



Deuxième Conférence internationale  
des Nations Unies  
sur l'utilisation de l'énergie atomique  
à des fins pacifiques

A/CONF.15/P/1160  
FRANCE  
16 mai 1958

ORIGINAL: FRANÇAIS

Confidentiel jusqu'à la diffusion officielle pendant la Conférence.

DIFFUSION DE L'URANIUM AVEC QUELQUES METAUX DE TRANSITION

Y. ADDA<sup>\*par</sup> et J. PHILIBERT<sup>\*\*</sup>

L'étude des phénomènes de diffusion dans l'uranium et ses alliages présente un intérêt certain du point de vue technologique, qu'il s'agisse des problèmes de gainage, de l'élimination des produits de fission à l'état solide, ou encore de la cinétique de l'homogénéisation et de la décomposition des alliages utilisés comme combustibles nucléaires...

Cependant, en dépit de cet intérêt évident (réf.1), les études publiées dans ce domaine ne sont pas très nombreuses, et portent quasi exclusivement sur le système uranium-zirconium. Et encore ces travaux ne sont-ils limités à une seule concentration en Zr (réf.2), ou se sont-ils bornés à mesurer micrographiquement des pénétrations (réf.3). Une telle étude de la grandeur des pénétrations, si elle fournit des résultats intéressants du point de vue technologique - ce que nous justifierons plus loin - ne permet que rarement une interprétation physique des phénomènes de diffusion. Ceux-ci interviennent dans un grand nombre de processus étudiés en métallurgie physique, si bien que leur portée théorique est loin d'être négligeable. Leur étude nous mène à une meilleure compréhension des mécanismes du mouvement des atomes dans les métaux.

C'est pourquoi, dans la présente étude, nous nous sommes efforcés de comparer le comportement de divers métaux de transition vis-à-vis de l'uranium en mesurant les caractéristiques de la diffusion intermétallique de ces métaux avec l'uranium. Pour ce travail, nous avons utilisé soit des métaux purs : zirconium, molybdène, titane et niobium, soit des alliages d'uranium : en effet dans le cas du molybdène et du niobium, ces deux métaux ne forment pas avec l'uranium, à haute température, une solution solide continue dans tout le domaine de concentrations. Or, il est intéressant d'étudier la diffusion dans cette solution solide puisque dans tous les cas il s'agit de la même structure cubique centrée (qui est celle de l'uranium  $\alpha$ ). Aussi avons-nous préparé des alliages uranium-niobium et uranium-molybdène à environ 30 atomes % de niobium ou de molybdène, concentrations inférieures à la limite de solubilité de ces deux métaux dans l'uranium aux températures envisagées.

\* Commissariat à l'Energie Atomique (France)

\*\* Institut de Recherches de la Sidérurgie (France)

## **DISCLAIMER**

**This report was prepared as an account of work sponsored by an agency of the United States Government. Neither the United States Government nor any agency Thereof, nor any of their employees, makes any warranty, express or implied, or assumes any legal liability or responsibility for the accuracy, completeness, or usefulness of any information, apparatus, product, or process disclosed, or represents that its use would not infringe privately owned rights. Reference herein to any specific commercial product, process, or service by trade name, trademark, manufacturer, or otherwise does not necessarily constitute or imply its endorsement, recommendation, or favoring by the United States Government or any agency thereof. The views and opinions of authors expressed herein do not necessarily state or reflect those of the United States Government or any agency thereof.**

## **DISCLAIMER**

**Portions of this document may be illegible in electronic image products. Images are produced from the best available original document.**

Après une brève description de nos méthodes expérimentales, nous exposerons nos résultats relatifs aux courbes concentration-pénétration, qui permettent de calculer les coefficients de diffusion et d'établir, dans le domaine polyphasé, le diagramme d'équilibre (dans le système U-Zr par exemple). Nous comparerons ensuite ces divers résultats à l'examen micrographique, aux mesures de microdureté ou à l'autoradiographie. Enfin, dans la dernière partie, nous nous attacherons à l'étude des mécanismes de la diffusion, en étudiant l'effet Kirkendall et en calculant les coefficients intrinsèques de Darken dans les systèmes U-Zr et U-UMo (\*).

## I - TECHNIQUE OPERATOIRE ET METHODES D'ETUDES

Les matériaux utilisés dans notre travail étaient principalement :

- de l'uranium dont les principales impuretés étaient, en ppm :

B	: Cr	: Cu	: Fe	: Mn	: Ni	: Si	: C
0,1-0,2	: 5	: 28	: 36	: 5	: 6	: 100	: 90

- du zirconium préparé par le procédé Kroll ou Van Arkel  
- du titane préparé par le procédé Kroll  
et enfin du molybdène et du niobium titrant 99,95% environ. Les alliages uranium-molybdène et uranium-niobium étaient préparés par fusion à l'arc sous atmosphère d'argon purifié. Ces matériaux sont usinés en plaquettes de 1 cm<sup>2</sup> de surface environ et de 1 à 4 mm d'épaisseur, puis polis mécaniquement et électrolytiquement avec soin. Les couples formés d'une plaquette d'uranium et d'une plaquette de Zr, Ti.. ou d'un alliage sont disposés dans une presse à vis en acier inoxydable (réf. 4) (fig.1) et soumis à une forte pression (3 t/cm<sup>2</sup>) au moyen d'une presse hydraulique. Les poussoirs de la presse à vis sont alors bloqués sous cette pression en vissant un bouchon fileté. Après cette opération, l'ensemble presse à vis et échantillon est retiré de la presse hydraulique et porté pendant 2 heures à une température variant de 450 à 700°C (suivant la température du traitement de diffusion ultérieur) sous un vide de 10<sup>-6</sup> à 10<sup>-5</sup> mm de mercure. Les couples présentent après ce traitement de soudage une diffusion négligeable. Ils sont alors traités thermiquement sans pression extérieure à des températures comprises entre 550 et 1075°C, sous vide poussé, puis trempés à l'eau ou refroidis lentement.

Après traitement de diffusion, les couples sectionnés perpendiculairement au front de diffusion, sont polis mécaniquement aux papiers abrasifs, puis subissent un polissage final qui varie avec le couple considéré :

(\*) Dans tout ce qui suit, les expressions telles que U-Zr désignent des couples formés par les deux métaux U et Zr, tandis que U-UMo est relative à un couple formé de plaquettes d'uranium pur et d'alliage UMo.

- 1) Les couples U-Zr sont, après polissage à la poudre de diamant, polis électrolytiquement quelques secondes dans un bain constitué de 50% d'acide perchlorique et 50% d'anhydride acétique.
- 2) Couples U-Mo et U-UMo. Après polissage de la poudre de diamant (1 à 5  $\mu$ ), ils sont polis 1 à 2 minutes sous 4 à 5 V à une température inférieure à 20° dans le bain suivant :

PO <sub>4</sub> H <sub>3</sub>	100 cc
C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> OH	80 cc
P <sub>2</sub> O <sub>7</sub> H <sub>4</sub>	40 g
H <sub>2</sub> O	50 cc
CrO <sub>3</sub>	2 g

- 3) Couples U-Ti. Après polissage à la poudre de diamant (1 à 5  $\mu$ ), ils sont polis 10 secondes sous 50 V, à une température inférieure à 5°C (agitation énergique) dans le bain suivant :

ClO <sub>4</sub> H	60 cc
butyl-cellosolve	350 cc
alcool méthylique	590 cc

- 4) Couples U-Nb. Les meilleurs résultats sont obtenus par polissage mécanique à la poudre de diamant (1  $\mu$ ).
- 5) Couples U-UNb. Après polissage à la poudre de diamant, les échantillons sont polis électrolytiquement durant 30 secondes à 1 minute, à la température ambiante sous une tension de 5 volts, dans le bain suivant :

PO <sub>4</sub> H <sub>3</sub>	100 cc
alcool éthylique	25 cc
éthylène glycol	25 cc
eau	25 cc

Les couples de diffusion, ainsi polis, sont étudiés au moyen de différentes techniques :

- microanalyse à la sonde électronique de Castaing
- micrographie
- microdureté
- autoradiographie

## II - ETABLISSEMENT DES COURBES CONCENTRATION-PENETRATION à la Micro-sonde électronique.

Nous rappellerons que cet appareil permet de faire des analyses élémentaires ponctuelles (réf. 5 et 6) (diamètre de la région analysée égal à 1,5  $\mu$ ) à  $\pm 1\%$  près, en étudiant le spectre X émis par l'échantillon bombardé par un faisceau d'électrons focalisé au moyen de 2 lentilles électromagnétiques. De plus un microscope permet d'observer l'échantillon à un grossissement d'environ 500 durant l'analyse elle-même. Nous avons opéré, dans le système U-Zr avec la raie K <sub>$\alpha$ 1</sub> du

du zirconium et  $L_{\alpha 1}$  ou  $L_{\beta 1}$  de l'uranium,  
- dans le système U-Mo, avec la raie  $L_{\alpha 1}$  de l'uranium exclusivement,  
les raies  $K_{\alpha}$  du Mo et  $L_{\beta}$  de l'uranium étant en partie superposées  
- dans le système U-Ti, avec la raie  $L_{\alpha 1}$  de l'uranium et  $K_{\alpha 1}$  du Ti.  
Les concentrations sont mesurées en fonction de la distance à l'interface d'origine repéré par quelques particules d'oxyde ou des fils de tungstène de quelques microns de diamètre. Les courbes concentration-pénétration obtenues sont de 2 types suivant qu'elles sont relatives à des couples ayant diffusé dans :

- des domaines monophasés (fig. 2, 3, 4)
- des domaines polyphasés (fig. 5, 6, 7)

1°) Diffusion en phase homogène  $\sigma$  cubique centrée

Les courbes obtenues de 900 à 1075°C pour le couple U-Zr, de 800 à 1075°C pour le couple U-UMo et de 950 à 1075°C pour le couple U-Ti sont caractéristiques d'une diffusion en phase unique.

TABLEAU I - Diffusion uranium-zirconium

:Conc.at. : :% en U :	D (cm <sup>2</sup> sec. <sup>-1</sup> )				:Q Kcal/ :at.g :	: D <sub>0</sub> : :cm <sup>2</sup> sec <sup>-1</sup> :
	: 950° :	: 1000° :	: 1040° :	: 1075° :		
: 5 :	: 5.10 <sup>-10</sup> :	: 8,0.10 <sup>-10</sup> :	: 1,36.10 <sup>-9</sup> :	: 2,2.10 <sup>-9</sup> :	: 47 :	: 8,7.10 <sup>-2</sup> :
: 10 :	: 3,5.10 <sup>-10</sup> :	: 6,2.10 <sup>-10</sup> :	: 9,2.10 <sup>-10</sup> :	: 1,6.10 <sup>-9</sup> :	: 41 :	: 7,8.10 <sup>-8</sup> :
: 20 :	: 2,3.10 <sup>-10</sup> :	: 4,3.10 <sup>-10</sup> :	: 5,8.10 <sup>-10</sup> :	: 8,2.10 <sup>-10</sup> :	: 34,3 :	: 3,2.10 <sup>-4</sup> :
: 30 :	: 2,5.10 <sup>-10</sup> :	: 4,9.10 <sup>-10</sup> :	: 6,2.10 <sup>-10</sup> :	: 8,0.10 <sup>-10</sup> :	: 29,7 :	: 5,5.10 <sup>-5</sup> :
: 40 :	: 3,0.10 <sup>-10</sup> :	: 6,0.10 <sup>-10</sup> :	: 7,4.10 <sup>-10</sup> :	: 8,8.10 <sup>-10</sup> :	: 29,7 :	: 6,3.10 <sup>-5</sup> :
: 50 :	: 3,7.10 <sup>-10</sup> :	: 6,4.10 <sup>-10</sup> :	: 9,2.10 <sup>-10</sup> :	: 1,06.10 <sup>-9</sup> :	: 29,7 :	: 8.10 <sup>-5</sup> :
: 60 :	: 4,6.10 <sup>-10</sup> :	: 8,2.10 <sup>-10</sup> :	: 1,13.10 <sup>-9</sup> :	: 1,38.10 <sup>-9</sup> :	: 27,4 :	: 4.10 <sup>-5</sup> :
: 70 :	: 6,6.10 <sup>-10</sup> :	: 1,05.10 <sup>-9</sup> :	: 1,54.10 <sup>-9</sup> :	: 1,8.10 <sup>-9</sup> :	: 26,3 :	: 3,5.10 <sup>-5</sup> :
: 80 :	: 1,02.10 <sup>-9</sup> :	: 1,62.10 <sup>-9</sup> :	: 2,3.10 <sup>-9</sup> :	: 3,1.10 <sup>-9</sup> :	: 28,6 :	: 1,3.10 <sup>-4</sup> :
: 90 :	: 1,76.10 <sup>-9</sup> :	: 3,2.10 <sup>-9</sup> :	: 4,65.10 <sup>-9</sup> :	: 5,9.10 <sup>-9</sup> :	: 32 :	: 9,5.10 <sup>-4</sup> :
: :	: :	: :	: :	: :	: :	: :

A partir des courbes ainsi établies, nous avons calculé les coefficients de diffusion, par la méthode de Matano (réf.7), pour chaque concentration (fig. 8, 9, 10). Comme on peut le remarquer sur ces figures, les coefficients de diffusion D varient toujours fortement avec la concentration. En particulier dans les systèmes U-Zr et U-Ti les courbes représentant les variations de D avec la concentration affectent la forme typique d'un U ; dans le système U-UMo, du fait du domaine de concentration restreint, elles sont limitées à une branche d'U.

Dans les systèmes pour lesquels l'étude est suffisamment complète (U-Zr et U-UMo), nous avons pour chaque concentration tracé les courbes :

$$\log D = \frac{Q}{T}$$

T étant la température absolue. Ces courbes étant des droites, nous avons pu déterminer l'énergie d'activation Q (fig. 11, 12) et le facteur de fréquence D<sub>0</sub> correspondant à chaque concentration (réf. 4 et 8) (tableaux I et II).

