48 heures à 650° C: il subsiste dans de nombreux grains, dont la taille n'a pas varié, des macles dues à l'écrouissage de 2 %. × 75

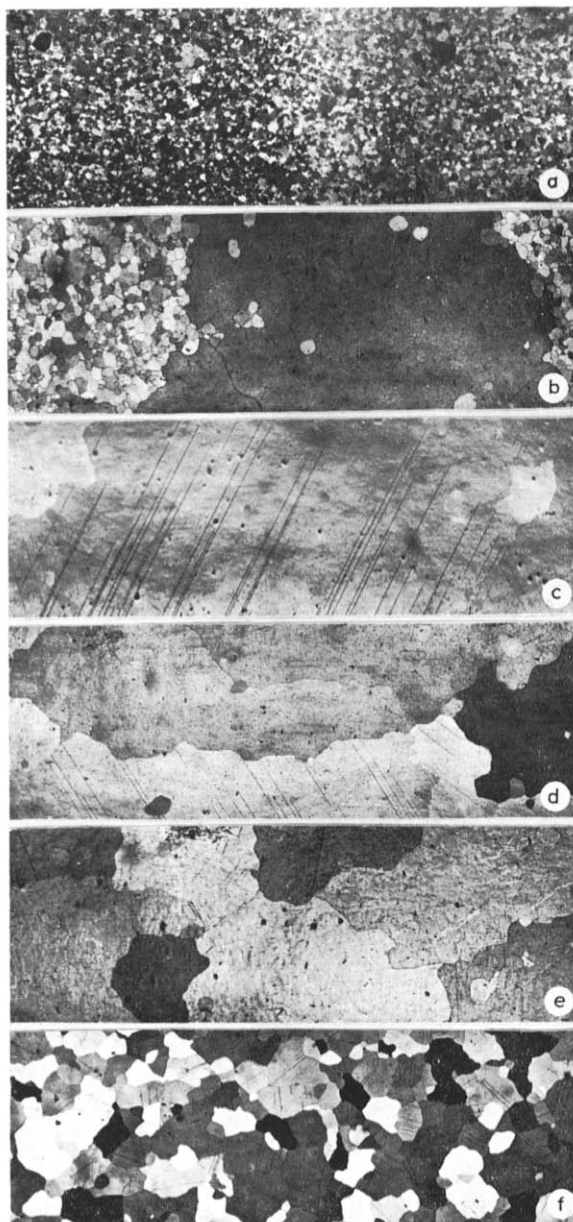


Fig. 19. Comparaison de la grosseur de grain obtenue après des écrouissages croissants et recuit de 48 heures à 650° C. La texture primaire initiale à grains fins est obtenue par recuit de 5 heures à 630° C d'une tôle d'uranium électrolytique écrouie par laminage à froid de 150 %. $\times 4$

a - 2 %	c - 5 %	e - 7 %
b - 4,5 %	d - 6 %	f - 10 %

partie des macles créées par la déformation subsiste.

- Après 5-5,5 % d'allongement, des gros

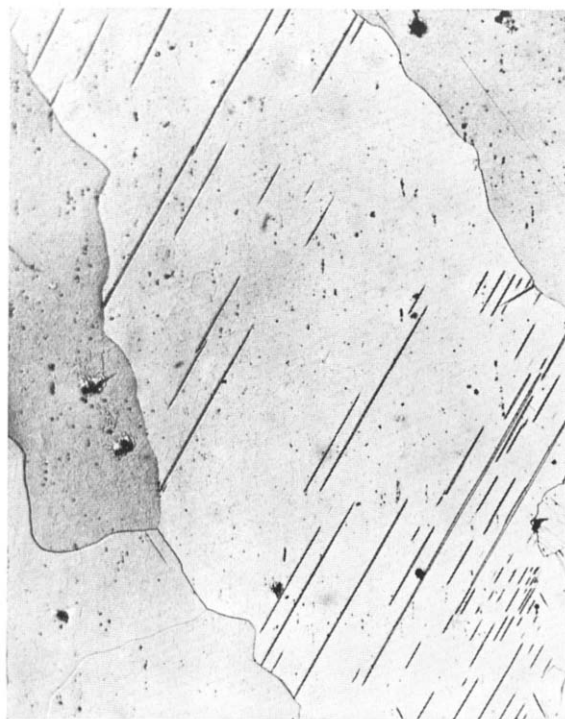


Fig. 20. Gros grains obtenus par écrouissage critique ayant absorbé entièrement la matrice initiale à grains fins. $\times 75$

