

COMMISSION DES COMMUNAUTES EUROPEENNES

COM(69) 350 - ANNEXE TECHNIQUE N° 4
Bruxelles, le 30 avril 1969

ACTIVITES FUTURES D'EURATOM

Annexe technique n° 4

" PLUTONIUM ET TRANSPLUTONIENS "

COM(69) 350

ANNEXE TECHNIQUE N° 4

II. 5 PLUTONIUM ET TRANSPLUTONIENS

Institut européen des transplutoniens (Karlsruhe)

Projet de programme pluriennal

SOMMAIRE

:A. Le Plutonium

A.1. Etude du comportement sous irradiation des combustibles au plutonium pour réacteurs rapides

1.1 Cadre du programme

1.2 Le programme d'étude

1.2.1 Les mécanismes de transport d'énergie

1.2.2 Les effets chimiques et le transport de matière

a) Migration et ségrégation de constituants principaux des matériaux combustibles

b) Le comportement des produits de fission solides

c) La compatibilité avec les matériaux de gainage et avec le sodium

1.2.3 Le gonflement et les propriétés mécaniques

1.2.4 Remarques sur l'exécution du programme

a) Aspects fondamentaux de nos recherches sur le plutonium

b) Commentaires sur le programme d'irradiation

c) Déroulement dans le temps

A.2. L'analyse chimique et isotopique des combustibles rapides irradiés et les données neutroniques

A.3. Les activités de soutien scientifique et les prestations de service

B. Les transplutoniens et le plutonium 238

B.1. Cadre du programme

B.2. Le programme de l'Institut

2.1 Etudes sur les solides

2.2 La synthèse des composés solides

2.3 L'obtention des transplutoniens

2.4 Les problèmes analytiques

2.5 Le soutien aux autres institutions de la Communauté.

I. INTRODUCTION

Le plutonium, sous-produit inévitable de la production d'énergie nucléaire, peut constituer un matériau fissile d'appoint pour les réacteurs à neutrons thermiques et son emploi dans ces réacteurs a fait l'objet de nombreuses études (recyclage du plutonium). Il trouve cependant une utilisation plus spécifique dans les réacteurs à neutrons rapides, pour lesquels il constitue le matériau fissile idéal : seul son emploi permet d'atteindre les taux de régénération élevés qui sont essentiels pour l'économie de cette filière et en constituent un des attraits.

Ceci explique pourquoi chaque groupe de la Communauté engagé dans un projet de réacteur rapide a développé des moyens de production d'éléments combustibles au plutonium : c'est ainsi que des ateliers de fabrication existent ou sont en construction en Allemagne, en Belgique, en France et en Italie.

Cependant, la manipulation du plutonium, substance hautement toxique, entraîne des problèmes de sécurité du travail qui imposent des investissements et des frais d'exploitation considérables et restreignent les possibilités d'improvisation. L'effort de recherche a été, chez tous nos partenaires, beaucoup plus restreint que dans le cas de l'uranium, dont la manipulation ne pose aucun problème de sécurité, et certains se sont limités à l'accomplissement des tâches technologiques d'une urgence incontestée.

C'est pourquoi, dans le cas de l'uranium, on dispose de nombreuses données de base et des résultats des recherches fondamentales exécutées dans les universités ou les centres de recherche, alors que pour le plutonium, certaines données équivalentes font souvent défaut malgré leur utilité ou leur nécessité impérieuse.

En outre, le développement des combustibles pour réacteurs rapides pose des problèmes particuliers que la technologie de l'ura-

plutonium n'a pas eu à résoudre : les performances très élevées qu'on espère de ces combustibles, tant en ce qui concerne la puissance spécifique que le taux de combustion, nécessitent des recherches de base qui n'ont pas leur équivalent dans le domaine des combustibles pour centrales thermiques : en particulier, la quantité importante de produits de fission solides et gazeux créés au cours de l'irradiation jusqu'à des taux de combustion extrêmes, affectent considérablement et d'une manière mal connue les propriétés du combustible en pile.

Enfin, les centrales de puissance à neutrons rapides nécessiteront vraisemblablement, pour être économiques, des matériaux combustibles dont l'emploi dans les centrales à neutrons thermiques est exceptionnel, tels que les carbures et les nitrures, et ceci élargit encore le domaine où des recherches de base sont nécessaires.

Le développement du réacteur rapide est tenu pour urgent par tous les Etats membres de la Communauté. Actuellement, les performances qu'on attend des combustibles des prototypes ont été fixées plus par des considérations de sécurité que d'économie. Les recherches de base sont indispensables à une optimisation ultérieure ou, pour certaines d'entre elles, sont le préalable au choix d'une solution technologique raisonnable.

Dans la Communauté, un nombre trop restreint de chercheurs est engagé dans ces études dont une part non négligeable est accomplie à l'Institut des Transuraniens. La difficulté et l'ampleur du domaine permet une solution aisée du problème des duplications inutiles. De plus, il peut être souhaitable que différents laboratoires abordent des problèmes identiques par des méthodes différentes à condition que l'interprétation des résultats fasse l'objet d'un effort commun. Le comité consultatif des programmes permettra de mieux organiser les contacts déjà trop féconds qui existent dès à présent.

Le document qui suit est divisé en deux grandes rubriques :

- A. Le Plutonium
- B. Les Transplutoniens et le plutonium 238.

Dans le programme Plutonium, nous avons distingué deux objectifs :

- A1. L'étude du comportement sous irradiation des combustibles au plutonium pour réacteurs rapides
- A2. L'analyse chimique et isotopique des combustibles rapides.