TABLEAU II - Diffusion uranium-alliage uranium-molybdène

: Conc.at : : N <sub>u</sub>	D cm <sup>2</sup> sec. <sup>-1</sup>				: Q : : Kcal/ : at.g	: D <sub>0</sub> : : cm <sup>2</sup> sec. <sup>-1</sup>
	850°C	950°C	1000°C	1050°C		
: 0,74	: 8,9.10 <sup>-11</sup>	: 2,6.10 <sup>-10</sup>	: 5,5.10 <sup>-10</sup>	: 8,6.10 <sup>-10</sup>	: 34	: 2,1.10 <sup>-4</sup>
: 0,76	: 8,3.10 <sup>-11</sup>	: 2,6.10 <sup>-10</sup>	: 6.10 <sup>-10</sup>	: 1,1.10 <sup>-9</sup>	: 38,5	: 4,5.10 <sup>-4</sup>
: 0,80	: 9,9.10 <sup>-11</sup>	: 3.10 <sup>-10</sup>	: 1,1.10 <sup>-9</sup>	: 1,4.10 <sup>-9</sup>	: 39,4	: 3.10 <sup>-3</sup>
: 0,84	: 1,3.10 <sup>-10</sup>	: 4,8.10 <sup>-10</sup>	: 1,3.10 <sup>-9</sup>	: 2,9.10 <sup>-9</sup>	: 45,7	: 9,6.10 <sup>-2</sup>
: 0,88	: 2.10 <sup>-10</sup>	: 8,9.10 <sup>-10</sup>	: 2,3.10 <sup>-9</sup>	: 7,1.10 <sup>-9</sup>	: 52,2	: 3,2
: 0,90	: 2,6.10 <sup>-10</sup>	: 1,3.10 <sup>-9</sup>	: 3,2.10 <sup>-9</sup>	: 1,5.10 <sup>-8</sup>	: 56,8	: 28
: 0,92	: 4.10 <sup>-10</sup>	: 2.10 <sup>-9</sup>	: 5,7.10 <sup>-9</sup>	: 1,7.10 <sup>-8</sup>	: 55	: 16
: 0,94	: 6,9.10 <sup>-10</sup>	: 2,8.10 <sup>-9</sup>	: 6,9.10 <sup>-9</sup>	: 1,7.10 <sup>-8</sup>	: 53	: 20
: 0,96	: 6,2.10 <sup>-10</sup>	: 4.10 <sup>-9</sup>	: 7,4.10 <sup>-9</sup>	: 1,5.10 <sup>-8</sup>	: 45,8	: 5,8.10 <sup>-1</sup>
: 0,98	: 8,3.10 <sup>-10</sup>	: 4,8.10 <sup>-9</sup>	: 1,2.10 <sup>-8</sup>	: 1,7.10 <sup>-8</sup>	: 47,5	: 2,2
:	:	:	:	:	:	:
:	:	:	:	:	:	:
:	:	:	:	:	:	:
:	:	:	:	:	:	:
:	:	:	:	:	:	:
:	:	:	:	:	:	:
:	:	:	:	:	:	:
:	:	:	:	:	:	:
:	:	:	:	:	:	:

2°) Diffusion en système polyphasé

Lorsque l'on étudie la diffusion de deux métaux A et B, on observe généralement, sur une section perpendiculaire au front de diffusion, des bandes parallèles, correspondant à une série de phases α, β ... La courbe concentration-pénétration présente alors une discontinuité à chaque limite de phase.

Les valeurs de la concentration, en cette limite, correspondent à une section isotherme des courbes du diagramme d'équilibre (réf.9). Malgré la grande généralité du phénomène de diffusion en système polyphasé, peu de travaux ont été publiés (réf. 10 à 13). Ceci est dû à la difficulté expérimentale que présente l'établissement de ces courbes et à la complexité de l'interprétation des résultats. La Microsonde électronique, grâce à son grand pouvoir de résolution permet d'effectuer de telles déterminations expérimentales dans les meilleures conditions ; en particulier, il est possible de mesurer les concentrations très près des limites de phases. C'est seulement dans ces conditions que l'on pourra, d'ailleurs, s'assurer que les conditions d'équilibre sont bien remplies (réf.9).

On peut alors calculer les coefficients de diffusion par la méthode de Matano (réf.10), ou par la méthode de Hall (réf.14), par exemple. De telles méthodes nous ont permis de calculer les coefficients de diffusion à basse température (de 600 à 850°C) dans le système U-Zr et de mettre en évidence certaines anomalies caractérisées par une augmentation considérable du coefficient de diffusion au voisinage des limites de phase (fig. 13).

La mesure des concentrations aux limites de phases, nous a permis - les conditions d'équilibre étant bien réalisées - d'établir, par sections isothermes, une grande partie du diagramme d'équilibre U-Zr. La figure 14 montre l'importance de la pureté du zirconium pour la détermination des limites du domaine  $\sigma$ .

### III - ETUDE MICROGRAPHIQUE ET MICROSCLEROMETRIQUE

#### A - Aspect de la zone de diffusion

D'une manière générale, la zone de diffusion est très régulière quelles que soient la température et la durée de l'essai, que la diffusion ait lieu en domaine monophasé ou polyphasé. Dans les systèmes UZr, UMo, UTi, UNb, la diffusion semble être exclusivement "en volume" au-dessus de 650°C, elle est alors parfaitement frontale (micrographies 1 à 7). Au-dessous de cette température on peut observer, dans les couples U-Zr et U-Ti, une diffusion intergranulaire du Zr et du Ti dans l'uranium (micrographies 8, 9, 10). Dans le cas du Zr, le Microanalyseur à sonde électronique nous a permis de mettre en évidence un net enrichissement en zirconium le long des joints de grain de l'uranium.

Nous ne pouvons donner actuellement que peu de précision sur les structures des différentes phases formées, leur étude aux rayons X étant actuellement en cours. Toutefois, lorsque les échantillons sont trempés, une zone peu contrastée sur les micrographies semble être la phase  $\sigma$  (cubique centrée) (micrographie 11).

D'autres zones, parallèles à l'interface de soudure et présentant des cristallisations caractéristiques, se différencient nettement des métaux purs : cristallisation très fine ou aciculaire par exemple. Ces différentes régions, provoquées par la décomposition de la solution  $\sigma$  au cours du refroidissement, présentent généralement, à leurs limites, une concentration bien déterminée, comme nous l'avons vérifié à la sonde électronique. Il est donc d'un intérêt pratique certain d'étudier la cinétique de croissance de ces différentes régions.

#### B - Mesure des pénétrations

Nous avons étudié la cinétique de croissance de zones que nous avons appelées "A", "B", "C", "D". Une étude rigoureuse des pénétrations exige que celles-ci soient mesurées par rapport à un interface fixe. Par raison de commodité, les mesures sont effectuées par rapport à l'interface initial repéré par des fils de tungstène ; elles sont corrigées de la valeur des déplacements de ce dernier, déplacements qui ont été mesurés comme nous le verrons plus bas à pro-



pos de l'étude de l'effet Kirkendall.

On constate que les zones ainsi définies ont une épaisseur sensiblement proportionnelle à la racine carrée de la durée de diffusion :

$$x = P \sqrt{t} \quad (I)$$

P = coefficient de pénétration. En mesurant les pénétrations à diverses températures, on vérifie que le logarithme de P varie bien linéairement avec l'inverse de la température absolue :

$$P = P_0 \exp(-Q_p/RT) \quad (II)$$

On peut alors caractériser chaque zone étudiée par son énergie d'activation  $Q_p$  correspondante. Ces valeurs de  $Q_p$  et  $P_0$  peuvent être rattachées au coefficient de diffusion

$$D = D_0 \exp(-Q/RT) \quad (III)$$

En effet, si l'on suppose que D ne varie pas avec la concentration, la solution de l'équation de diffusion (réf. 15) est alors :

$$c = c_0/2 \left[ 1 - 2/\pi^{1/2} \int_0^{x/2(2t)^{1/2}} e^{-\omega^2} d\omega \right] \quad (IV)$$

C, étant la concentration existant à l'abscisse x après une durée de diffusion t,  $C_0$  la concentration initiale, et  $\omega$  une variable d'intégration. Si D est constant, les limites d'intégration le sont aussi, ainsi d'ailleurs que tout le second membre de l'équation IV; dans ces conditions, on peut écrire :

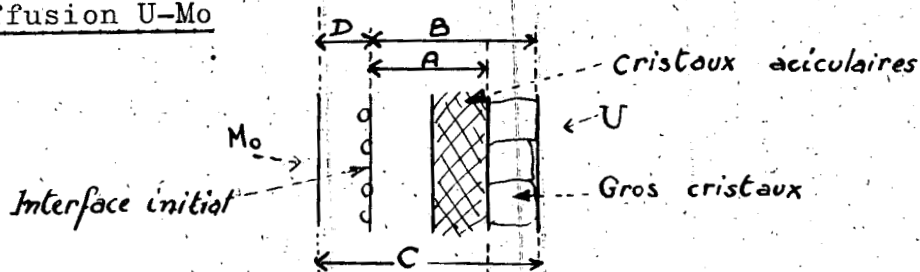
$$x = K (Dt)^{1/2} \quad (V)$$

En combinant les différentes équations (I à V), il vient)

$$\begin{aligned} P_0 &= K (D_0)^{1/2} \\ Q_p &= Q/2 \end{aligned} \quad (VI)$$

Dans tout ce qui suit, P est exprimé en cm.heures<sup>-1/2</sup>

1° - Diffusion U-Mo



Comme nous l'avons indiqué précédemment, on peut repérer sur les micrographies, des zones caractérisées par une cristallisation aciculaire, par des gros cristaux... nous les avons appelées A, B, C, D (micrographie 12). Nous avons vérifié par des analyses à la Microsonde

électronique, que la concentration à la limite de ces zones était constante ; sa valeur est égale à :

97 at.% d'U  $\pm$  0,5% pour la limite de la zone A  
 99 at.% d'U  $\pm$  0,5% pour la limite de la zone B  
 2 at.% d'U  $\pm$  1% pour la limite de la zone D

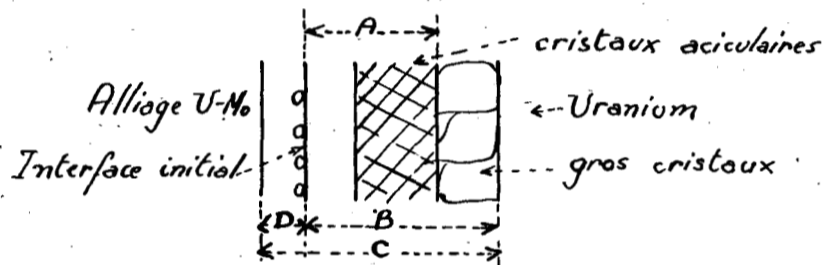
Les pénétrations - mesurées par rapport à l'interface fixe, comme on l'a vu plus haut - correspondant aux zones A, B ... varient proportionnellement à la racine carrée du temps (fig. 15 à 18). La variation de log P en fonction de 1/T étant linéaire (fig.19), on peut écrire les pénétrations sous la forme :

$$P = P_0 \exp \left( - Q_p / RT \right)$$

P = 2,9 exp (-15.000/RT)	zone A
P = 50 exp (-21.000/RT)	zone B
P = 1,2.10 <sup>2</sup> exp (-23.000/RT)	zone C
P = 8,8.10 <sup>4</sup> exp (36.700/RT)	zone D

2° - Diffusion U-UMo

Comme dans le cas précédent, nous avons désigné par "A", "B", "C", "D", les zones de diffusion caractéristiques.



Les concentrations en U aux limites de ces zones sont égales à :

97 at.% d'U  $\pm$  0,5% pour la limite de la zone A  
 99 at.% d'U  $\pm$  0,5% pour la limite de la zone B  
 82 at.% d'U  $\pm$  5% pour la limite de la zone C

L'épaisseur x des différentes zones varie linéairement avec la racine carrée du temps de diffusion t (fig. 20 à 23) ; et la variation linéaire de log P en fonction de l'inverse de la température absolue (fig. 24) permet d'écrire les équations :

zone A	P = 43,7 exp (-21.500/RT)
zone B	P = 19 exp (-18.800/RT)
zone C	P = 20 exp (-18.300/RT)
zone D	P = 0,83 exp (-16.000/RT)

Comparons les énergies d'activation de diffusion, déterminées d'une part au moyen de la micrographie en supposant D constant, d'autre part, grâce à la méthode de Matano, par extrapolation de la courbe :

$Q = f(c) :$

	: Q (microgra- : phie) Kcal/ : at.g	: Q (Matano) : Kcal/at.g
: Zone A (97% ± 0,5% at. d'U )	: 43	: 46
: Zone B (99% ± 0,5% at. d'U)	: 37,6	: 42
: Zone C (82% ± 5% at. d'U)	: 32	: 35 à 45

3° - Diffusion U-Ti

La technique opératoire est la même que précédemment. A titre d'exemple nous donnons (fig. 25 et micrographie 13) les variations de la largeur totale de la zone de diffusion en fonction de  $\sqrt{t}$  et pour des températures allant de 650 à 950°C. Portant  $\log x/\sqrt{t}$  en fonction de  $1/T$  on obtient ici trois segments de droite, correspondant de gauche à droite respectivement aux domaines de température où le diagramme montre l'existence de trois, deux et une seule phases (fig. 26)

4° - Diffusion U-Nb

Là encore, nous avons obtenu des courbes tout à fait analogues, pour des températures comprises entre 750° et 1075°, en étudiant la variation de la largeur totale de la zone de diffusion en fonction de  $\sqrt{t}$  (fig. 27 et micrographie 14). La courbe  $\log P$  en fonction de  $1/T$  se compose de deux segments de droite, correspondant à un domaine cubique centré homogène  $\sigma$  et un domaine avec démixion en deux solutions  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  (fig. 28).

5° - Diffusion U-UNb

Dans ce dernier cas, nous avons tracé les courbes de pénétration  $x = P \sqrt{t}$  correspondant d'une part, à toute la zone de diffusion (fig. 29), et, d'autre part, à titre d'exemple, à une bande comprise entre l'interface fixe et la limite extrême (côté uranium) de la région caractérisée par une cristallisation aciculaire (fig. 30). Les courbes représentant les variations de  $\log P$  en fonction de  $1/T$  sont des droites (fig. 31).

C - Mesures de microdureté

On sait que dans la zone de diffusion, les variations de concentration s'accompagnent généralement de variations de microdureté (réf. 16 et 17) (micrographie 15). Dans les différents types de couples étudiés ici, on observe des variations importantes de la microdureté Vickers, mesurée le long d'une direction perpendiculaire au front de diffusion. Les courbes microdureté-pénétration n'ont généralement pas une forme simple mais présentent plusieurs extremums.



TABLEAU IV - Etalonnage de la microdureté Vickers pour la diffusion U-UMo (échantillons trempés à l'eau).

:Conc. :Dureté	:Conc. :Dureté	:Conc. :Dureté	:Conc. :Dureté	:Conc. :Dureté	:Conc. :Dureté	:Conc. :Dureté	
:at.U % :Vickers	:at.U % :Vickers	:at.U % :Vickers	:at.U % :Vickers	:at.U % :Vickers	:at.U % :Vickers	:at.U % :Vickers	
: 70 : 370	: 78 : 305	: 86 : 200	: 94 : 370	: 71 : 360	: 79 : 290	: 87 : 180	: 95 : 405
: 72 : 355	: 80 : 285	: 88 : <170	: 96 : > 425	: 73 : 350	: 81 : 270	: 89 : 180	: 97 : > 425
: 74 : 335	: 82 : 260	: 90 : 210	: 98 : 400	: 75 : 330	: 83 : 250	: 91 : 270	: 99 : 370
: 76 : 325	: 84 : 240	: 92 : 310	: 100 : 200-240	: 77 : 315	: 85 : 220	: 93 : 345	:

IV - ETUDES AUTORADIOGRAPHIQUES

Le comptage des trajectoires individuelles des particules  $\alpha$  (observées sur une plaque nucléaire) semble offrir une méthode simple d'autoradiographie quantitative, permettant de mesurer les variations de la concentration d'uranium dans la zone de diffusion. Cette méthode a été appliquée en particulier au couple U-Zr (réf. 18).