grains envahissent toute la tôle et peuvent atteindre 10 mm de long (fig. 19). La matrice peut, ou bien disparaître complètement (fig. 20) ou bien subsister sous la forme de quelques petits grains insulaires ou disposés aux limites des grains (fig. 21).

Des écrouissages croissants font diminuer progressivement la grosseur du grain (fig. 19). Si l'on porte la grosseur du grain obtenue en fonction du taux d'écrouissage, on obtient la courbe classique de la recristallisation après écrouissage critique.

2.2. ETAT STRUCTURAL PRÉCÉDANT LA DÉFORMATION

L'écrouissage 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 2 ci-dessous donne la valeur de



Fig. 21. Gros grains d'écroissage critique avec subsistance de quelques grains de la texture primaire initiale, soit concentrés aux joints des gros grains, soit à l'intérieur de ceux-ci comme cristaux insulaires.

× 75

l'écroissage critique déterminé dans chaque cas, en fonction de la grosseur du grain primaire.

Ainsi l'écroissage critique augmente avec la grosseur initiale du grain. On peut signaler à la limite que pour les monocristaux de changement de phase, Calais, Lacombe et Madame Simenel²⁰⁾ ont trouvé des taux d'écroissage critique qui peuvent atteindre 12 % pour certaines orientations.

2.3. VITESSE DE MISE EN CHAUFFE ET DURÉE DE RECUIT

Deux vitesses de mise en chauffe ont été utilisées:

- a) Montée rapide en température (100° C/h)
- b) Montée lente en température (100° C/min)

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

Si l'écroissage critique est atteint, une recrystallisation complète peut être obtenue en 48 heures. Mais si par suite d'hétérogénéités dans la déformation, on observe après recuit de 48 heures des gros grains de recrystallisation dans une matrice restaurée à grain fin, la croissance de ces gros grains aux dépens des

TABLEAU 2

Recuit primaire		Grosseur de grain (μ)	Ecroissage par traction (%)	Recuit final		Observations
(h)	(°C)			(h)	(°C)	
	470	10	1,5 5	48	650	Très gros grains Grain fin
5	550	16	2 5	48	650	Très gros grains Grains fins
5	640	25	2 4,5 5 à 5,5 6	48	650	Restauration Quelques gros grains Très gros grains La taille des gros grains diminue
10	640	35	2 3,5 à 6 7	48	650	Restauration Très gros grains La taille des gros grains diminue

petits grains se produit plus lentement au cours du recuit prolongé.

2.4. HÉTÉROGÉNÉITÉS DE LA DÉFORMATION

La déformation des échantillons d'uranium polycristallin est très hétérogène ²¹, surtout

si l'on emploie des éprouvettes rectangulaires sans congé. Pour ces éprouvettes, la rupture se produit avant l'allongement correspondant à l'écroutissage critique, le recuit amène alors à une recristallisation partielle dans les zones les plus déformées. L'utilisation d'éprouvettes avec

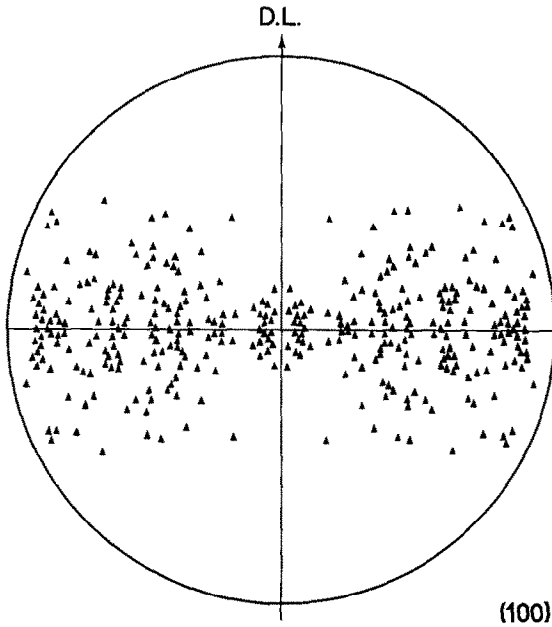


Fig. 22. Figure de pôles (100).