Ce dernier objectif aurait pu être considéré comme un des aspects particuliers des activités de soutien scientifique (A3). Cependant, vu l'importance des résultats de ces travaux pour l'ensemble du développement de la filière rapide, nous avons préféré les considérer comme un objectif distinct.

A. Le Plutonium

1. Etude du comportement sous irradiation des combustibles au plutonium pour réacteurs rapides

1.1. Cadre du programme

Les responsables du développement des éléments combustibles des projets de réacteurs rapides, poussés par l'urgence, concentrent l'essentiel de leur effort sur la mise au point d'un élément adapté à un prototype défini dès à présent. De tels éléments sont soumis actuellement à des essais statistiques destinés à vérifier si les solutions technologiques choisies permettent de réaliser les performances encore modestes qu'on s'est fixées.

Cependant, on pressent la nécessité de disposer pour les futures centrales de puissance d'un élément combustible qui en permettra une exploitation plus économique.

Ce problème d'optimisation à long terme impose un ensemble de recherches de base qui doivent permettre la compréhension du comportement des éléments combustibles actuels ou potentiels.

L'Institut des Transuraniens propose de contribuer à ce programme de base dans le domaine des oxydes et des autres céramiques, essentiellement les carbures et nitrures.

Les problèmes qui se posent sont différents selon les matériaux combustibles envisagés. Nous les analysons ici brièvement :

a) Les oxydes

Les réacteurs rapides de la première génération fonctionnent à l'oxyde. Le développement de ce combustible est actuellement entré dans la phase de démonstration technologique. Les performances qu'on en attend ont été fixées plus par des considérations de sécurité que d'économie.

On a limité la puissance linéaire et la température maximum du combustible en raison des incertitudes sur le coefficient de transfert thermique, la conductibilité thermique effective de l'oxyde et sa variation en fonction des restructurations et du taux de combustion.

Cependant, si on veut utiliser économiquement de l'oxyde dans des réacteurs futurs, il faudra en élever considérablement les performances. La puissance linéaire que l'on pourrait espérer de l'élément oxyde actuel pourra vraisemblablement être augmentée de quelque 100 à 200 watt/cm.

Si on veut l'augmenter encore, il faudra même songer à des solutions technologiques plus audacieuses: noyer l'oxyde dans le sodium, accepter de fonctionner avec fusion à coeur, répartir dans l'élément la matière fissile dans un espace annulaire autour du noyau fertile...

Le taux de combustion que l'on espère atteindre est de quelque 100.000 Mwj/T. Des tests d'irradiation semblent prouver que cet objectif est raisonnable, encore que la fluence neutronique reçue par les gaines au cours de ces tests soit le quart ou le cinquième de ce qu'elle sera à même taux de combustion dans les réacteurs de puissance.

b) Les carbures et les nitrures

On admet que l'utilisation de carbures au lieu d'oxydes devrait permettre une exploitation plus économique des centrales de puissance à neutrons rapides: leur conductibilité thermique autorise des puissances spécifiques élevées et leur forte densité permet d'atteindre de meilleurs taux de conversion.

Les nitrures sont également considérés par certains comme des combustibles potentiels valables et pour les mêmes raisons, encore que les réactions (n,p) et (n, α) de l'azote puissent conduire à un bilan neutronique moins favorable.

Le problème le plus difficile pour l'emploi de ces combustibles réside dans le gonflement, bien plus considérable que celui de l'oxyde. Actuellement on envisage deux solutions pour limiter le gonflement ou ses conséquences: l'utilisation d'un joint sodium qui permettrait au combustible de gonfler sans soumettre la gaine à des contraintes inacceptables; l'irradiation à température très élevée, en adoptant un joint gazeux, de façon à libérer les gaz de fission et à augmenter la plasticité du matériau. On se trouverait ainsi dans une situation comparable à celle des oxydes.

La coexistence de deux concepts aussi différents trouve son origine dans le fait que la relation entre gonflement, température et taux de combustion est mal connue. Il ne s'agit pas là du seul problème qui demande une solution. En fait, les données fondamentales sur les carbures et les nitrures mixtes sont beaucoup moins abondantes que sur les oxydes mixtes.

Dans le domaine des oxydes, on dispose d'une expérience technologique considérable et on peut espérer, par une voie empirique, arriver progressivement aux performances souhaitées.

Au contraire, dans le domaine des carbures ou des nitrures, on s'est heurté très vite à des difficultés. Alors que, dans le cas des oxydes, la recherche de base permettra surtout d'expliquer, ou de confirmer des présomptions déjà fondées sur l'expérience, dans celui des carbures et des nitrures, cette recherche sera un préalable au choix d'une solution technologique raisonnable.

Jusqu'à présent, l'effort de l'Institut des Transuraniens avait été pratiquement limité à l'étude des oxydes. Au cours du prochain programme, les carbures et plus généralement les composés du type (U,Pu)(C,N,O) prendront dans notre programme une impor-

tance accrue *) et il est probable que vers la fin du plan l'essentiel de notre activité portera sur ces composés.

*) Dès à présent, la mise au point des méthodes de préparation et de caractérisation des composés non-oxyde a commencé. (voir 6e rapport semestriel de l'Institut des Transuraniens)

1.2. Le programme d'étude du comportement du combustible sous irradiation

Le programme d'étude du comportement du combustible sous irradiation s'appuiera d'une part sur l'observation et l'étude de matériaux irradiés, éventuellement en capsules instrumentées, et d'autre part sur l'investigation de certaines propriétés des matériaux non irradiés.