L'étude de l'émission  $\alpha$  en couche épaisse d'un certain nombre d'alliages U-Zr nous a permis d'établir une relation expérimentale entre cette émission et la concentration en uranium, que nous avons utilisée pour établir les courbes concentration-pénétration. Pratiquement, on applique pendant un temps court contre la face étudiée (polie au diamant) une plaque nucléaire Ilford C2 50  $\mu$ , et on compte la densité de traces  $\alpha$  dans des bandes larges de 100  $\mu$  parallèles au front de diffusion. Les résultats (fig. 36) montrent que les mesures autoradiographiques sont dans ce cas en bon accord avec les analyses effectuées par la Microsonde électronique (écart moyen de 2%).

V - ETUDE DE L'EFFET KIRKENDALL EN PHASE  $\gamma$  CUBIQUE CENTREE

Comme on peut l'observer sur certaines des micrographies présentées dans ce mémoire (voir en particulier la micrographie 2), on observe des alignements de pores dans la zone de diffusion. Ceux-ci sont fréquents à toute température sauf dans les couples U-Ti et U-Nb où l'on n'en observe que rarement. La présence de cette porosité nous avait suggéré l'existence d'un effet Kirkendall. Après l'avoir mis en évidence dans le couple U-Zr (réf. 19), nous l'avons étudié systématiquement dans les systèmes U-Zr, U-Mo, U-UMo, U-Ti et U-UNb.

Rappelons que l'on peut mettre en évidence l'effet Kirkendall, en disposant une mince feuille de tungstène (10 à 20  $\mu$ ) entre les deux plaquettes qui forment le couple, et en s'arrangeant pour que cette feuille n'occulte qu'une partie de la section du couple (Da Silva et Mehl - réf. 20). Les extrémités de cette feuille jouent le rôle de repères inertes entraînés par le flux d'atomes qui se produit dans la zone de diffusion. L'extrémité de la feuille se courbe donc, et cette courbure peut être fort importante.

Nous avons pu mettre en évidence cette courbure de la feuille de tungstène dans tous les systèmes étudiés. C'est ce que montrent les micrographies 16, 17, 18, relatives aux couples U-Zr, U-UMo et U-UNb.

### 1°) Formation de pores au cours de la diffusion

Comme nous l'avons indiqué plus haut, on observe des pores dans les couples U-Zr, U-Mo et U-UMo, et rarement dans les autres (micrographies 19 à 27). On attribue généralement ces pores à la précipitation de lacunes en sursaturation - cette sursaturation étant due à la différence de mobilité des deux espèces d'atomes qui constituent le couple de diffusion (réf. 21 à 26). L'étude de ces pores en fonction des conditions expérimentales conduit aux conclusions suivantes :

a) les pores ne sont pas dus à la trempe : on les observe en effet quelque soit le mode de refroidissement

b) leur forme semble très variable : sphérique, polyédrique ou tout à fait quelconque

c) leur dimension ne varie pas toujours linéairement avec la racine carrée du temps de diffusion

d) leur dimension ne semble pas croître avec la température (réf.

23). En général, les pores formés au-dessus de 1000° sont plus petits et moins nombreux que ceux formés aux températures inférieures.

e) les pores se forment toujours dans la zone de diffusion du côté riche en uranium, dans une région correspondant à une concentration atomique en uranium comprise entre 80 et 90% suivant les couples étudiés.

f) les pores sont toujours bien alignés et situés le long de l'interface initial (ancien interface de soudure). Cependant, dans le cas du couple U-Zr, et aux plus basses températures (<800°), ils occupent une bande plus large, située au-delà de l'interface initial, du côté uranium ; ils peuvent se trouver à des distances supérieures à 50  $\mu$  de cet interface (micrographie 19).

### 2°) Mesure du déplacement de l'interface repéré

La mesure du déplacement d'un interface exige de repérer sa position avant et après diffusion. Dans toutes nos expériences cet interface est l'interface de soudure ; sa position initiale est matérialisée par une mince feuille de tungstène disposée entre les deux plaquettes qui constituent le couple ; d'autre part, sa position après diffusion est repérée par des fils de tungstène de 10  $\mu$  de diamètre (micrographie 28). Après les traitements de diffusion, le déplacement  $x_1$  du plan repéré par les fils est mesuré au microscope à quelques microns près. Pour une même température T de diffusion, on peut vérifier que celui-ci est bien proportionnel à la racine carrée du temps

(fig. 37 à 41). De plus en comparant les droites représentant les variations de  $x_i$  en fonction de  $\sqrt{t}$ , obtenues à diverses températures, on peut s'assurer que le logarithme de  $(x_i/\sqrt{t})$  varie linéairement avec l'inverse de la température absolue. Ecrivant alors :

$$x_i = A_K \sqrt{t} \exp(-Q_K/RT) \quad (VII)$$

les résultats expérimentaux permettent de calculer les coefficients de A et  $Q_K$ .

Les figures 42 à 46 montrent que cette relation est vérifiée avec une très bonne précision dans tous les systèmes que nous avons étudiés. On notera que les déplacements mesurés sont importants puisqu'ils se chiffrent en dizaines ou même centaines de microns pour des durées de diffusion n'excédant pas 100 heures. Les résultats sont groupés dans le tableau V, qui donne les valeurs des coefficients  $A_K$  et  $Q_K$  de l'équation (VII) pour tous les systèmes étudiés, classés dans l'ordre des  $Q_K$  décroissants.

TABLEAU V - Effet Kirkendall - Valeurs numériques des coefficients  $A_K$  et  $Q_K$  de l'équation (VII)

Systeme étudié	$A_K$ (cm, h <sup>-1/2</sup> )	$Q_K$ (Kcal/at. g)	$x_i$ (cm) à 1000°- 48 h.
U-Zr	1,78	16	0,2
U-Ti	0,9	14,6	0,18
U-UNb	0,468	14,2	0,15
U-Mo	0,118	11,4	0,093
U-UMo	0,056	10,3	0,075

#### VI - CALCUL DES COEFFICIENTS DE DIFFUSION INTRINSEQUES

On sait que le coefficient de diffusion mesuré à partir des courbes concentration-pénétration, encore appelé coefficient d'interdiffusion  $D$ , n'exprime que le phénomène global sans traduire les mobilités des atomes diffusants de chaque espèce. Or les expériences d'autodiffusion conduisent à mesurer un coefficient  $D^*_A$  qui traduit la mobilité des atomes A dans le métal pur. On peut caractériser les mobilités de ces atomes dans un alliage du métal A par le coefficient intrinsèque  $D_A$ , que la thermodynamique permet de calculer :

$$D_A = D^*_A \left( 1 + \frac{d \log \gamma}{d \log N_A} \right) \quad (VIII)$$

où  $N_A$  et  $\gamma$  sont la concentration atomique et le coefficient d'activité

de l'élément A. Finalement, Darken (réf.27) a montré que le coefficient d'interdiffusion de l'alliage de concentrations  $N_A$  et  $N_B$  (avec  $N_B = 1 - N_A$ ) s'écrit sous la forme :

$$D = \left[ N_A D_B^* + N_B D_A^* \right] \left[ 1 + \frac{d \log \sigma}{d \log N_A} \right] \quad (IX)$$

ou plus simplement :

$$D = N_A D_B + N_B D_A \quad (X)$$

Connaissant  $D$ , il est possible de calculer  $D_A$  et  $D_B$  grâce à cette relation et à la suivante (seconde relation de Darken)

$$v = (D_A - D_B) (dN_A/dx) \quad (XI)$$

qui relie les coefficients intrinsèques à la vitesse de déplacement  $v$  de l'interface repéré.

Nous avons donc les éléments nécessaires au calcul de  $D_A$  et  $D_B$  ; les  $D$  ont été calculés par la méthode de Matano ; le gradient de concentration  $dN/dx$  dans le plan repéré est connu par les courbes concentration-pénétration ; enfin nos mesures du déplacement de l'interface nous donnent  $v$  :

$$v = x_i / 2 t \quad (XII)$$

Nous avons appliqué cette méthode de calcul aux couples U-Zr et U-UMo. Les résultats sont donnés dans les tableaux VI et VII.

TABLEAU VI - Diffusion U-Zr

Température (°C)	950°	1000°	1040°	1075°
$N_U$	0,875	0,885	0,89	0,905
$N_{Zr}$	0,125	0,115	0,11	0,095
$D_U$	$7,7 \cdot 10^{-9}$	$1,6 \cdot 10^{-8}$	$2,1 \cdot 10^{-8}$	$3,7 \cdot 10^{-8}$
$D_{Zr}$	$6,5 \cdot 10^{-10}$	$1,0 \cdot 10^{-9}$	$2,3 \cdot 10^{-9}$	$2,9 \cdot 10^{-9}$

Dans ces tableaux, on notera que les concentrations atomiques mesurées à l'interface repéré varient légèrement avec la température de diffusion. Dans le système U-Zr, on trouve ainsi :

$$N_U = 0,89 \pm 0,015$$

et dans le système U-UMo :

$$N_U = 0,92 \pm 0,020$$



TABLEAU VII - Diffusion U-UMo

Température	850°	950°	1000°	1050°
$N_U$	0,94	0,94	0,92	0,90
$N_{Mo}$	0,06	0,06	0,08	0,1
$D_U$ (cm <sup>2</sup> sec <sup>-1</sup> )	$3,4 \cdot 10^{-9}$	$1,4 \cdot 10^{-8}$	$1,6 \cdot 10^{-8}$	$3,4 \cdot 10^{-8}$
$D_{Mo}$ (cm <sup>2</sup> sec <sup>-1</sup> )	$5,2 \cdot 10^{-10}$	$2,1 \cdot 10^{-9}$	$5 \cdot 10^{-9}$	$1,3 \cdot 10^{-8}$

Il en résulte que l'on peut calculer l'énergie d'activation correspondant aux coefficients intrinsèques, en négligeant ces variations de concentration. On trouve ainsi des énergies d'activation voisines pour  $D_U$  et  $D_{Zr}$ , à savoir  $Q_U = 36$  Kcal/at.g et  $Q_{Zr} = 40$  Kcal/at.g. Par contre, dans le couple U-UMo, les résultats du calcul sont les suivants :

pour  $D_U$ ,  $Q_U = 33$  Kcal/at.g

pour  $D_{Mo}$ ,  $Q_{Mo} = 47,5$  Kcal/at.g

De ces résultats, il ressort que les énergies d'activation pour la diffusion de l'uranium, sont voisines dans les deux systèmes U-Zr, et U-UMo. Au contraire, en ce qui concerne le Mo ou le Zr, les énergies d'activation correspondantes sont différentes : on trouve pour le molybdène une énergie plus élevée que pour le zirconium.

#### VII - DISCUSSION et CONCLUSION

Au cours des paragraphes précédents, nous nous sommes bornés à exposer l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus dans cette étude. Il nous semble qu'un certain nombre de points méritent quelques commentaires :

##### 1) Comparaison des méthodes expérimentales

On sait que les méthodes d'analyse des échantillons de diffusion sont particulièrement délicates, étant donné que l'étude du phénomène nécessite une analyse à la fois précise et très localisée de la zone de diffusion. La méthode classique de sectionnement sur un tour est assez longue et d'autre part elle nécessite des analyses chimiques des alliages d'uranium, analyses qui ne donnent pas toujours une précision très élevée. Le Microanalyseur à sonde électronique de Castaing semble être l'outil idéal d'analyse des couples de diffusion ; l'analyse peut être effectuée en des points aussi rapprochés qu'on le désire (tous les 10  $\mu$ , les 5  $\mu$  ou même tous les  $\mu$ ), de sorte que l'erreur sur les distances est négligeable. D'autre part la précision sur la mesure des concentrations est de l'ordre de 1% en valeur relative.

Cependant, nous avons recherché si des méthodes plus simples peuvent fournir des informations intéressantes. Parmi ces diverses méthodes, c'est la microdureté qui, après étalonnage, fournit les résultats les plus précis. En particulier, elle a l'avantage sur la micrographie de fournir des courbes couvrant tout le domaine des concentrations.

En outre, nous avons cherché à savoir si les mesures de pénétration que l'on peut effectuer sur les micrographies présentent un sens physique, c'est-à-dire, sont liées à l'énergie d'activation de la diffusion. Nous avons vérifié que c'est bien le cas, si l'on respecte trois conditions :

1. - la diffusion a lieu en phase homogène
2. - la mesure des pénétrations exige de repérer deux limites visibles sur la micrographie. Il est nécessaire que l'une de celles-ci soit fixe durant le phénomène ; dans le cas où on la choisit à l'interface initial, il faut tenir compte de l'effet Kirkendall pour se rapporter à un plan fixe de l'échantillon.
3. - enfin il faut s'assurer que l'autre limite choisie correspond toujours à une même concentration.

Nous avons essayé de rapporter les énergies d'activation données par les mesures de pénétration à l'énergie d'activation de la diffusion. On obtient, dans certains cas, cette dernière avec une assez bonne approximation si l'on néglige la variation du coefficient de diffusion avec la concentration ; dans l'exemple du couple U-UMo, on trouve ainsi pour la zone appelée A et correspondant à 97 at.% d'uranium, 43 kcal/at.g par la méthode micrographique et 46 kcal/at.g par la méthode de Matano.

## 2) Diffusion polyphasée

Cette diffusion polyphasée se rencontre dans tous les cas où il n'y a pas solution solide continue entre les deux métaux ou alliages constituant le couple. C'est ce qui se passe aux températures inférieures à 865° pour le système U-Zr, ou inférieures à 925° pour U-Ti ; au contraire, avec le couple U-Mo, on n'a jamais de diffusion monophasée si l'on part des deux métaux purs.