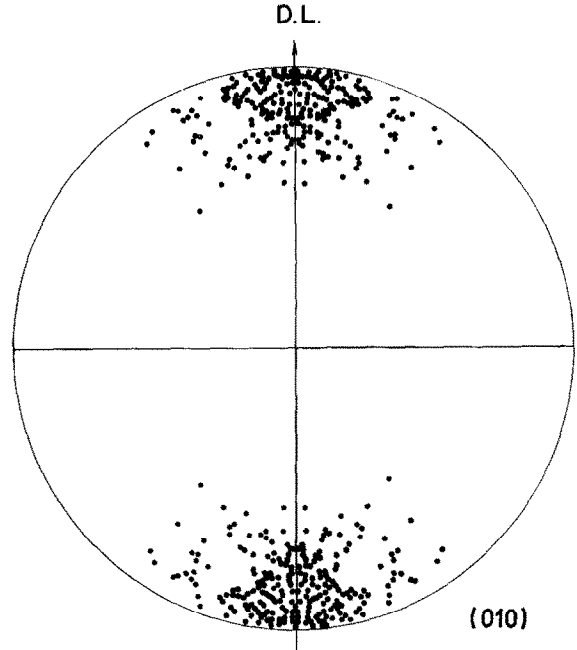


Fig. 23. Figure de pôles (010).

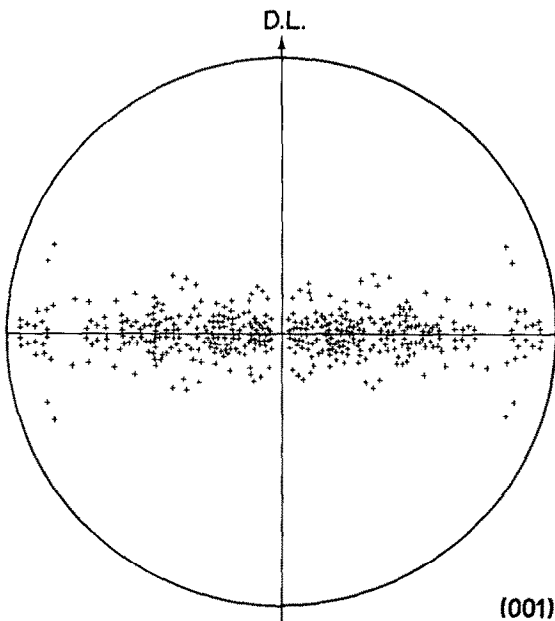


Fig. 24. Figure de pôles (001).

Fig. 22, 23 et 24. Figures de pôles correspondant à l'orientation de 150 cristaux d'écroutissage critique.

congé permet d'obtenir des écrouissages plus homogènes.

3. Orientations des gros grains développés par écrouissage critique

3.1. Nous avons déterminé l'orientation de 100 gros cristaux environ obtenus par écrouissage critique. Les figures 22-24 montrent les figures de pôles (010), (100) et (001) obtenues.

On constate 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.

Ceci est vrai également quand la texture de recristallisation primaire a été déformée par une traction soit parallèle à la direction de laminage, soit normale à celle-ci (fig. 25a et 25b).

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.

D'autre part, pour une tôle écrouie au-delà de la valeur de l'écrouissage critique, qui présente après recuit 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 26.