Dans le domaine des oxydes, nous poursuivrons l'activité de recherche commencée au cours du 2^e programme quinquennal (voir rapports semestriels de l'Institut). Progressivement, cependant, le centre de gravité de nos travaux se déplacera vers les autres céramiques.

Dans ce domaine, nous ne nous limiterons pas à l'étude des carbures stoechiométriques. Rappelons que les carbures et nitrures sont miscibles entre eux et peuvent accommoder de l'oxygène en quantités notables. Notons en outre que certains procédés de fabrication économiques peuvent conduire à des carbures souillés de quantités notables d'oxygène et d'azote. Les propriétés de ces composés mixtes, que nous appellerons les composés (U,Pu)(C,N,O), dépendront de leur teneur en carbone, azote et oxygène; seule l'étude systématique de l'effet de la composition chimique sur ces propriétés permettra de sélectionner une composition optimale, éventuellement différente de celle des carbures purs.

Dans le tableau I, nous énumérons les phénomènes à l'étude desquels nous proposons de nous attacher.

Afin d'alléger l'exposé, nous avons réparti arbitrairement nos études en trois groupes :

Le transport d'énergie

Les effets chimiques et les transports de matière

Le gonflement

Il est clair que ces groupes d'étude ne sont pas indépendants.

1. Les mécanismes de transport d'énergie

Etudes sur matériaux irradiés

Examen et interprétation de la morphologie des combustibles
Mesure de conductibilité de matériaux irradiés

Etudes sur matériaux non irradiés

Conductibilité intrinsèque des matériaux
Propriétés optiques
Vitesse de cristallisation; températures de fusion

Etudes en pile

Mesure en pile de la conductibilité thermique

2. Les effets chimiques et le transport de matière

Etudes sur matériaux irradiés

Analyse locale de combustibles irradiés (autoradiographie, analyse chimique et radiochimique, microsonde). Examen de capsules "compatibilité".

Etudes de matériaux non irradiés

Diagrammes des phases jusqu'au point de fusion
Tension de vapeur et de décomposition et données thermodynamiques
Expériences de simulation

3. Le gonflement et les propriétés mécaniques

Etudes sur matériaux irradiés

- Microscopie optique et électronique (répliques et transmission)
- Mesure locale de concentration de gaz de fission

Etudes de matériaux non irradiés

- Fluage en fonction de la température et de la composition
- Observation de défauts au microscope électronique

Etudes en pile

Mesure du fluage sous irradiation.

1.2.1. Les mécanismes de transport d'énergie.

a) L'intégrale de conductibilité

L'intégrale de conductibilité thermique effective et sa variation en fonction du taux de combustion doivent être connues si on veut être en mesure d'augmenter la puissance spécifique. L'observation de la morphologie du combustible (trou central, zone fondue, grains basaltiques) permet des estimations approximatives des profils de températures. Les importants phénomènes de restructuration qui affectent les combustibles surtout au début de leur fonctionnement sont systématiquement étudiés par les projets.

À l'appui de ces études, nous entreprendrons des mesures de température de recristallisation des matériaux non irradiés en fonction de leur composition. La mesure précise des températures de fusion des oxydes mixtes en fonction de leur stoechiométrie est en cours et sera poursuivie. Des études similaires seront entreprises sur les composés (UPu)(C,N,O). L'effet des produits de fission solubles sur les températures de recristallisation et de fusion sera étudié. On se limitera aux produits de fission les plus abondants. Il est évident que les températures de recristallisation déterminées hors pile, sur des matériaux non irradiés, pourraient différer considérablement des valeurs réelles sous irradiation. Une vérification sera possible par les essais décrits plus loin (mesure de la conductibilité en pile).

b) Une connaissance détaillée et précise du profil de température nécessite des mesures plus directes de la conductibilité thermique.

Les mesures de la conductibilité thermique intrinsèque des oxydes non irradiés seront poursuivies et menées à leur terme. L'effet des produits de fission sera sommairement évalué. Des recherches fondamentales complètent ce programme (voir 1.2.4.a). Les études de conductibilité des composés (U,Pu)(C,N,O) débiteront dès 1970.

Nous mesurerons en cellule chaude la conductibilité thermique des matériaux irradiés. Ces mesures, plus grossières que celles évoquées plus haut, permettront de déterminer l'ordre de grandeur de l'effet de l'irradiation sur la conductibilité aux taux de combustion élevés (produits de fission, porosité...).

Des mesures en réacteur de la conductibilité thermique (thermocouples) seront accomplies sur quelques échantillons d'oxyde de stoechiométrie différentes. Ces essais compléteront les résultats des mesures hors pile que nous avons réalisés. Les observations seront limitées aux faibles taux de combustion et aux températures inférieures à quelque 2000°C en raison des limitations imposées par les thermocouples. Des mesures similaires seront entreprises sur les composés (U,Pu)(C,N,O) dès que possible.

- c) La contribution du rayonnement (infra-rouge) au transport d'énergie peut être importante aux températures élevées.

Nous poursuivrons l'étude des propriétés optiques des matériaux combustibles.

1.2.2. Les effets chimiques et le transport de matière

a) La migration et la ségrégation des constituants principaux des matériaux combustibles

- La ségrégation du plutonium aura une influence notable sur le profil de température dans l'élément combustible et sur les propriétés qui en dépendent. De plus, si elle est considérable, elle peut entraîner des problèmes de sécurité du réacteur.