Le phénomène de diffusion polyphasée apparaît sur les micrographies de façon caractéristique : les limites entre les phases apparaissent de manière très accentuée et rigoureusement rectilignes. Au contraire les limites dues à des décompositions variées au cours de la trempe ou du refroidissement sont moins "tranchées". Ce phénomène se traduit également sur les courbes représentant le logarithme de la pénétration en fonction de  $1/T$  par des changements brusques de la pente, qui délimitent des domaines de température mono, bi, triphasé, etc... Les courbes concentration-pénétration présentent alors des discontinuités à chaque changement de phases. Au voisinage de certaines limites on observe des anomalies du coefficient de diffusion. C'est ainsi que dans le couple U-Zr à 650° (fig. 13), la courbe concentration-pénétration dans la phase  $\sigma$  présente une pente très faible au voisinage de l'interface  $U_{\alpha}$  / solution  $\sigma$ . Il lui correspond un coefficient de diffusion croissant très rapidement au voisinage de cet interface, au point de dépasser la valeur de ce même coefficient à

700° pour la même concentration. Bien que le phénomène soit assez complexe, on peut tenter de l'expliquer de la façon suivante :

L'interface correspond à un changement de phases, de structures très différentes (cubique centrée et orthorhombique), si bien qu'au cours de sa progression du côté uranium durant la diffusion, il laisserait derrière lui, dans la solution  $\alpha$  qui vient de se former, un certain nombre de défauts réticulaires. Ceux-ci, aux basses températures, ne s'élimineraient que lentement, de sorte que toute une zone voisine de l'interface contiendrait une concentration élevée de ces défauts, ce qui abaisserait l'énergie d'activation nécessaire aux sauts atomiques, d'où un coefficient de diffusion accru.

Enfin, comme on l'a vu plus haut, la mesure des concentrations aux limites de phases permet d'établir le diagramme d'équilibre, les conditions d'équilibre étant bien remplies, comme nous l'avons vérifié au cours de mesures effectuées avec des durées de diffusion croissantes (réf. 9). Cette méthode est intéressante, car elle évite de passer par la préparation d'alliages, et ainsi d'être sûr de la pureté des métaux utilisés.

### 3) Effet Kirkendall

Nos recherches en domaine polyphasé ne se sont pas limitées à des mesures des concentrations ou du coefficient de diffusion mais se sont étendues à l'étude de l'effet Kirkendall. Des travaux récents ont en effet montré que l'importance de celui-ci pouvait être accru par la présence de limites de phases. Aussi avons-nous comparé les déplacements de l'interface repéré dans les couples U-Mo (biphasé) et U-UMo (monophasé) : les valeurs de  $x_i$  dans le tableau V montrent que l'augmentation due à la présence d'une <sup>i</sup> limite de phase est d'environ 15% - ce qui est bien inférieur à l'effet auquel on pourrait s'attendre d'après les résultats de Bolk (réf. 13) dans le système Pt-Au.

Dans tous les systèmes étudiés, les déplacements de l'interface repéré peuvent s'exprimer par une relation de la forme :

$$x_i = A_K \sqrt{t} \exp(-Q_K/RT)$$

Le tableau V, où sont portées les valeurs de  $A_K$ ,  $Q_K$  et  $x_i$  montre que le déplacement  $x_i$  croît comme  $A_K$ . Les cinq systèmes étudiés se classent de façon identique par leurs valeurs des constantes  $A_K$  et  $Q_K$  ; cependant l'interprétation physique de ces dernières ne nous semble pas simple.

### 4) Coefficients de diffusion intrinsèques

Comme nous l'avons souligné précédemment, les coefficients de diffusion intrinsèques permettent de comparer les mobilités des atomes qui participent à la diffusion. Par exemple, on observe qu'à 1000° pour les concentrations comprises entre 90 et 95 at.% d'uranium, la mobilité des atomes de molybdène dans l'alliage UMo est supérieure à la mobilité des atomes de zirconium dans l'alliage UZr, alors que la mobilité de l'uranium est la même dans les deux cas ; c'est ce qui ressort des valeurs suivantes (en  $\text{cm}^2 \text{sec.}^{-1}$ ) :

$$D_U^{UMo} = 1,6 \cdot 10^{-8} \quad \text{et} \quad D_{Mo}^{UMo} = 4,8 \cdot 10^{-9}$$

$$D_U^{UZr} = 1,6 \cdot 10^{-8} \quad \text{et} \quad D_{Zr}^{UZr} = 1,0 \cdot 10^{-9}$$

On remarque encore que le coefficient  $D_U$  est toujours supérieur au coefficient de diffusion intrinsèque de l'autre métal, résultat auquel on devait s'attendre d'après le sens de l'effet Kirkendall. D'autre part, les énergies d'activation pour  $D_U$  sont voisines dans les divers systèmes :

$$Q_U^{UZr} = 36 \text{ kcal/at.g} \quad \text{et} \quad Q_{Mo}^{UMo} = 33 \text{ kcal/at.g}$$

alors que pour  $D_{Mo}$  et  $D_{Zr}$  elles sont différentes :

$$Q_{Zr}^{UZr} = 40 \text{ kcal/at.g} \quad \text{et} \quad Q_{Mo}^{UMo} = 47,5 \text{ kcal/at.g}$$

Ces résultats semblent confirmés par l'étude identique en cours dans le système U-Ti.

Pour terminer, nous voudrions insister sur le fait que l'effet Kirkendall a été étudié en phase cubique centrée dans tous les systèmes envisagés ici (U-Zr, U-Ti, U-Nb et U-Mo). Nos résultats contribuent donc à montrer la généralité de ce phénomène dans les alliages de structure cubique centrée - et par conséquent, apportent des arguments en faveur d'un mécanisme de diffusion par échanges lacune-atome dans ces structures.

-----

- REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES -

- 1 - A.B. Mc Intosh, K. Q. Bagley - J. Inst. Metals (1956) 84, 251
- 2 - A.D. Schwoppe, L.R. Jackson cité par Lustman et Kerze dans Metallurgy of Zirconium (1950) p. 455
- 3 - D.R. Mash, B.F. Disselhorst - T.I.S. Oak Ridge - AECD (3701)
- 4 - Y. Adda, J. Philibert - Comptes-rendus -(1956), 242, 3081
- 5 - R. Castaing, J. Descamps - La Recherche Aéronautique (1958) n° 65  
R. Castaing - Thèse (1951) publication ONERA n° 55
- 6 - J. Philibert, C. Crussard - Revue Métallurgie (1956) 53, 461
- 7 - C. Matano - Jap. J. Physics (1933) 8, 109
- 8 - Y. Adda, J. Philibert - Comptes-rendus (1958) 246, 113
- 9 - J. Philibert, Y. Adda - Comptes-rendus (1957) 245, 2507
- 10 - Voir par ex. page 157 et suiv. dans W. Seith et Th. Heumann - Diffusion in Metallen (1955)
- 11 - A.A. Zhukhovitsky, M.E. Janitskaya, A.D. Sotskov - Confér. intern. des radioisotopes (1957) UNESCO/NS/RIC/30
- 12 - H. Bückle et J. Descamps - Revue de Métallurgie (1951) 48, 569
- 13 - A. Bolck - Acta Metallurgica (1958) 6, 59
- 14 - L. Hall - J. Chemical Physics (1953) 21, 87
- 15 - G. Grube, A. Jedele - Zeitschrift für Elektro - vol. 38 (1932) 799

- 16 - H. Bückle, J. Descamps - Comptes-rendus (1950) 230, 752
- 17 - Y. Adda, J. Philibert, H. Faraggi - Revue de Métallurgie (1957) 54, 597
- 18 - H. Faraggi, A. Garin-Bonnet, Y. Adda, J.M. Henry - Comptes-rendus (1956) 243, 1316
- 19 - Y. Adda, J. Philibert, C. Mairy - Comptes-rendus (1956) 243, 1115
- 20 - L.C. Da Silva, R.F. Mehl - Trans. AIME (1951) 191, 155
- 21 - A.D. Le Claire - Progress in Metal Physics (1953) 4, 265
- 22 - H. Bückle, J. Blin - J. Institute Metals (1951-52) 80, 385
- 23 - R.S. Barnes - Proc. Physical Society (1952) 165 B, 512  
Acta Metallurgica (1958) 6
- 24 - R.W. Balluffi, L.L. Seigle - Acta Met. (1955) 3, 170
- 25 - A. Accary - Comptes-rendus (1955) 240, 519
- 26 - Y.E. Geguzin - Doklady Akad Nauk S.S.S.R. (1955) 100, 255
- 27 - L.S. Darken - Trans. AIME (1948) 175, 184

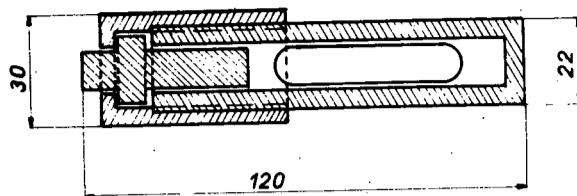


Fig. 1

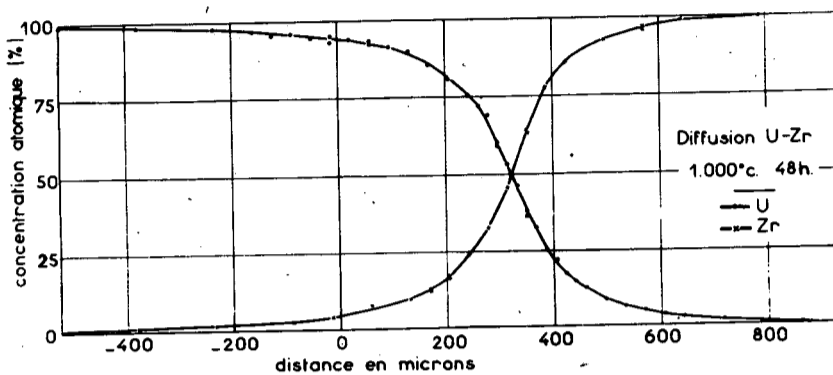


Fig. 2

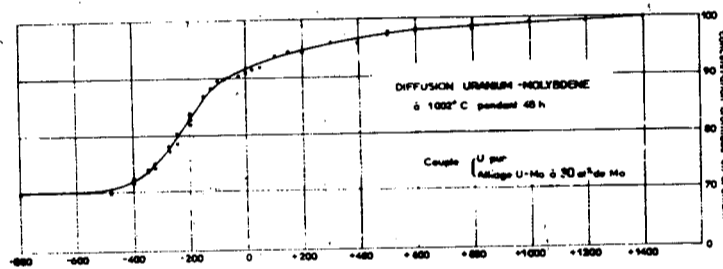


Fig. 3

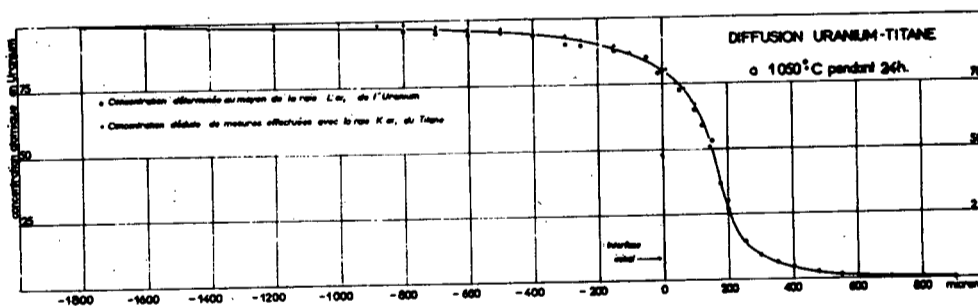


Fig. 4

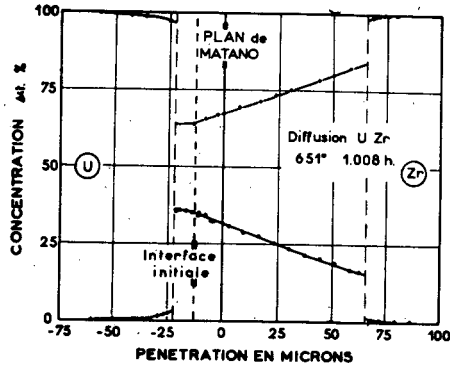
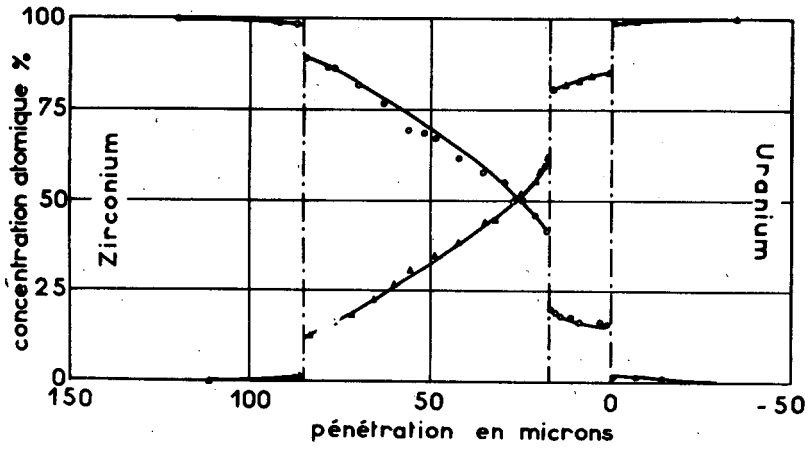


Fig. 5



Diffusion U-Zr : 700°. 142 h.