3.2. Nous avons étudié les relations cristallographiques entre les cristaux voisins de recristallisation par écrouissage 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*. G. Friedel a rappelé²²) que l'on peut trouver pour ces deux cristaux 4 axes cristallographiques de mêmes indices qui sont parallèles 2 à 2 dans les cristaux. En conséquence, on peut superposer ces deux cristaux en faisant subir à l'un d'eux 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

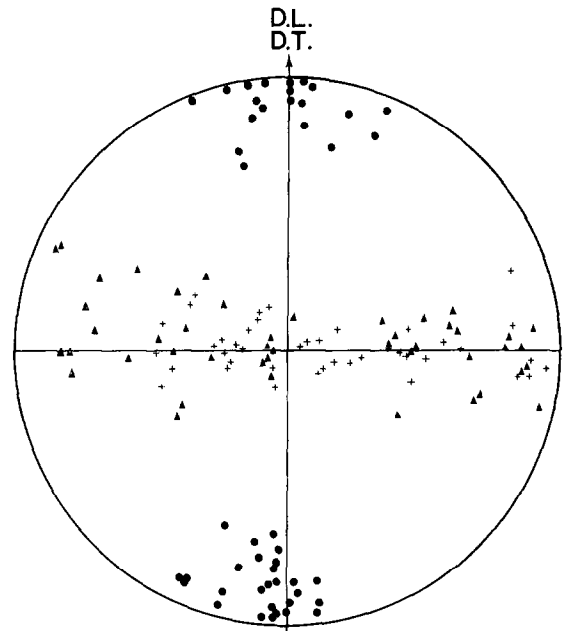


Fig. 25a. Traction parallèle à la direction de laminage.

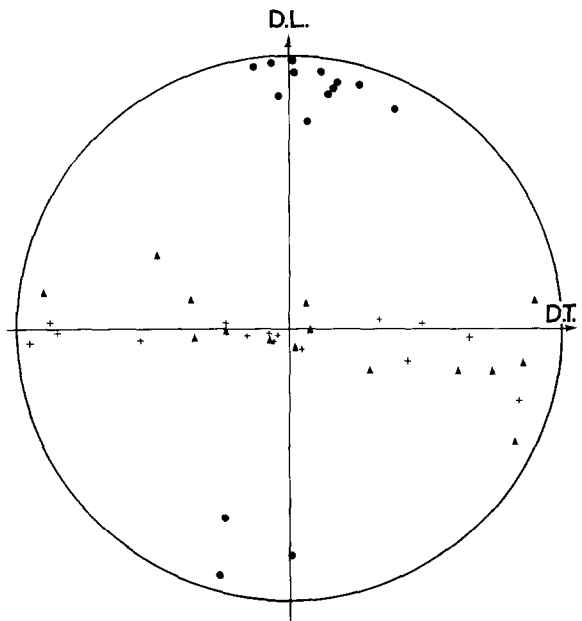


Fig. 25b. Traction normale à la direction de laminage.

Fig. 25. Projections stéréographiques des pôles des plans (100) ▲, (010) ● et (001) + de gros grains obtenus par écrouissage critique par traction de 5 %.

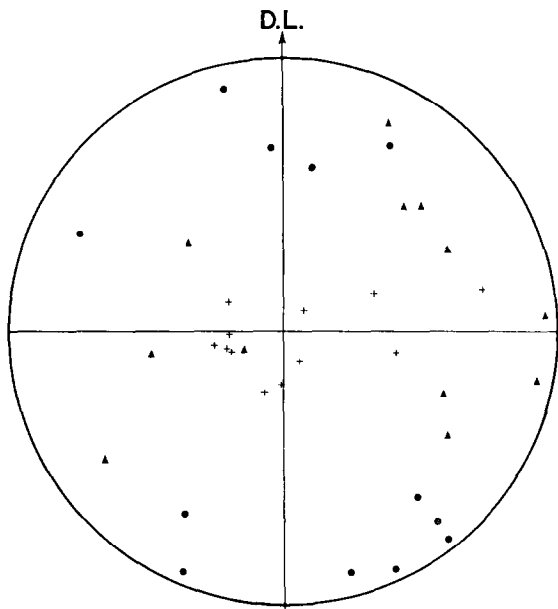


Fig. 26. Projection stéréographique des pôles des plans (100) ▲, (010) ● et (001) + de grains obtenus après un écrouissage de 10 % nettement supérieur à l'écrouissage critique: les cristaux obtenus ne forment plus une texture d'orientation préférentielle.