Une modification des propriétés physiques et chimiques des combustibles est provoquée par la migration sous l'effet du gradient thermique, de l'oxygène dans les oxydes ou du carbone, de l'azote et de l'oxygène dans les composés du type (U,Pu)(C,N,O).

Oxydes

- L'accumulation de plutonium dans le centre d'éléments combustibles oxydes irradiés a été décrite par plusieurs auteurs. On l'a expliquée, selon les cas, par une cristallisation fractionnée (fusion à coeur) ou un mécanisme de thermodiffusion, mis en évidence dans certaines expériences de simulation (gradient thermique).

Fréquemment les combustibles soumis à l'irradiation en flux rapide sont totalement enrichis et dans ce cas, la ségrégation de plutonium n'entraîne pas de variation correspondante du profil de température, variation qui pourrait à son tour affecter le phénomène de ségrégation. Lorsque l'irradiation est conduite en réacteur thermique, la dépression de flux neutronique peut rendre très délicate une évaluation des observations. Il s'agit donc là d'un problème difficile qui nécessite des observations nombreuses de combustibles irradiés dans des conditions diverses et des études de modèles basées sur des données fondamentales sûres.

Dans la Communauté un nombre suffisant de combustibles oxydes a été irradié pour que nous puissions éviter un vaste programme d'irradiation propre.

- Nous irradierons quelques capsules de combustible dopé de façon hétérogène avec des traceurs ^{233}U , ^{238}Pu afin de suivre le transport de l'uranium et du plutonium sous irradiation.

- Nous examinerons systématiquement les combustibles oxydes irradiés pour d'autres études afin de déceler les ségrégations éventuelles.

L'Institut des Transuraniens dispose, dans ses cellules chaudes, d'équipements adéquats pour observer ces phénomènes: autoradiographie alpha, analyse chimique, radiochimique et isotopique sur des microéchantillons prélevés localement. D'ici peu, la mise en service de la microsonde élargira encore nos possibilités.

- A l'appui de ces études, nous compléterons les recherches en cours actuellement sur le diagramme des phases et les propriétés thermodynamiques: il s'agit en particulier des mesures de tension partielle de vapeur des constituants et des déterminations des courbes de liquidus-solidus des oxydes mixtes en fonction de leur stoechiométrie. L'effet des produits de fission abondants sera abordé dans un programme expérimental limité.

Ces études permettront de sélectionner les mécanismes de transport possibles du point de vue thermodynamique.

- Le gradient de stoechiométrie qui s'établit dans un combustible oxyde sous irradiation mérite une grande attention: les variations locales des propriétés de l'oxyde pourraient être considérables. Malheureusement, l'analyse locale de la stoechiométrie dans un combustible irradié n'est pas une tâche aisée. Nous évaluons pour l'instant la possibilité de surmonter cette difficulté.

Les composés (U,Pu)(C,N,O)

Dans les carbures stoechiométriques on n'a pas mis en évidence de migration de plutonium. Les données sont cependant trop limitées pour l'exclure aux puissances spécifiques très élevées. Par contre, dès qu'on s'écarte de la composition stoechiométrique, le carbure n'est plus monophasé et des difficultés apparaissent. Dans le cas des carbures sousstoechiométriques, du plutonium métallique se sépare et crée des problèmes de compatibilité avec les gaines. Dans les carbures hyperstoechiométriques, une phase $(U,Pu)_2C_3$ précipite qui, apparemment, crée peu de difficultés si sa quantité reste limitée. Dans les composés du type (U,Pu)(C,N,O) l'effet de la présence d'oxygène et d'azote sur la composition et les quantités des phases secondaires devra être analysé.

Nous étudierons :

- a) le diagramme de phase de ces composés, en nous limitant à une seule valeur du rapport $Pu/U + Pu$,
- b) les pressions de décomposition (CO, N_2) et les tensions partielles de vapeur de plutonium et uranium,
- c) les courbes de solidus-liquidus.

Nous étudierons l'effet des produits de fission les plus abondants sur ces propriétés. Enfin, des expériences de simulation (gradient thermique) permettront de faire le lien entre les données thermodynamiques et les observations sur les combustibles que nous avons irradiés.

b) Le comportement des produits de fission solides

Les taux de combustion élevés que l'on espère atteindre dans les combustibles des réacteurs rapides conduiront à la formation de produits de fission solides en quantités notables (15 % en fin d'irradiation). Nous avons mis à notre programme l'étude de leur effet sur les propriétés physiques et physico-chimiques du matériau combustible (voir plus haut).

Nous nous occuperons plus particulièrement, dans ce paragraphe, du mécanisme de leur migration et de leur ségrégation.

Oxydes

La ségrégation des produits de fission solides a été décrite par de nombreux auteurs. Les expériences d'irradiation menées par l'Institut dans D.F.R. jusqu'à 8000 Mwj/T ont mis en évidence des différences considérables de comportement des produits de fission selon la stoechiométrie du combustible de départ. Les essais actuellement en cours dans D.F.R. permettront de vérifier si des différences se maintiennent lorsque l'irradiation est conduite jusqu'à un taux de combustion de quelque 70.000 Mwj/T.

Nous proposons d'étudier sur des combustibles irradiés dans des conditions connues le profil de concentration des produits de fission, de manière à mettre en évidence les lois empiriques qui gouvernent leur migration (autoradiographies, microsonde ...). La solubilité des produits de fission dans le réseau d' UO_2PuO_2 en fonction de la température et de la stoechiométrie sera étudiée sur des matériaux non irradiés de même que leur état chimique dans les inclusions. On se limitera aux produits de fission les plus abondants.