Fig. 6

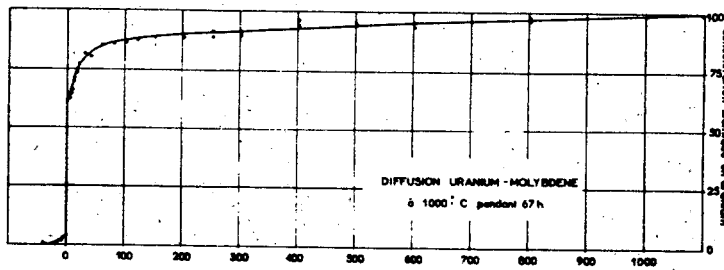


Fig. 7

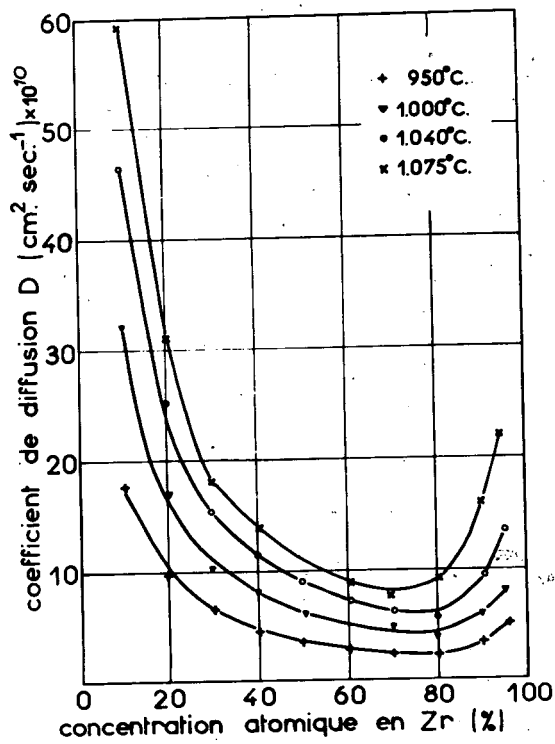


Fig. 8

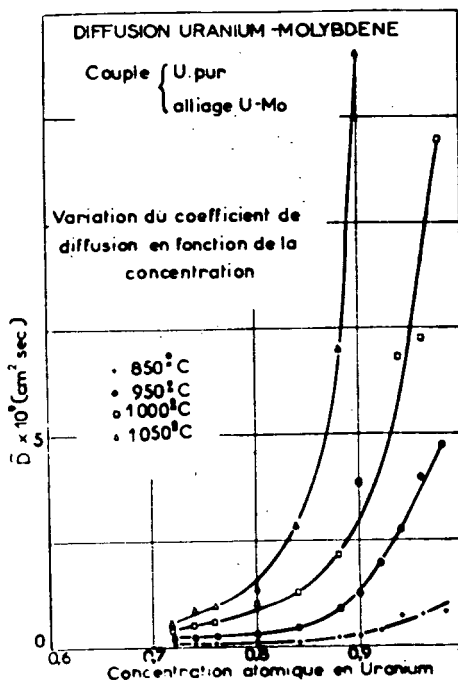


Fig. 9

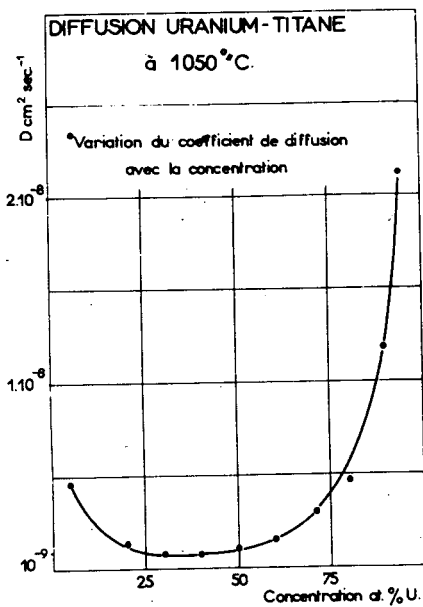
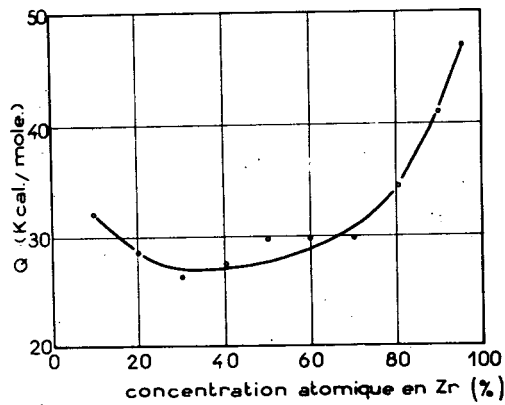