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 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 $2\pi/n$ ($n=2, 3, 4, 6$)
- 2) quand il y a symétrie par rapport à un centre de symétrie ou un plan réticulaire. On montre aisément qu'il existe 13 sortes de macles possibles dans le système orthorhombique.

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

- 1) l'angle de rotation est égal exactement à $2\pi/n$, 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 $2\pi/n$ (par exemple à 5° près), mais l'axe (ou le plan perpendiculaire) ont des indices simples rationnels.

Par exemple, la figure 27 montre la construction faite pour déterminer les relations d'orientation entre les cristaux 2 et 4 présentés 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 P₁, P₂, P₃, P₄ sont les pôles de ces quatre plans, c'est-à-dire les quatre axes communs.

Nous avons étudié par exemple les relations

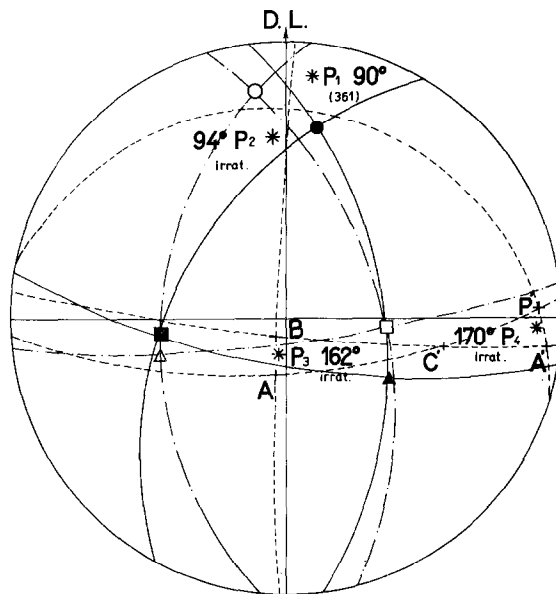


Fig. 27. Méthode graphique de détermination des relations d'orientation entre 2 cristaux orthorhombiques.

- ● pôles des plans (010)
- ■ pôles des plans (001)
- △ ▲ pôles des plans (100)
- * pôles des plans normaux aux quatre axes de rotation permettant de passer d'un cristal à l'autre.

entre 5 gros cristaux qui se présentaient dans le plan indiqué sur le croquis (fig. 28), et les résultats obtenus sont les suivants:

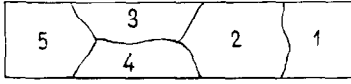


Fig. 28. Schéma représentant la position relative de 5 gros grains dont les relations d'orientation possibles ont été déterminées par rayons X.

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 [701]

Entre les cristaux 3-4; macle rigoureuse; rotation de 90° autour de l'axe [$\bar{3}61$]

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 écouissage critique ont été observées également par Moufflard²³⁾ sur le fer et par Lehr²⁴⁾ dans le cas de la croissance de gros cristaux obtenus par changement de phase $\beta \rightarrow \alpha$.

Ceci est en accord avec le fait bien connu depuis les expériences de Burgers²⁵⁾ d'une part, et de Lacombe et Berghezan²⁶⁾ d'autre part, que les 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 minimale du joint de grains. On peut donc penser que les 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 Résultats

Il est maintenant nécessaire de comparer la croissance des gros grains après écouissage élevé (croissance secondaire) et celle obtenue par écouissage 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 écouissage 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'écouissage 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 classique d'écouissage critique qui entraîne une recristallisation par germination. Les arguments à l'appui de cette idée sont les suivants:

1) Bien que les cristaux développés après traction possèdent une texture, celle-ci est plus dispersée que pour les cristaux secondaires. Pour une tôle écouie au-delà de la valeur de l'écouissage critique, les orientations des cristaux obtenus sont encore plus dispersées. Ceci appuie l'hypothèse d'un mécanisme de germination. Plus l'écouissage 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 préexistants dans la texture de recristallisation primaire. Ce sont en général les cristaux correspondant à une composante mineure de recristallisation primaire voisine de la texture de déformation.

2) 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 application

d'un faible écrouissage par traction. Autrement dit, il était important de comparer les résultats précédents à ceux obtenus par un métal à grains fins sans texture prononcée²⁶). C'est ce qui a été fait sur des échantillons à grains fins obtenus par trempe depuis la phase β et recuit à 500° C. L'écrouissage critique subsiste.