Carbures et composés du type (U,Pu)(C,N,O)

On n'a pas décrit, dans les études sur les carbures, de migration massive ou de ségrégation de produits de fission. Il est cependant possible qu'on les observe aux puissances spécifiques très élevées qu'on fixe parfois comme objectif. Si c'était le cas, il faudrait mettre également sur pied un programme expérimental.

Notons cependant que l'état chimique des produits de fission jouera un rôle considérable sur le bilan carbone, azote, oxygène dans le combustible et sur les propriétés qui en dépendent. Nous étudierons cette question.

c) Compatibilité avec les matériaux de gainage et avec le sodium

Le développement et l'étude des matériaux de gainage n'entre pas dans les attributions de l'Institut.

Nous n'envisageons pas d'études hors pile de compatibilité entre matériaux de gainage et combustibles.

Par contre, nous pouvons réaliser des expériences d'irradiation à taux de combustion moyens (3 à 4 %) destinées à éprouver la compatibilité sous irradiation, en présence de produits de fission. Une pareille expérience est d'ailleurs en cours de réalisation en collaboration avec GfK. De plus, l'examen systématique en cellule chaude (microsonde, microscopie) des interfaces entre gaines et combustibles irradiés permettra de reconnaître les problèmes éventuels. Rappelons que les matériaux de gainage utilisés pour nos expériences d'irradiation sont choisis sur les conseils des spécialistes des projets et que les études de compatibilité sont donc complémentaires des programmes de ces projets.

L'étude de la compatibilité des matériaux combustibles avec le sodium est une nécessité. Néanmoins, en raison de notre inexpérience dans le domaine de l'étude du sodium et de

ses problèmes, nous préférons pour l'instant laisser à d'autres l'initiative de ces travaux. Ceci n'exclut d'ailleurs pas notre intervention si elle est souhaitée et lorsque des méthodes éprouvées peuvent être appliquées directement aux combustibles au plutonium sans nécessiter la mise en place d'un laboratoire complet de manipulation et d'analyse du sodium.

1.2.3. Le gonflement et les propriétés mécaniques

Nous avons, dans l'introduction, souligné l'importance technologique du problème du gonflement, qui mérite un effort expérimental considérable.

- La contribution des produits de fission solides au gonflement a fait l'objet de nombreuses études. Quelques données sont trop incertaines pour permettre des calculs précis de cette contribution: l'état chimique des produits de fission solides précipités et l'augmentation du volume spécifique des matériaux combustibles due à la présence de produits de fission dissous devraient être mieux connus.

Nous nous efforcerons d'aider à combler cette lacune par nos études du diagramme des phases.

- La contribution des bulles au gonflement est étudiée d'un point de vue fondamental par de nombreux physiciens qui observent dans des métaux de haute pureté, irradiés par des neutrons ou des ions, les mécanismes de naissance et de croissance des bulles. Les résultats de ces travaux, directement utilisables pour la compréhension du gonflement des gaines, sont difficilement exploitables dans le cas beaucoup plus complexe des matériaux céramiques fissiles hautement irradiés.

Nous proposons d'appliquer certaines de ces méthodes expérimentales [microscopie électronique] à l'étude des oxydes et composés (U,Pu)(C,N,O) de façon à dégager les lois phénoménologiques du gonflement par les bulles.

Les mesures, en cellule chaude, des teneurs locales en gaz de fission compléteront ces informations. Notons que ces méthodes sont actuellement au point à l'Institut.

Dans ce domaine des oxydes, les irradiations en cours ou en préparation fourniront les matériaux fortement irradiés nécessaires à ces recherches. On pourra y ajouter éventuellement des matériaux irradiés par les projets.

Pour les composés (U,Pu)(C,N,O), nous prévoyons un programme assez vaste d'irradiation. Il s'agit de réaliser des expériences à température contrôlée, sous diverses fluences, d'échantillons de différentes compositions chimiques. L'effet de la porosité de départ sur le phénomène global devra être évalué pour permettre une interprétation saine de nos observations. Notons qu'une expérience de ce genre est dès à présent en cours, en collaboration avec le CEA, dans BR II (dispositif POM).

En outre, des irradiations courtes sont prévues pour obtenir des échantillons sur lesquels les phénomènes microscopiques de formation des pores seront étudiés par microscopie électronique (méthode de transmission).

Le fluage du combustible sous irradiation, problème directement lié à celui du gonflement, devrait être étudié en pile. Malheureusement les techniques expérimentales sont très délicates. Nous nous efforcerons de réaliser de telles mesures en utilisant les dispositifs dont le développement est en cours dans d'autres laboratoires.

L'observation en cellule chaude de combustibles irradiés permet de reconnaître les déformations massives. Un examen plus détaillé [microscopie électronique] donnera des informations sur les mécanismes possibles de ces déformations.

À l'appui de ces recherches, des études du processus de déformation plastique de combustibles non irradiés [microscopie électronique] seront entreprises. Elles permettront de juger dans quelle mesure les mécanismes de déformation hors pile contribuent à la déformation sous irradiation.

1.2.4. Remarques sur l'exécution du programme

a) Aspects fondamentaux de nos recherches sur le plutonium

Les recherches que nous entreprenons sur les matériaux combustibles non irradiés ont pour but de permettre l'interprétation de leur comportement sous irradiation.