Fig. 10



Variation de l'énergie d'activation avec la concentration dans le couple U-Zr

Fig. 11



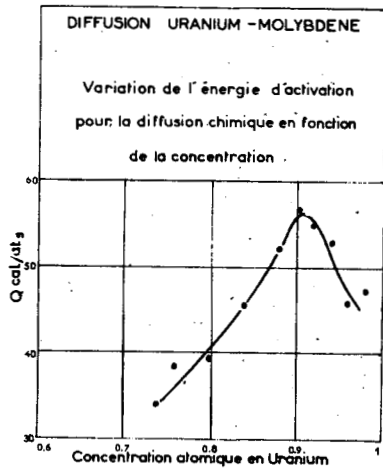


Fig. 12

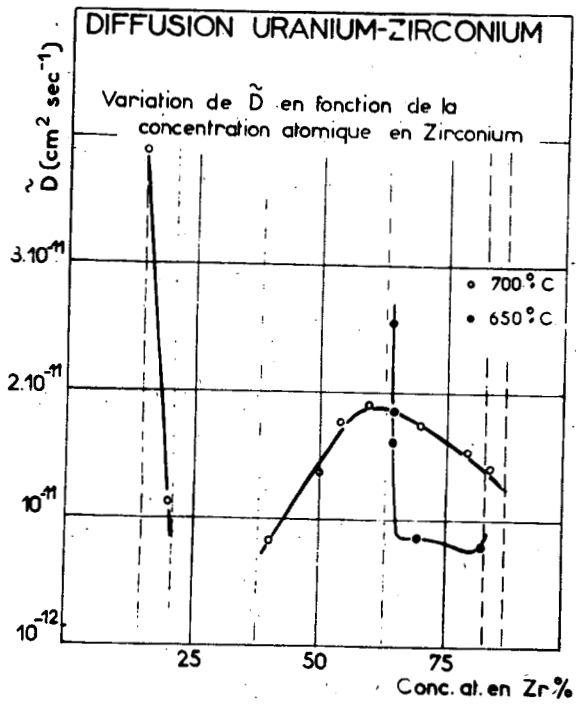


Fig. 13

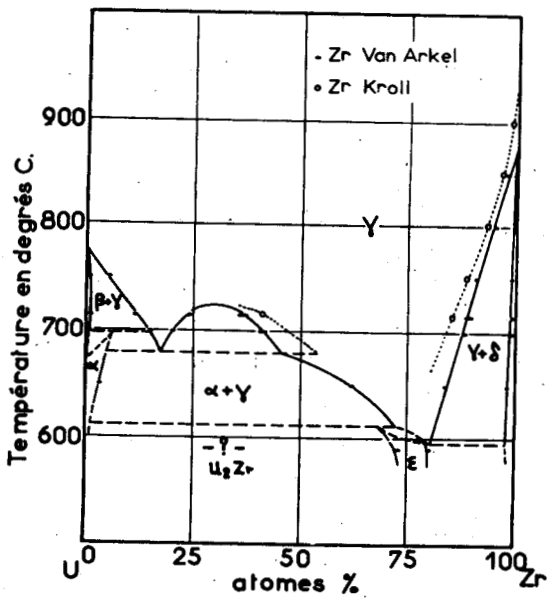


Fig. 14

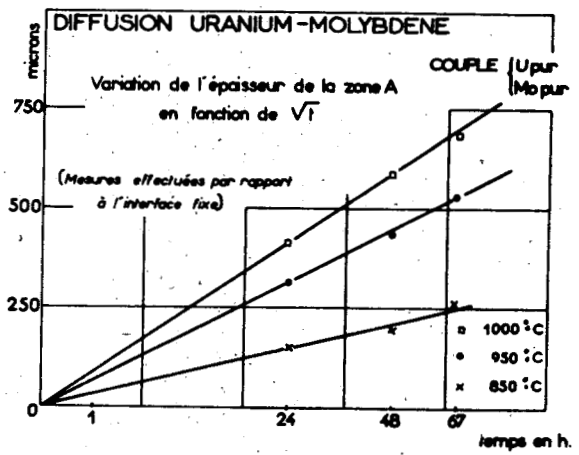


Fig. 15

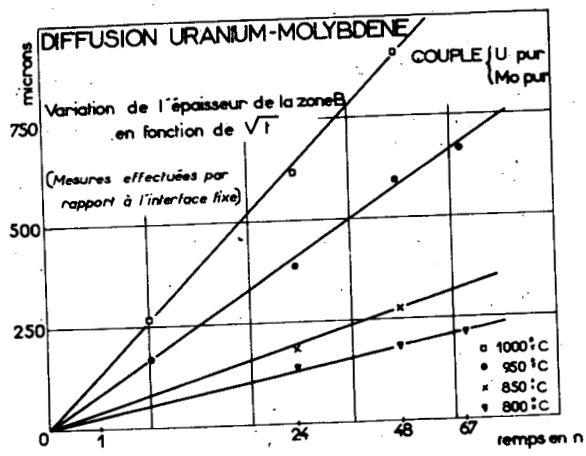


Fig. 16

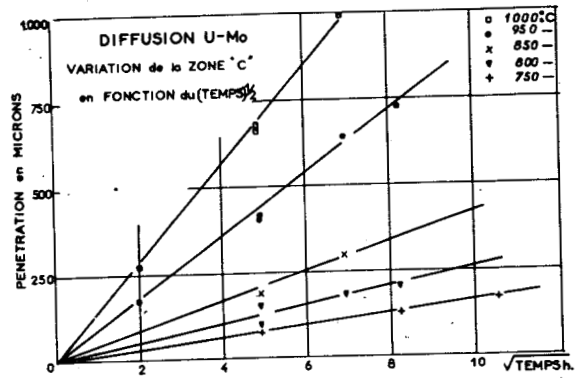


Fig. 17

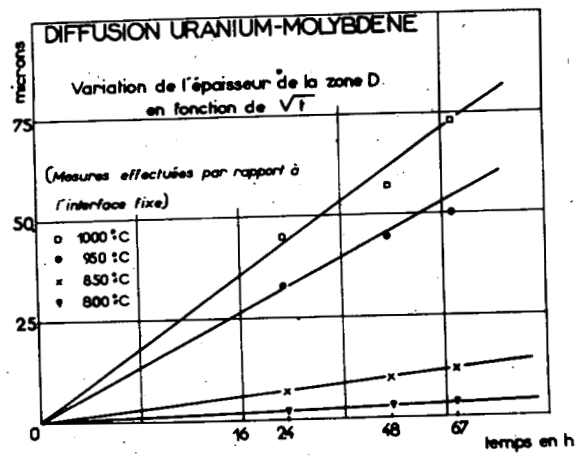


Fig. 18

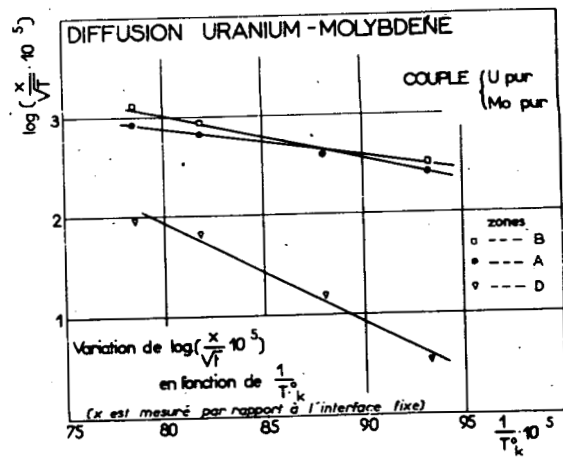


Fig. 19

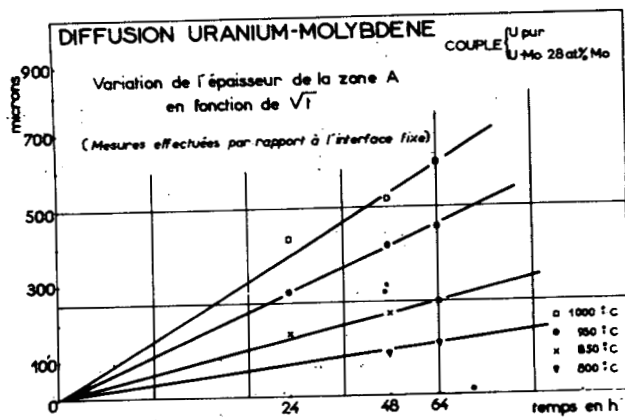


Fig. 20

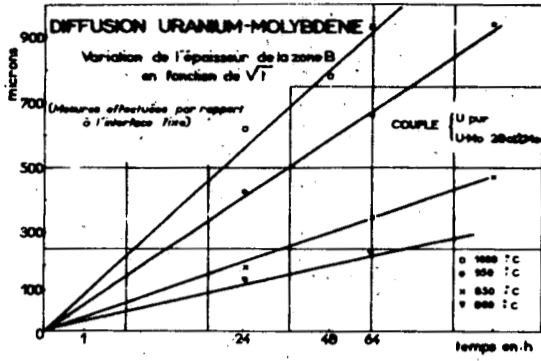


Fig. 21

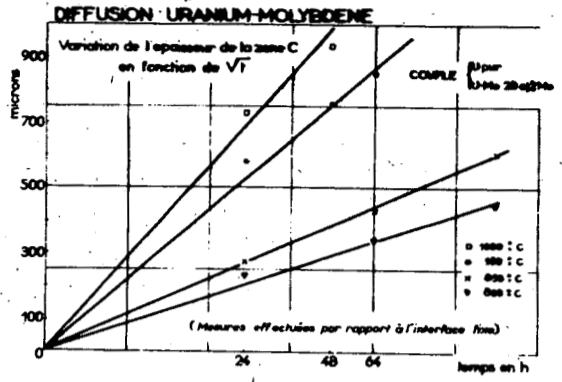


Fig. 22

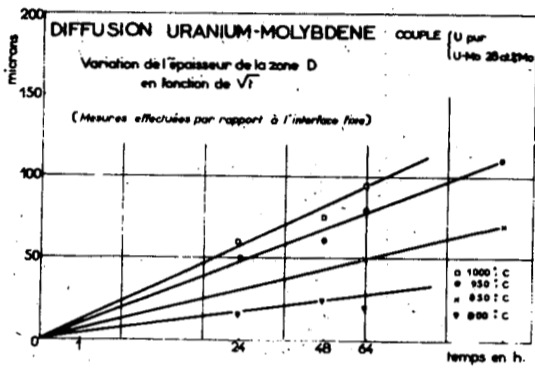


Fig. 23

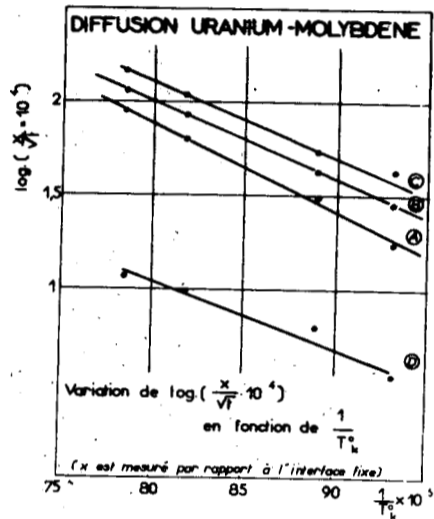


Fig. 24

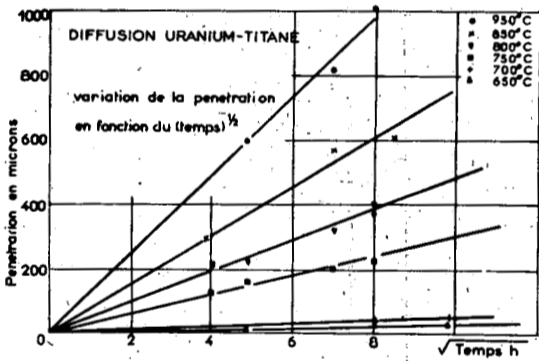


Fig. 25

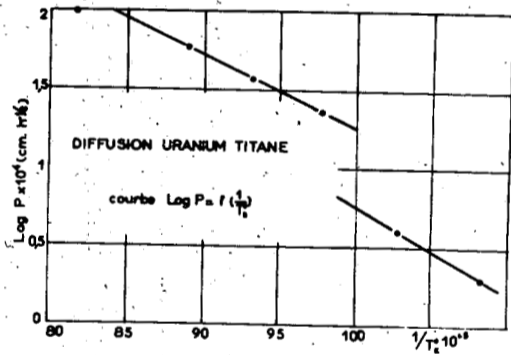


Fig. 26

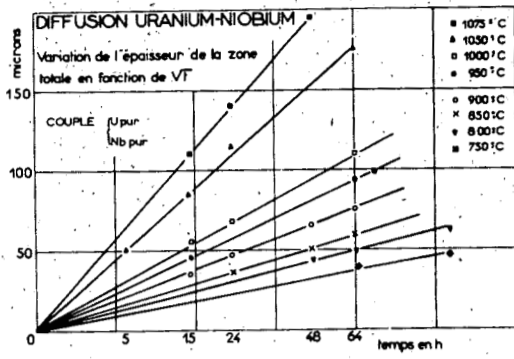


Fig. 27

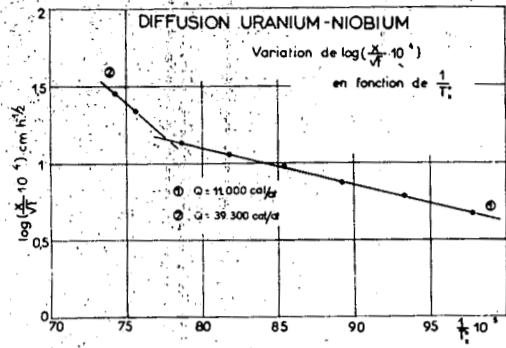


Fig. 28

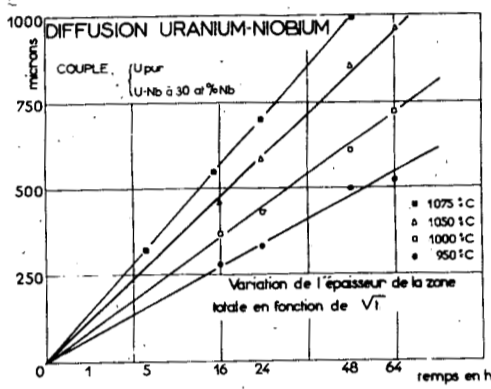


Fig. 29

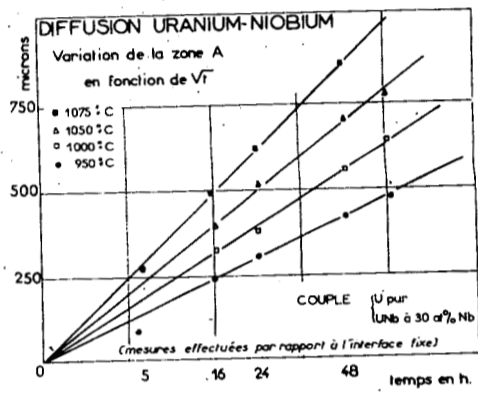


Fig. 30

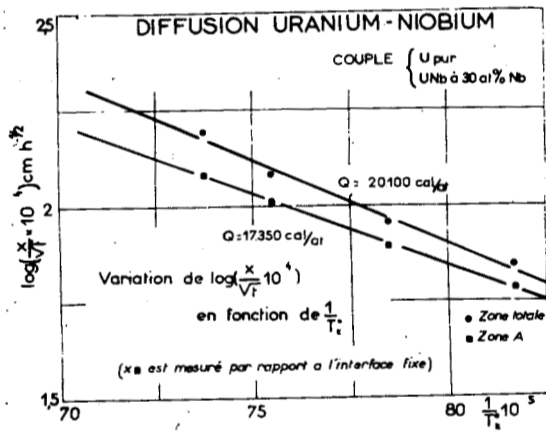


Fig. 31

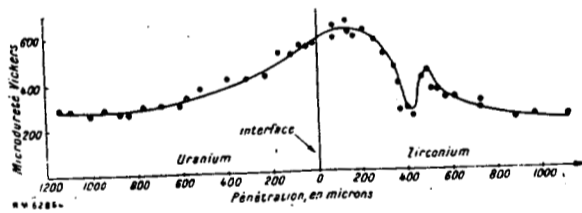


Fig. 32

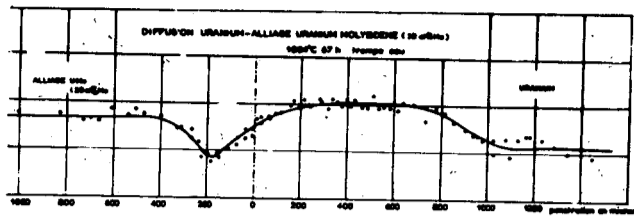


Fig. 33

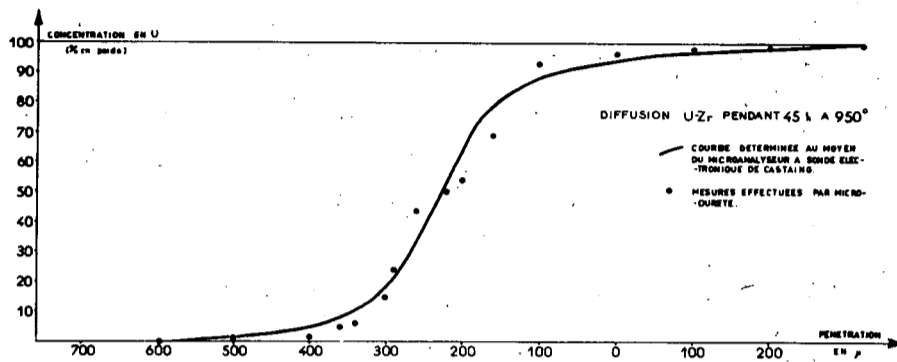


Fig. 34

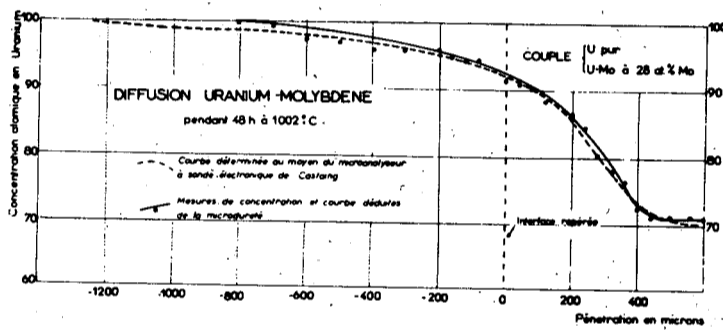


Fig. 35

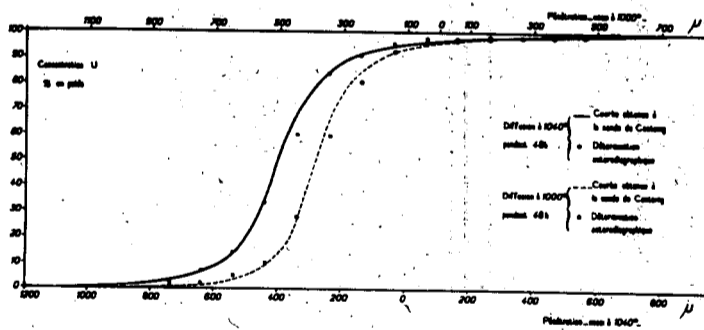


Fig. 36

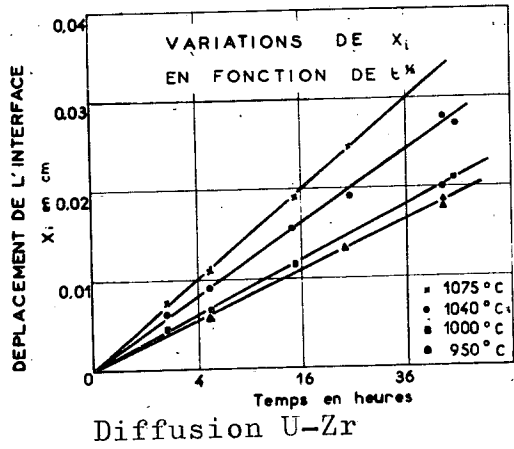


Fig. 37

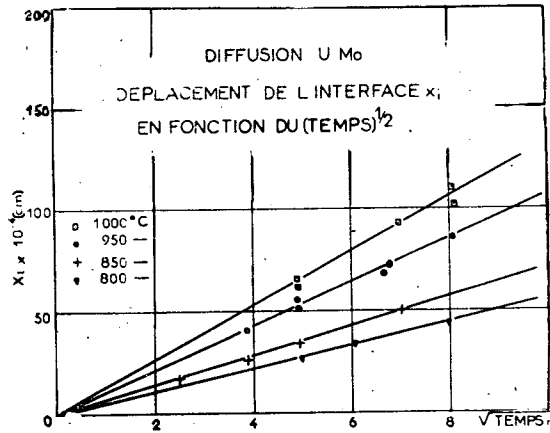


Fig. 38

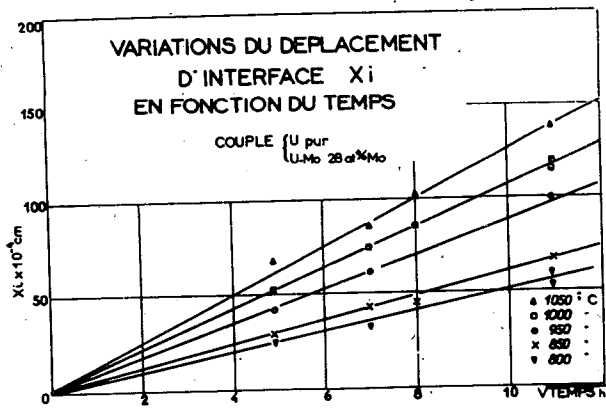


Fig. 39

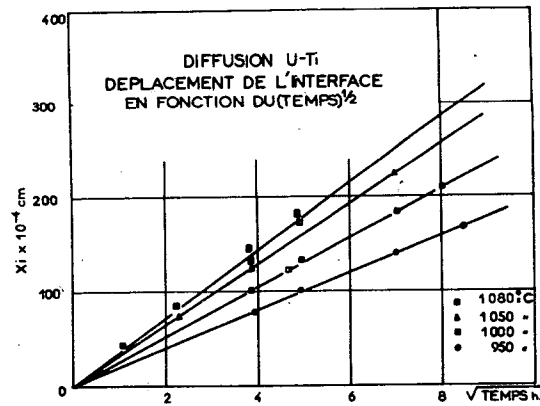


Fig. 40

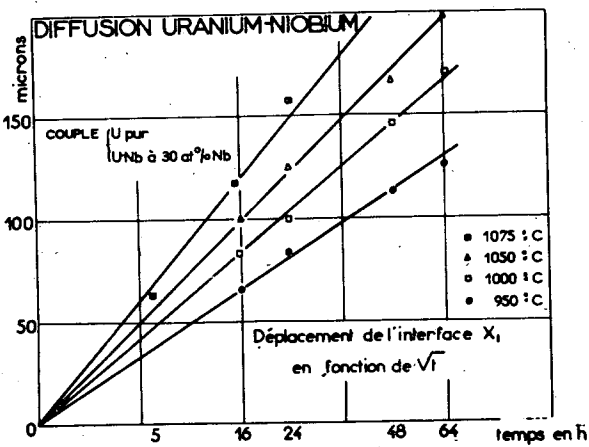


Fig. 41

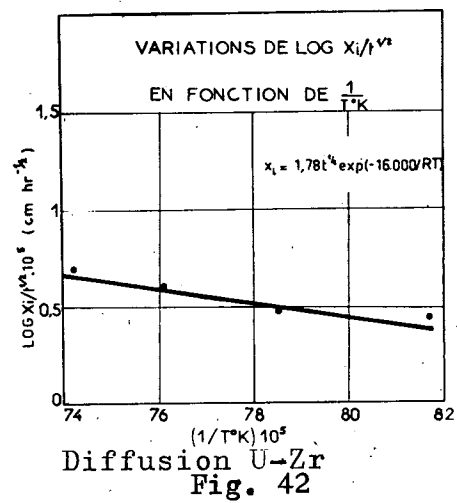


Fig. 42

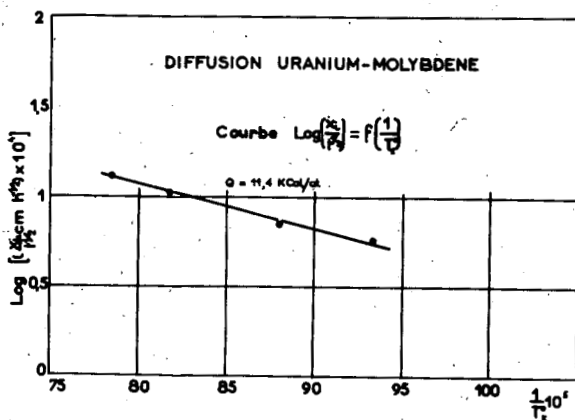


Fig. 43

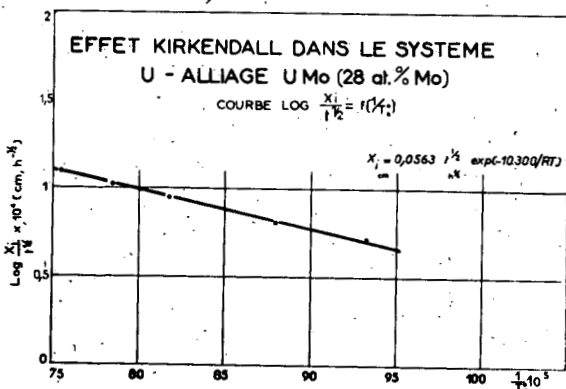


Fig. 44

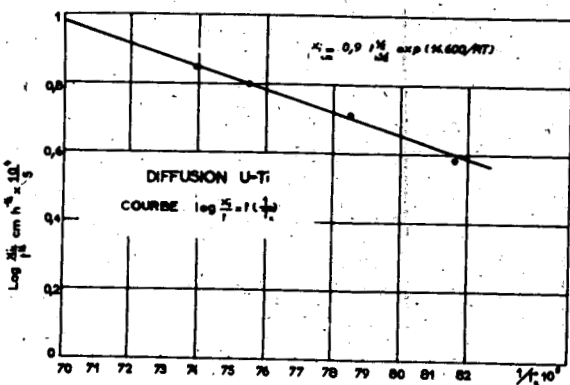


Fig. 45

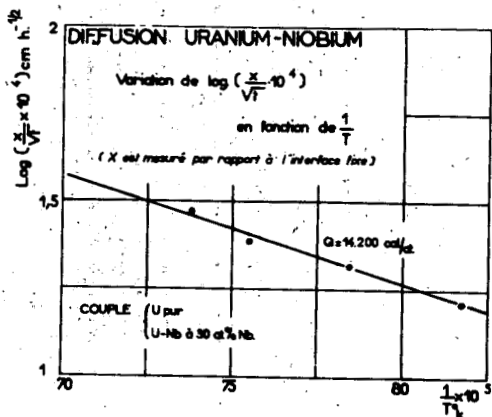


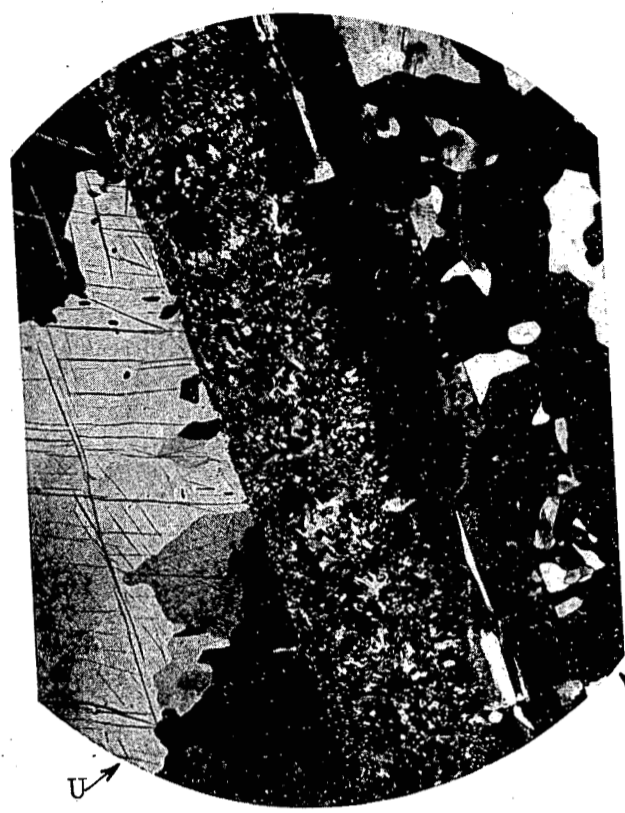
Fig. 46

- MICROGRAPHIES -

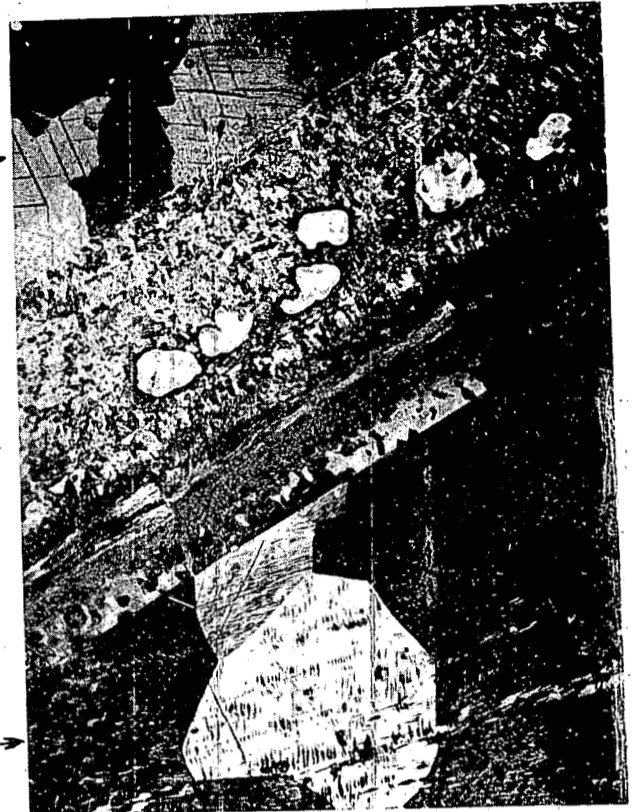
- N° 1 - Diffusion U-Zr à 750°C pendant 90 h. (refroidissement lent)  
x 100 - Lumière polarisée
- 2 - Diffusion U-Zr à 750°C pendant 160 h. (refroidissement lent)  
x 100 - Lumière polarisée
- 3 - Diffusion U-Mo à 700°C pendant 140 h. (refroidissement lent)  
x 100 - Lumière polarisée
- 4 - Diffusion U-Mo à 800°C pendant 67 h. (refroidissement lent)  
x 100 - Lumière polarisée