3) La texture primaire de départ dans nos échantillons est sensiblement identique à celle décrite par Mueller *et al.*¹⁵). Elle se répartit en quatre composantes (VI, II, VII et V, notation des auteurs (tableau 1) telles que

$$VI > II \cong VII > V, \text{ (fig. 29).}$$

Si l'on applique aux quatre composantes de la recrystallisation primaire la rotation définie par Lloyd²⁸) et qui permet de passer de l'orientation d'un cristal déformé au cristal qu'il donne après recrystallisation par recuit (rotation de 27° autour d'un axe situé respectivement à 70°, 63°5' et 34° des axes [100], [010] et [001]) on est conduit sensiblement à la texture de recrystallisation après écrouissage critique défini plus haut (fig. 30).

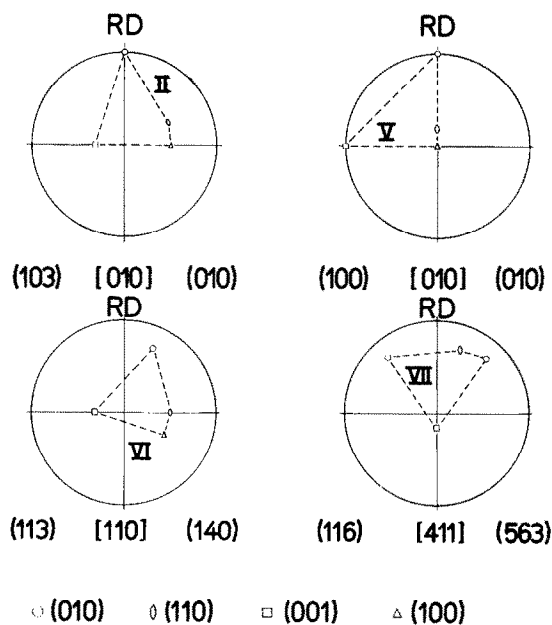


Fig. 29. Les 4 composantes de la texture primaire de recrystallisation (d'après Mueller *et al.*¹⁵).

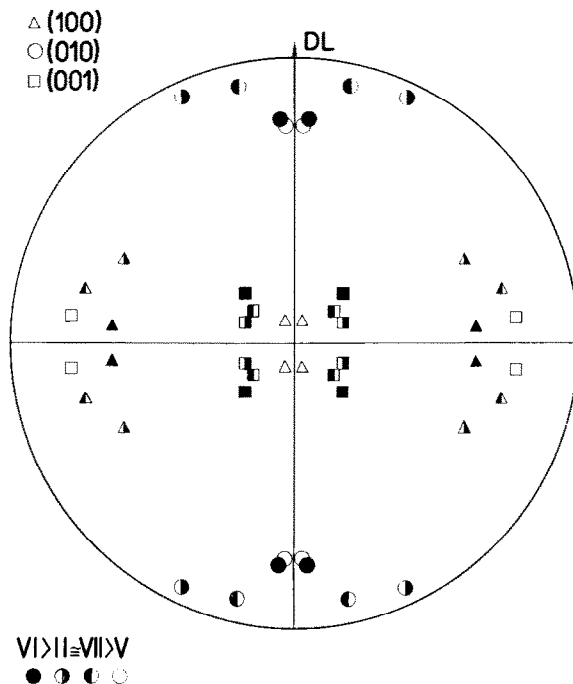


Fig. 30. Application aux quatre composantes de la texture primaire de la rotation définie par Lloyd²⁸): on retrouve sensiblement la même texture que celle obtenue par recrystallisation après écrouissage critique.

Ceci confirme d'une part les mécanismes de la recrystallisation de l'uranium α préconisés par Calais²⁹) et Lloyd³⁰) et d'autre part que l'écrouissage critique appliqué à des tôles d'uranium α à grains fins primaires n'est pas un facteur d'accélération de la croissance exagérée mais l'origine d'une nouvelle génération de cristaux par un processus analogue à celui observé dans la recrystallisation des monocristaux déformés.