On pourrait se contenter de mesurer les seules grandeurs directement utilisables pour cette interprétation. On pourrait par exemple, limiter l'étude du diagramme des phases au seul domaine de composition nominale ou probable du combustible dans le réacteur.

Il nous semble que cette méthode ne conduirait pas à une compréhension réelle et qu'il est préférable de situer ces grandeurs utilisables dans un tout scientifiquement cohérent. C'est d'ailleurs ainsi que nous avons agi jusqu'à présent. Nous en donnons quelques exemples ici :

L'étude des diagrammes de phase du système (U,Pu)O a couvert tout le domaine des concentrations. De plus, le diagramme des phases du système binaire Pu-O a été soigneusement étudié.

Les propriétés thermodynamiques à haute température (mesures des tensions de vapeur) des oxydes de plutonium purs ont été mesurées en plus de celles des oxydes mixtes d'uranium - plutonium.

La conductibilité thermique des oxydes à basse et à moyenne température a été étudiée pour compléter les mesures à très haute température, nécessaires à la technologie.

Ceci a d'ailleurs permis d'expliquer pourquoi la conductibilité de l'oxyde mixte est égale ou même supérieure à celle de l'UO₂ aux températures plus élevées. Les études de propriétés optiques des oxydes dans l'infrarouge, utiles à l'évaluation des propriétés thermiques des oxydes, ont été complétées par des études dans les autres régions du spectre, ce qui conduit d'ailleurs à l'évaluation de données thermodynamiques (capacité calorifique).

Nous proposons de poursuivre cette politique dans l'avenir: lorsqu'une étude à caractère purement scientifique peut légitimement prolonger une étude prévue dans le programme de base, nous l'entreprendrons, si toutefois nous disposons du personnel compétent.

De plus, il peut être judicieux d'ouvrir l'Institut aux groupes de recherche fondamentale, des universités par exemple, qui ne pourraient trouver ailleurs la possibilité de réaliser les mesures qui les intéressent sur des actinides hautement toxiques. Il faut en effet se souvenir que l'intérêt scientifique des actinides est considérable puisqu'ils forment, par la configuration de leur couches électroniques, un groupe d'éléments distincts.

b) Commentaires sur le programme d'irradiation

Nous avons énuméré, dans les chapitres précédents, les irradiations que nous entreprendrons. Leur objectif est de mesurer en pile l'effet de l'irradiation sur certaines propriétés définies (conductibilité thermique, fluage ...) ou de préparer des matériaux sur lesquels on étudiera en cellule chaude les phénomènes particuliers (ségrégations, gonflement ...) dont l'investigation figure à notre programme.

Les projets, poursuivant dans leur programme un objectif essentiellement industriel, irradient dans leurs expériences de démonstration un nombre d'aiguilles trop élevé pour en permettre un examen très détaillé. Un tel examen de détail, même s'il est jugé souhaitable, pourrait d'ailleurs ne pas correspondre à un besoin urgent du projet. L'Institut des Transuraniens pourrait accomplir une partie des études qui figurent à son programme sur certains de ces matériaux, mis à sa disposition par les projets.

Ce serait une des tâches du conseil local de programme de juger si un examen demandé par un projet peut être considéré comme objet du programme propre de l'Institut ou doit être considéré comme prestation pour tiers (voir chapitre C).

c) Déroulement dans le temps

Nous avons dit que les composés (U,Pu)(C,N,O) prendront progressivement une importance accrue dans notre programme. Le tableau qui suit donne les dates approximatives de début des travaux sur les composés. Ceci ne signifie nullement que, pour chacun des domaines d'étude, nous prévoyons d'arrêter totalement les travaux sur les oxydes. Il est, par exemple, évident que l'examen en cellule chaude des oxydes et l'interprétation des résultats se poursuivra parallèlement à l'examen des carbures ou nitrures.

Date de début des travaux sur les composés (U,Pu)(C,N,O)

1. Mise au point de la fabrication des échantillons de carbures actuellement en cours
2. Mise au point des méthodes analytiques de la métallographie et des examens par diffraction de rayons X. actuellement en cours
3. Début d'irradiation 1969 (en collaboration avec le CEA)
4. Examens en laboratoire chaud début 1970
5. Etudes de diagramme de phase et de propriétés thermodynamiques fin 1969
6. Expériences de simulation (gradient thermique) milieu 1970
7. Mesures de conductibilité thermique sur matériaux non irradiés milieu 1970
sur matériaux irradiés (en cellule chaude début 1971
sous irradiation fin 1970
8. Etudes du gonflement
Microscopie électronique sur répliques milieu 1970
Microscopie électronique par transmission fin 1970

A.2. L'analyse chimique et isotopique des combustibles rapides irradiés et les données neutroniques

2.1. Cadre du programme

- Au cours du 2e programme, et pour couvrir les besoins propres de son programme d'irradiation, l'Institut des Transuraniens a mis au point des méthodes d'analyses chimique et isotopique applicables aux combustibles irradiés.
Ces méthodes ont été utilisées pour mesurer les taux de combustion et de conversion dans des réacteurs thermiques de puissance (voir rapports semestriels no. 3 et suivants). Leur utilité ne fait pas de doute pour les neutroniciens et les exploitants de réacteur qui trouvent le moyen de vérifier les résultats de leurs calculs basés sur les données neutroniques microscopiques. Nous reviendrons plus loin (activités de service) sur l'application de ces méthodes aux réacteurs thermiques.
- Dans le domaine des réacteurs rapides, un effort dans ce sens devient actuellement désirable. En effet, on dispose de combustibles irradiés jusqu'à des taux de combustion considérables dans des spectres connus et la mesure analytique précise des taux de combustion et de conversion permettra de vérifier les prévisions des calculs.
- Malheureusement, plusieurs données neutroniques sont encore trop mal connues pour permettre une évaluation sûre des résultats analytiques. Le programme que nous résumons ci-après a pour but de combler cette lacune.