- 5 - Diffusion U-Ti à 700°C pendant 96 h. (refroidissement lent)  
x 100 - Lumière polarisée
- 6 - Diffusion U-Ti à 858°C pendant 15 h. (trempe à l'eau) -  
x 100 - Lumière polarisée
- 7 - Diffusion U-UNb à 1000°C pendant 16 h. (trempe à l'eau)  
x 100 - Lumière polarisée
- 8 - Diffusion U-Zr à 600°C pendant 140 h. (refroidissement lent)  
x 1000 - Lumière polarisée
- 9 - Diffusion U-Zr à 650°C pendant 140 h. (refroidissement lent)  
x 250 - Lumière polarisée
- 10 - Diffusion U-Ti à 650°C pendant 96 h. (refroidissement lent)  
x 250 - Lumière polarisée
- 11 - Diffusion U-Ti à 950°C pendant 48 h. (trempe à l'eau)  
x 50 - Lumière polarisée
- 12 - Diffusion U-Mo à 950°C pendant 24 h. (trempe à l'eau) x 100  
Lumière polarisée
- 13 - Diffusion U-Ti à 900°C pendant 48 h. (trempe à l'eau) x 100  
Lumière polarisée
- 14 - Diffusion U-Nb à 1030°C pendant 15 h. (trempe à l'eau) x 100  
Lumière polarisée
- 15 - Empreintes de microdureté sur un couple U-Zr (1045°C - 5 h.)  
x 50 - Lumière polarisée
- 16 - Diffusion U-Zr pendant 48 h. à 1043°C - x 250  
Lumière polarisée  
Mise en évidence de l'effet Kirkendall
- 17 - Diffusion U-UMo à 804°C pendant 48 h. (trempe à l'eau) x 250  
Lumière naturelle  
Mise en évidence de l'effet Kirkendall
- 18 - Diffusion U-UNb à 1050°C pendant 16 h. (trempe à l'eau) x 250  
Lumière naturelle  
Mise en évidence de l'effet Kirkendall



- N° 19 - Diffusion U-Zr à 730°C pendant 100 h. (refroidissement lent)  
x 250 - lumière naturelle
- 20 - Diffusion U-Zr à 1000°C pendant 48 h. (trempe à l'eau)  
x 100 - Lumière polarisée
- 21 - Diffusion U-Mo à 1075°C pendant 48 h. (trempe à l'eau) x 100  
Lumière polarisée
- 22 - Diffusion U-Mo à 750°C pendant 67 h. (refroidissement lent)  
x 100 - Lumière polarisée
- 23 - Diffusion U-UMo à 850°C pendant 120 h. (trempe à l'eau)  
x 100 - Lumière polarisée
- 24 - Diffusion U-UNb à 1050°C pendant 16 h. (trempe à l'eau)  
x 100 - Lumière polarisée
- 25 - Diffusion U-UNb à 1080°C pendant 15 h. (trempe à l'eau)  
x 100 - Lumière polarisée
- 26 - Diffusion U-Ti à 850°C pendant 72 h. (trempe à l'eau) - x 100  
Lumière polarisée
- 27 - Diffusion U-Ti à 950°C pendant 72 h. (trempe à l'eau) x 50  
Lumière polarisée
- 28 - a) Diffusion U-UMo à 950°C pendant 48 h. (trempe à l'eau)  
x 250 - Lumière naturelle
- b) Diffusion U-UNb à 1050°C pendant 16 h. (trempe à l'eau)  
x 250 - Lumière naturelle