Conclusions

Nous avons comparé sur de l'uranium de haute pureté la croissance des gros grains par recrystallisation 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 petites dimensions que la méthode d'écroutissage 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'écroutissage, il y a disparition complète des cristaux primaires.

3) Les textures de recristallisation secondaire sont beaucoup plus prononcées que celles obtenues pour les valeurs voisines de l'écroutissage 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'écroutissage dépasse l'écroutissage 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'écroutissage critique: les premiers correspondent à la croissance de certains cristaux privilégiés existant dans la texture de recristallisation primaire, les seconds se développent par le mécanisme de germination et de croissance.

Remerciements

Ces recherches ont été poursuivies dans le cadre d'un contrat confié par le CEA au Centre de Recherches Métallurgiques de l'École des Mines de Paris. Nous remercions le Commissariat à l'Énergie Atomique et en particulier M. Salesse, Chef du Département de Métallurgie à Saclay, de nous avoir autorisés à en publier les résultats.

Bibliographie

- 1) P. A. Beck, M. L. Holzworth et P. R. Sperry, *Trans. AIME* **180** (1949) 163
- 2) E. S. Fisher, Argonne National Laboratory (USA), Rapport ANL 50-21 (1954)
- 3) E. S. Fisher, Argonne National Laboratory (USA), Rapport 51-60 (1954)
- 4) G. Meister et W. C. Lillendahl, *J. of Metals* (1957) 1445
- 5) B. Blumenthal, *Trans. AIME* **203** (1955) 1199
- 6) Mme N. Siménel et D. Calais, *C.R. Acad. Sciences (Paris)* **253** (1961) 1444
- 7) M. Pruna, P. Lehr et G. Chaudron, *Rev. Mét.* **51** (1954) 591
- 8) A. Robillard, Mlle J. Durand et P. Lacombe, *C.R. Acad. Sciences (Paris)* **242** (1956) 508
- 9) Mme N. Siménel, *Bull. Soc. Franç. Minér. Crist.* **81** (1958) 176
- 10) P. A. Beck et P. R. Sperry, *J. of Appl. Phys.* **21** (1950) 150
- 11) P. A. Beck, *Advances in Physics* **3** (1954) 245
- 12) J. L. Walter et C. G. Dunn, *Trans. AIME* **215** (1959) 465
- 13) P. Coulomb, *C.R. Acad. Sciences (Paris)* **248** (1959) 682 et Thèse, Paris (1960)
- 14) G. W. Rathenau et J. F. H. Custers, Philips Research Lab. Rapport 404 (1949) 241
- 15) M. H. Mueller, H. W. Knott et P. A. Beck, *Trans. AIME* **203** (1955) 1214
- 16) W. Seymour, *Trans. AIME* **200** (1954) 999
- 17) C. H. Mitchell et G. F. Rowland, *Acta Mét.* **2** (1954) 559
- 18) R. W. Cahn, UKAEA, Harwell (UK), Rapport AERE MR/744 (1951)
- 19) A. N. Holden, *Physical Metallurgy of uranium* (Addison-Wesley Publishing Co, Reading, 1958)
- 20) D. Calais, Mme Siménel et P. Lacombe, *J. Mat. Nucl.* **1** (1959) 325
- 21) J. Bernard et G. Coureau, Saclay (France), Rapport CEA N° 193
- 22) G. Friedel, *Bull. Soc. Franç. de Minéralogie* **43** (1920) 246
- 23) M. Mouflard, Thèse Paris (1952)
- 24) P. Lehr, Thèse Paris (1957)
- 25) T. J. Tiedema, W. May et W. G. Burgers, *Acta Cryst.* **2** (1949) 151
- 26) P. Lacombe et A. Berghezan, *Physica* **15** (1949) 161
- 27) G. S. Bowles et W. Boas, *J. Inst. of Metals* **74** (1948) 501
- 28) L. T. Lloyd, Argonne National Laboratory (USA), Rapport ANL, 6001 (1959)
- 29) D. Calais, Thèse Paris (1960).
- 30) L. T. Lloyd, *J. Mat. Nucl.* **2** (1960) 141