2.2. Le programme d'étude

- a) La détermination précise du taux de combustion par l'analyse suppose que l'on dispose d'un isotope moniteur dont le rendement de fission varie peu selon la source de fission. Le ^{148}Nd remplit cette condition dans les spectres thermiques mais rien ne prouve qu'il en est de même dans les spectres rapides.

Nous irradierons des quantités connues (quelques dizaines de mg) de divers isotopes purs d'uranium et de plutonium dans des réacteurs rapides. L'analyse des produits de fission obtenus permettra de sélectionner l'isotope dont le rendement de fission est indépendant de la source de fission.

b) Les isotopes ainsi sélectionnés seront soumis à l'irradiation en spectre rapide afin de déterminer par l'analyse leur section efficace d'absorption effective. De cette manière on définira les corrections éventuellement nécessaires à leur emploi comme moniteur quantitatif de taux de combustion.

c) L'analyse isotopique des éléments lourds irradiés (voir a) permettra en outre de déterminer la valeur de α (rapport des sections efficaces de capture et de fission) des isotopes fissiles, ainsi que les sections efficaces effectives des isotopes fertiles.

d) L'évaluation des résultats de ces études se fera en collaboration avec les physiciens des projets.

A.3. Les activités de soutien scientifiques et les prestations pour tiers.

L'exécution du programme de recherche suppose l'intervention d'équipes de soutien scientifique qui assurent la réalisation des analyses chimiques et radiochimiques et des fabrications d'échantillons.

Ce genre d'activité suppose des mises au point qui donnent lieu à des publications souvent appréciées des techniciens confrontés avec des problèmes similaires dans l'industrie et la recherche. Il y a d'ailleurs une part d'arbitraire dans la hiérarchie des études (objectif ou activité de soutien) et c'est ainsi que nous avons considéré comme objectif distinct le développement des méthodes d'analyse chimique et isotopique des combustibles rapides (A 2).

L'Institut des Transuraniens est doté de l'infrastructure nécessaire à l'accomplissement de telles tâches et fréquemment des organismes extérieurs (autres établissements du CCR ou instituts de recherche ou industriels) sont tentés de faire appel à ces possibilités pour résoudre des problèmes auxquels leurs propres équipements ne permettent pas de faire face.

Ces prestations, dont nous estimons qu'elles pourraient occuper environ 15 agents en moyenne, devraient faire l'objet d'un financement séparé par ceux au bénéfice desquels elles sont accomplies.

En particulier, le laboratoire chaud permettrait, grâce à ses équipements, d'accomplir un nombre beaucoup plus considérable de tâches si le personnel qui y est attaché était plus abondant.

La possibilité offerte par l'Institut de déterminer avec précision les taux de combustion et de conversion des réacteurs thermiques, et, dans une mesure peut-être moindre actuellement (voir A.2.), des réacteurs rapides, suscite chez quelques exploitants de centrales de puissance et neutroniciens un intérêt incontestable puisqu'on dispose ainsi d'une méthode de vérification des résultats des calculs basés sur les grandeurs neutroniques microscopiques.

Il doit être clair que notre but n'est pas ici de nous substituer à des laboratoires industriels, mais de faire face momentanément

à des besoins non encore couverts ailleurs dans la Communauté.

Notre objectif est de développer des méthodes, de les améliorer, de les appliquer à la résolution des problèmes posés par notre programme et de mettre d'autres en mesure de les appliquer à leurs propres objectifs.

Remarquons cependant que la possibilité qui nous est momentanément offerte de mettre nos méthodes à l'épreuve sur des exemples concrets en garantit finalement la qualité.

B - Les Transplutoniens et le Plutonium 238

I. Cadre du programme

- La forte radioactivité (α ou neutrons) des éléments transplutoniens et du plutonium 238 a permis d'en imaginer des applications techniques spécifiques (batteries isotopiques, sources de neutrons ...). Il n'est cependant pas unanimement admis que ces applications répondent à un besoin urgent et rien ne permet encore d'en prévoir un vaste et rapide développement industriel en Europe. Néanmoins, comme ces éléments sont des sous-produits inévitables de l'industrie nucléaire, on pourra difficilement résister à la tentation de les valoriser.

De plus, dans les usines de retraitement des combustibles irradiés et même dans les ateliers de fabrication de combustible on se trouve dès à présent confronté avec le problème de leur manipulation et on peut estimer utile d'acquérir une expérience suffisante pour résoudre certaines difficultés.

- On peut constater que les préalables d'une vaste action Transplutoniens, comparable à celle que mène l'U.S.A.E.C., n'existent pas encore en Europe. Le programme de l'Institut des Transuraniens dans ce domaine restera donc limité. Son objectif sera de contribuer au maintien dans la Communauté d'une compétence suffisante pour autoriser un essor éventuel dans le futur et permettre de faire face aux quelques tâches urgentes qui peuvent se présenter dès à présent.