n° 1



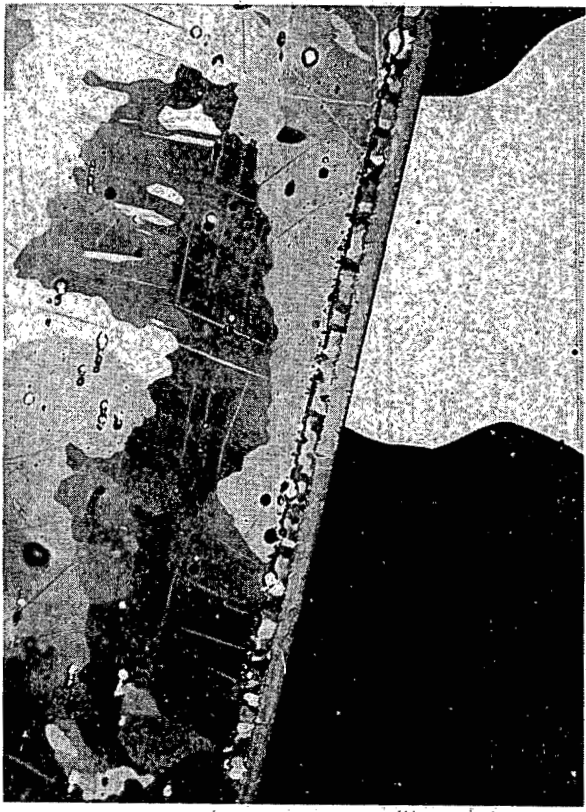
n° 2



n° 3



n° 4



n° 5



n° 6



n° 7



n° 8

U  
Ti

UNb

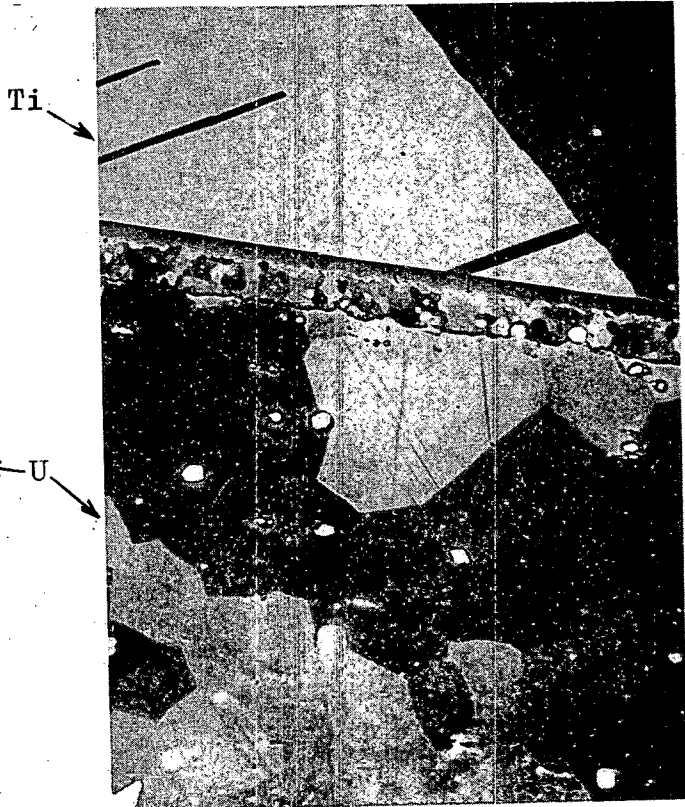
U

Zr



Zr

n° 9



Ti

U

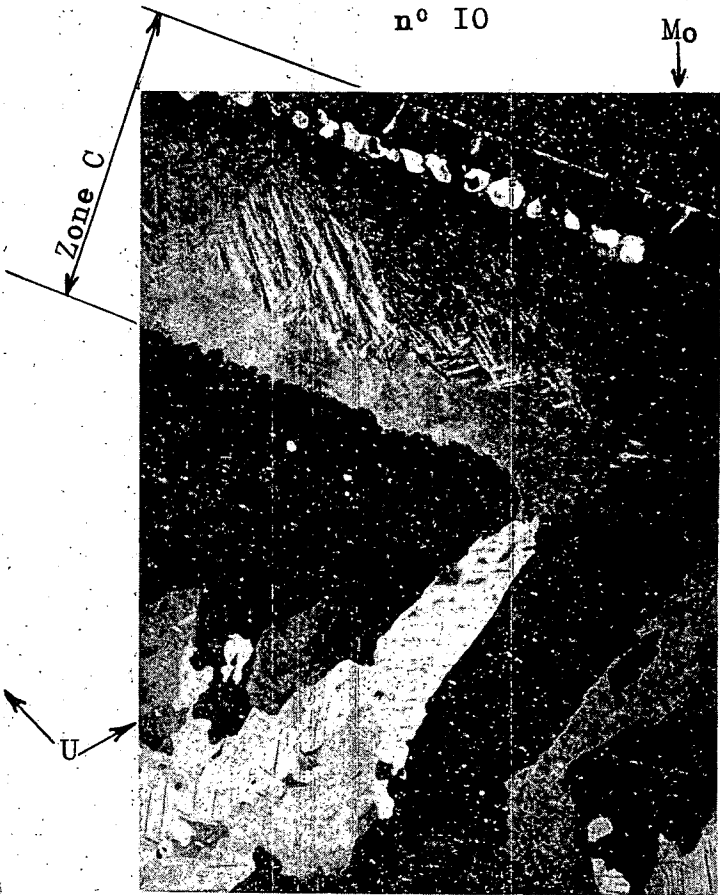
n° 10

Mo



Ti

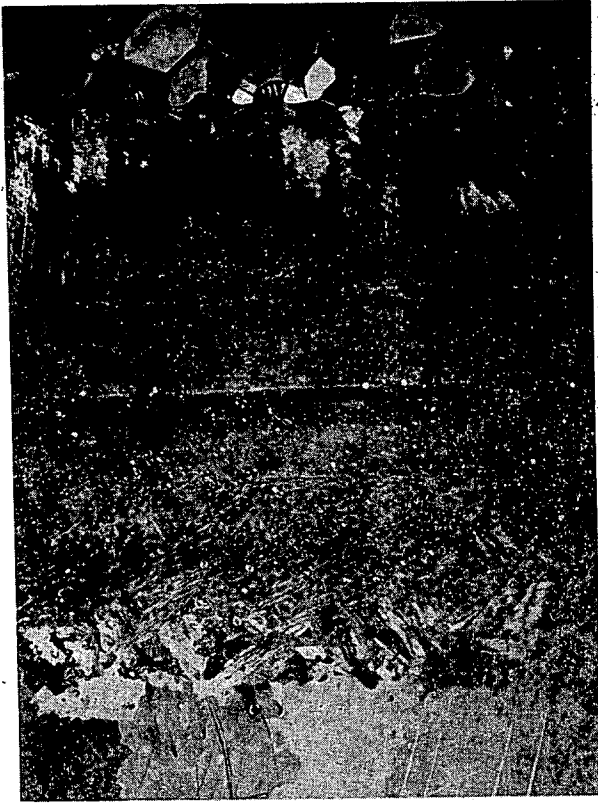
n° II



Zone C

U

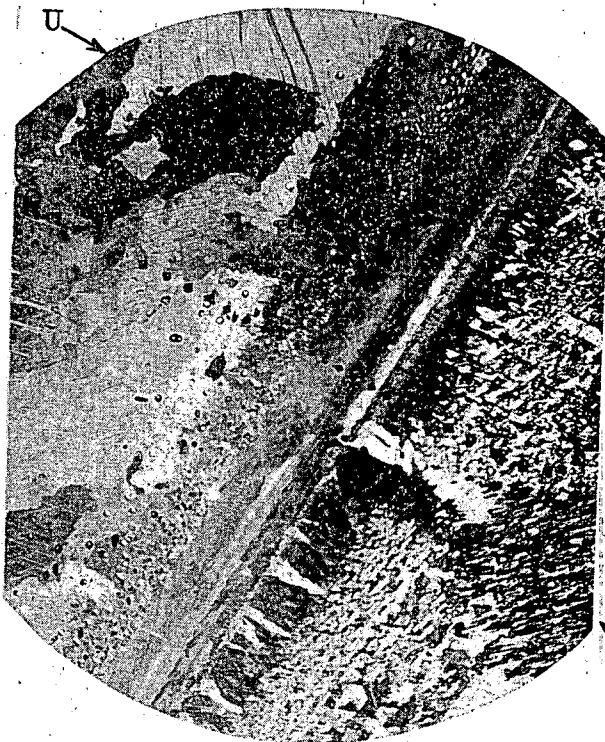
n° I2



n° 13



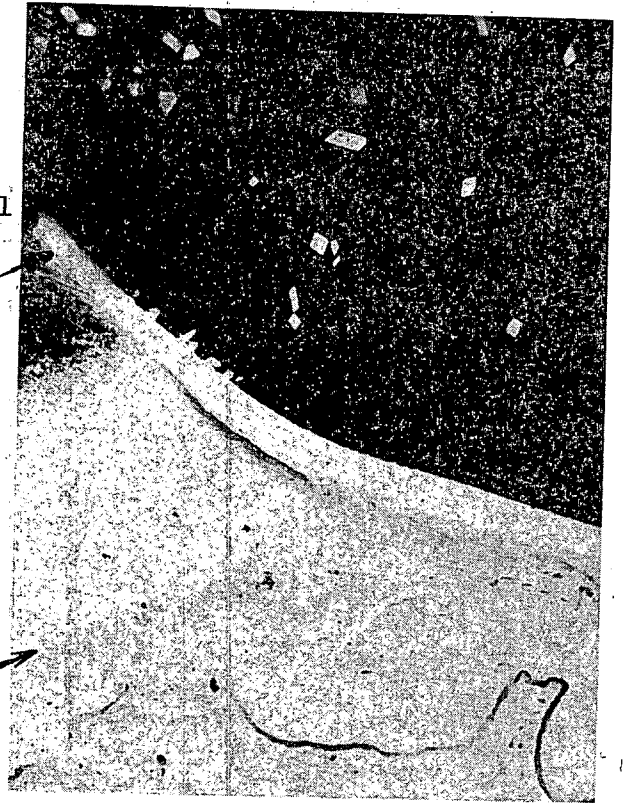
n° 14



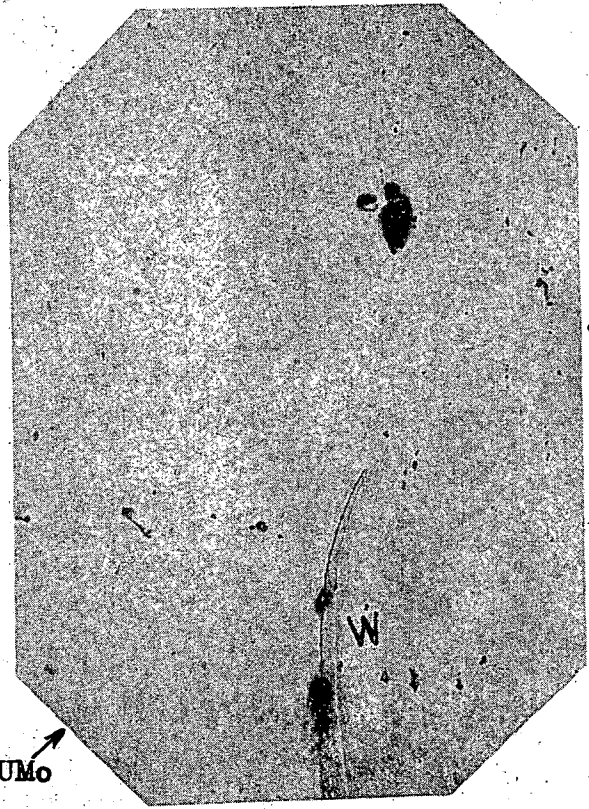
n° 15

feuil  
le  
de  
W

r



n° 16



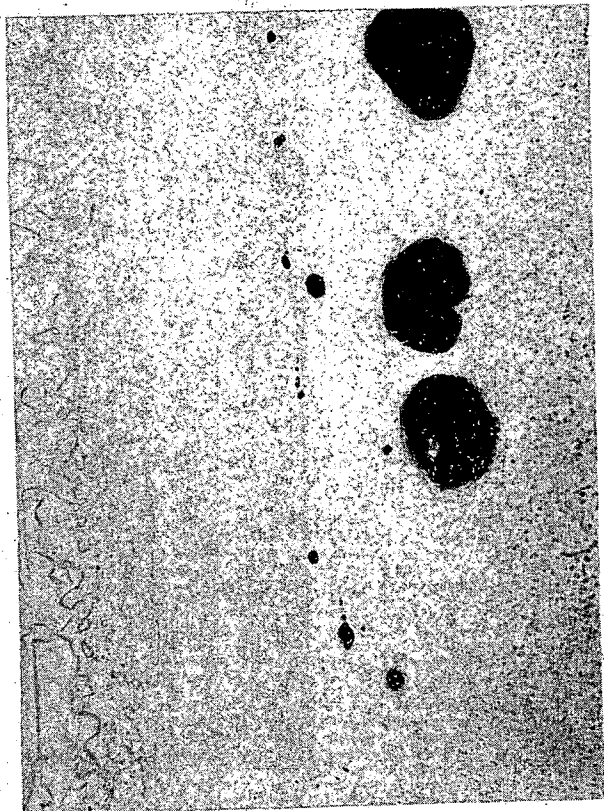
n° 17



n° 18

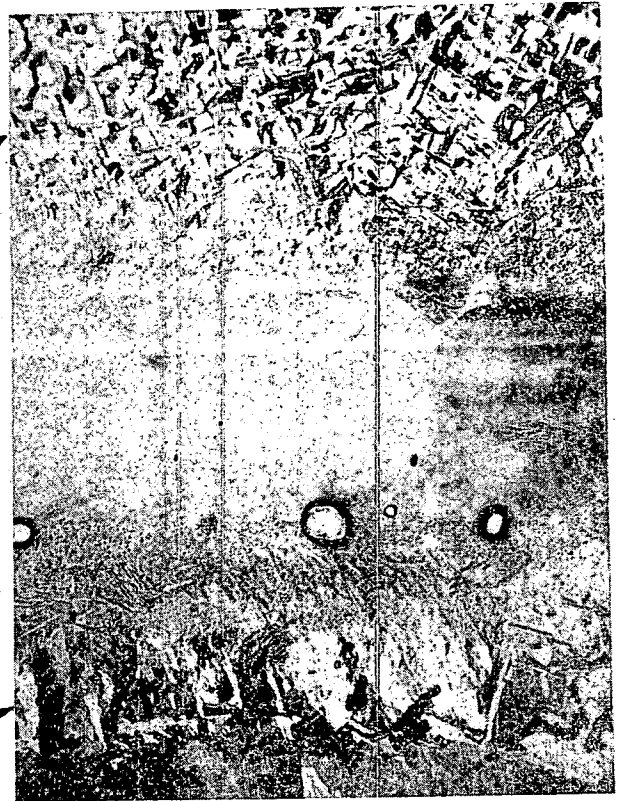
UNb

U



n° 19

Zr



n° 20

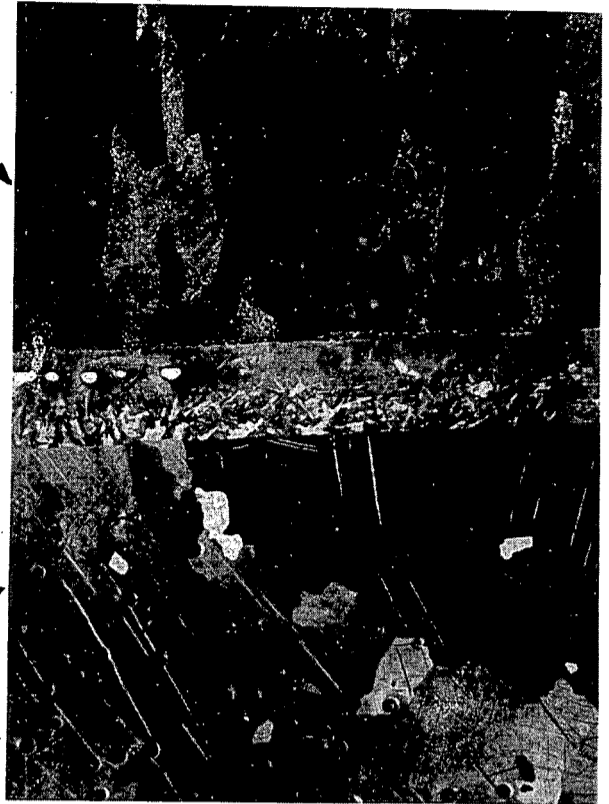
Zr

U



Mo

n° 21



Mo

U

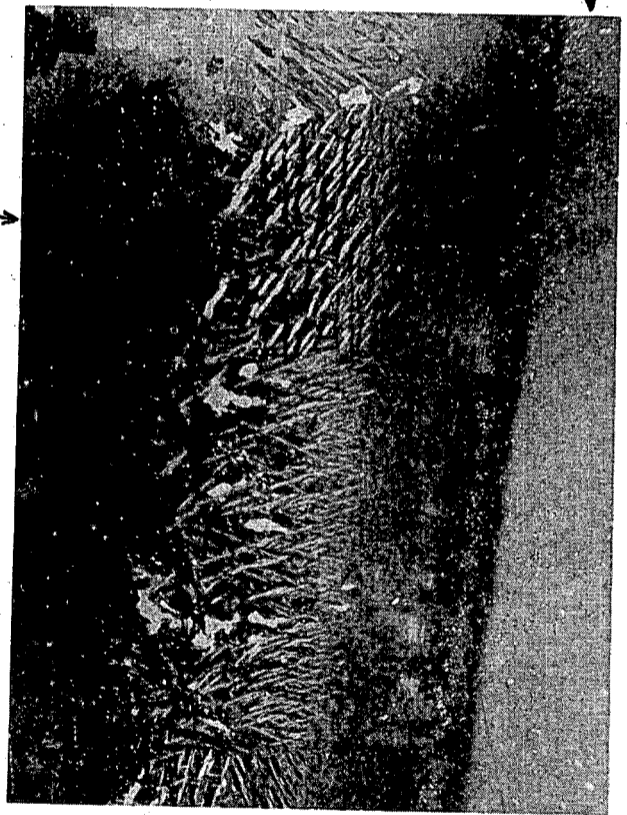
n° 22



U

n° 23

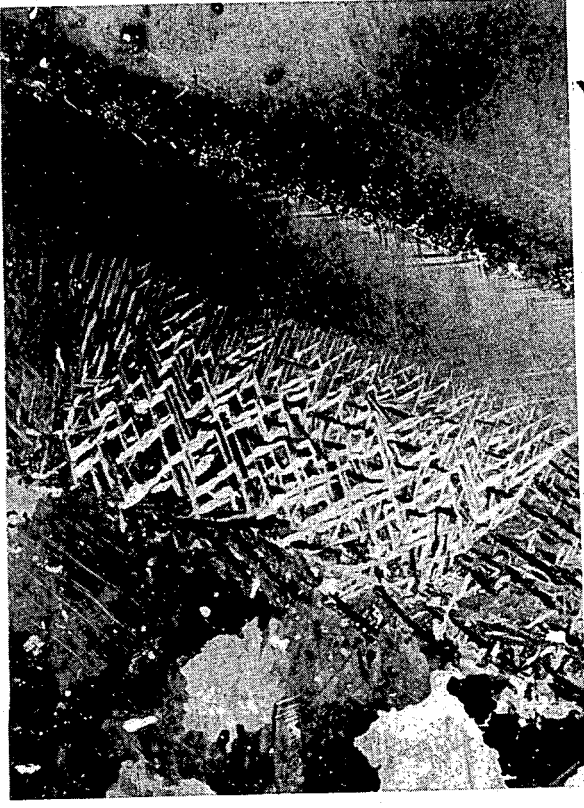
UMo



U

UNp

n° 24



n° 25

Ti →  
UNb ↙



n° 26

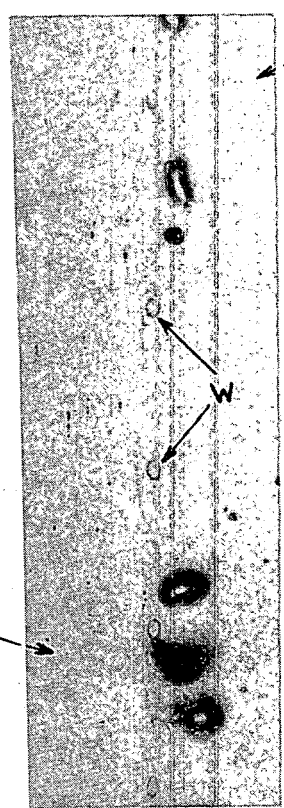
↖ U ↗



n° 27

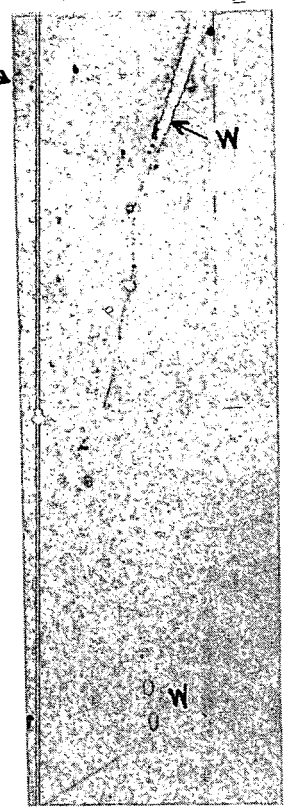
Ti

U ↗



a)

UMo →



b)

UNb ↓

↖ U ↗

n° 28

-----