2. Le programme de l'Institut

L'objectif du programme est de déterminer des propriétés physiques et chimiques des composés solides des transplutoniens. Ceci suppose qu'on synthétise ces composés, qu'on cherche les sources d'approvisionnement les moins coûteuses et qu'on soit en mesure de réaliser les analyses chimiques qui s'imposent.

Ces études concernent donc la totalité des équipes de l'Institut et seront menées parallèlement aux études sur le plutonium.

2.1. Etudes sur les solides

L'application aux transplutoniens de techniques mises au point en vue des études sur le plutonium devrait nous permettre d'acquérir, sans développer de nouveaux instruments, des données fondamentales qui compléteront les connaissances des actinides. De telles études ont déjà été entreprises. Citons la mesure de la tension de vapeur et l'observation métallographique des oxydes d'américium. (Voir Rapports semestriels no. 5, par. 1.2.3. et no. 6, par. 1.1.3.).

Ces études sur les propriétés des solides (oxydes, carbures, nitrures, hydrures ...) seront poursuivies.

2.2. La synthèse des composés solides

Il s'agit ici de la préparation des échantillons destinés aux études fondamentales évoquées au point 2.1. La chimie préparatoire de ces composés étant mal connue, des recherches expérimentales seront nécessaires.

Notons que, dès à présent, un stagiaire étudie chez nous la préparation d'Am métallique de haute pureté (par réduction par le lanthane) qui pourra servir de matériau de départ pour la synthèse de certains composés.

2.3. L'obtention des transplutoniens

a) Il n'entre pas dans nos intentions d'entreprendre un vaste programme d'irradiation en vue d'obtenir des transplutoniens en grande quantité. Lorsque ce sera possible, nous achèterons les éléments nécessaires à nos études.

D'autre part, nous étudierons la possibilité de les récupérer dans les rejets des usines de retraitement des combustibles.

L'Institut a dès à présent acquis de l'expérience dans la séparation transplutoniens - lanthanides par échange d'ions ou extraction par les amines (procédé Tramex). Actuellement des recherches sont en cours sur les extractions par l'acide diethyl hexyl phosphorique (procédé Talspeak). Ces études seront poursuivies et les procédés Tramex et Talspeak seront comparés lors du retraitement de deux cibles irradiées en notre possession. Cette comparaison permettra de sélectionner le procédé dont nous étudierons l'application à la récupération de l'Am et du Cm dans des rejets d'usines de retraitement.

En plus nous étudierons :

- la séparation actinides-lanthanides par entraînement ou précipitation.
- la séparation américium-curium par chromatographie et par précipitation (après oxydation de l'américium).

b) Le programme d'irradiation en vue de la production de transplutoniens sera limité. Il s'agira non d'obtenir des quantités importantes, mais plutôt d'étudier des possibilités éventuelles de production. C'est ainsi que nous examinons pour l'instant la possibilité de créer du ^{238}Pu de grande pureté isotopique par décroissance du ^{242}Cm obtenu par irradiation courte de ^{241}Am . Ceci permettrait une valorisation éventuelle de l'américium et conduirait à un produit particulièrement adéquat pour les applications médicales (rythmeur cardiaque).

Nous envisageons également d'étudier l'irradiation de mélanges d'isotopes lourds extraits des rejets d'usines de retraitement en vue de la production de ^{243}Am et ^{244}Cm purs et, si un besoin se dessine, on pourra envisager la synthèse du ^{252}Cf . Les crédits affectés à ces irradiations pour le programme quinquennal ne dépasseront pas 0,3 MUC.

2.4. Les problèmes analytiques

Des études de chimie analytique et de radiochimie seront nécessaires pour réaliser notre programme. De plus, les résultats de ces études peuvent être utiles aux exploitants des usines de retraitement qui seront confrontés avec des problèmes similaires.

Encore que les méthodes appliquées au plutonium ne soient pas directement utilisables dans le cas des autres actinides, l'équipement disponible à l'Institut convient parfaitement pour faire face à ces problèmes.

2.5. Soutien aux autres institutions de la Communauté

- Dès à présent, des instituts universitaires ou autres nous demandent des échantillons nécessaires à leurs recherches. Il peut être souhaitable de disposer dans la Communauté d'un organisme qui en assure la distribution. L'Institut des Transuraniens pourrait remplir cette fonction.

Moyens:

Pour la période quinquennale et éventuellement sur base des crédits inscrits au budget 1969, majorés de 5% par an, les prévisions sont les suivantes:

- Effectif total (y compris services généraux)	220 agents
- Dépenses de personnel et fonctionnement (titre I net et titre II avec école)	13,15 Muc
- Dépenses de fonctionnement scientifique (voir détails ci-après)	12,15 Muc
- Total	<hr/> 25,30 Muc

* * *

*

Les dépenses de fonctionnement scientifique comprennent:
(Titre III du budget)

- Dépenses forfaitaires (petit matériel, matières consommables, entretien du matériel et des bâtiments)	7,65 Muc
- Achat matières fissiles (4 kg de Plutonium, 2 kg d'Uranium 235 et 150 grammes Americium)	0,30 Muc
- Investissements en gros matériel	0,70 Muc

(Titre V du budget)

- Irradiations (en réacteurs thermiques- capsules instrumentées genre POM et irradiations transplutoniens: 2 Muc; réacteurs rapides - 6 "trefoils" dans le DFR, ou équivalent: 1,5 Muc)	3,50 Muc
	<hr/> 12,15 Muc

* * *

*

Le programme d'étude des transplutoniens représente de l'ordre de 10 % de l'ensemble (y compris les irradiations).