

EMPLOI DE MATIERES NOUVELLES DANS LA TECHNOLOGIE NUCLEAIRE

L'un des principaux objectifs des recherches en technologie nucléaire réside dans la mise au point de matières pour réacteurs capables de résister aux effets de températures élevées et de rayonnements intenses. Le rendement d'une centrale nucléaire - ou plus précisément le rendement de la transformation en électricité de la chaleur qu'elle produit - dépend en partie de la température à laquelle on peut faire fonctionner le réacteur, mais il n'est pas possible de porter la température de fonctionnement jusqu'au point où les éléments combustibles commencent à se détériorer.

Partant de cette considération, on s'est livré à des recherches sur les formes non métalliques de combustibles pour réacteurs, qui ont en général un point de fusion plus élevé que les combustibles métalliques. Sans doute a-t-on utilisé les oxydes d'uranium comme combustibles dès les débuts de la technologie nucléaire, mais on travaille encore beaucoup à améliorer la production et la transformation des combustibles, afin qu'ils puissent satisfaire aux conditions de plus en plus sévères auxquelles ils peuvent être soumis dans un réacteur. En même temps, on poursuit les travaux sur la mise au point d'autres formes de combustibles non métalliques, tels que les carbures, nitrures et siliciures, ainsi que d'autres matières nouvelles pouvant être utilisées pour la fabrication d'éléments de réacteurs autres que les cartouches de combustible.

Une conférence sur la technologie des matières nucléaires nouvelles, réunie à Prague le 1er juillet dernier par l'Agence internationale de l'énergie atomique, a montré que ces travaux sont de nature à améliorer sensiblement les performances des centrales nucléaires, ce qui aura pour effet d'abaisser le prix de revient de l'énergie. De ce fait, le discours d'ouverture que M. Sigvard Eklund, Directeur général de l'Agence, a prononcé à la conférence et l'allocation de clôture de M. Cestmir Simane, Directeur de la Division des fournitures techniques de l'AIEA, ont été empreints d'optimisme.

M. Eklund a déclaré que l'expérience acquise tout récemment dans l'exploitation des centrales nucléaires montre que les températures de fonctionnement, les taux de combustion, les facteurs de charge et la durée des centrales étaient supérieurs aux prévisions et qu'on peut donc se montrer assez optimiste quant à l'avenir de l'énergie d'origine nucléaire. Toutefois, dans les réacteurs actuellement en service, les températures maximums imposées par le combustible et par les matériaux de gai-



M. Sigvard Eklund, Directeur général de l'AIEA (au centre), parlant à la séance d'ouverture de la Conférence de Prague. Autres personnalités, de gauche à droite: MM. Joseph C. Delaney (AIEA), Witold Lisowski (AIEA), Karel Petrzelka (Représentant permanent de la Tchécoslovaquie auprès de l'AIEA), Jan Neumann (Président de la Commission de l'énergie atomique tchécoslovaque), Jaroslav Kozesnik (Vice-Président de l'Académie des sciences de Tchécoslovaquie), Adolf Svoboda (Maire de Prague), Cestmir Simane (AIEA) et Alexander Pushkov (AIEA)

nage interdisent à la centrale d'atteindre son rendement optimum. Par exemple, avec les gaines en Magnox (c'est-à-dire celles qu'on utilise pour l'uranium naturel "brûlé" dans les réacteurs de puissance en Grande-Bretagne), la température de la vapeur ne doit pas dépasser 400°C; le rendement net des usines comportant des réacteurs Magnox ou des réacteurs à eau ordinaire et à uranium enrichi est d'environ 30 %. Au contraire, avec de l'oxyde d'uranium gainé d'acier inoxydable, la vapeur pourra atteindre des températures d'environ 480°C. Avec du carbure d'uranium dispersé dans du graphite, on pourrait obtenir de la vapeur à 540°C, ce qui donnerait un rendement net d'environ 35 % pour la centrale.

Un autre avantage des combustibles non métalliques, a indiqué M. Eklund, réside dans la possibilité d'atteindre de meilleurs taux de combustion, ces matières étant stables sous l'effet de la température et des rayonnements. Cet avantage permettrait de mieux utiliser le combustible et de ralentir le rythme des rechargements. Toutes ces considérations montrent bien, a dit M. Eklund, tout le parti qu'on pourra tirer des cartouches de combustible non métallique pour rendre concurrentielle l'énergie d'origine nucléaire.

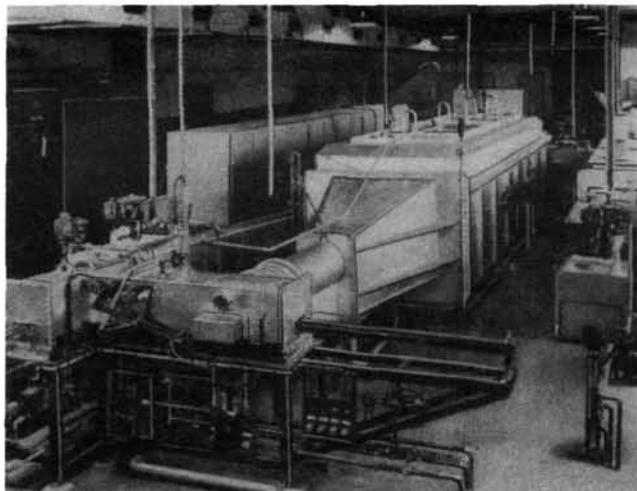
Lors de la séance de clôture, M. Simane a fait remarquer que bien que l'objet de la conférence fût l'emploi des matières nouvelles utilisées dans les techniques nucléaires, les discussions ont porté principalement sur la mise au point de nouvelles formes de combustibles pour réacteurs. Les oxydes d'uranium, a-t-il rappelé, sont déjà utilisés depuis longtemps, mais de toute évidence on n'a pas tiré parti de toutes leurs possibilités. Plusieurs problèmes se posent (par exemple celui que constitue la basse conductivité thermique des oxydes d'uranium à haute température), mais comme on l'a constaté au cours des débats, certains travaux encourageants visent à résoudre ces problèmes. C'est surtout à cause des difficultés dues à la faible conductivité des oxydes que l'on se tourne de plus en plus vers la mise au point de carbures combustibles; la production et la transformation des carbures d'uranium en vue de leur utilisation comme combustibles pour réacteurs ont fait l'objet de plusieurs intéressants mémoires. M. Simane s'est déclaré persuadé que les travaux dans ce domaine permettront de faire fonctionner les réacteurs à des températures plus élevées que celles que l'on atteint actuellement.

La conférence, qui a duré cinq jours et a tenu neuf sessions, a examiné les questions relatives à la technologie de la production et de la transformation des combustibles non métalliques. On y a également présenté des mémoires sur l'expérience acquise jusqu'à présent dans l'utilisation de ces combustibles, soit dans des réacteurs, soit au cours d'essais préliminaires. La conférence a examiné également la question de l'utilisation de matières nouvelles pour la fabrication d'éléments constitutifs de réacteurs autres que les cartouches de combustible.

OXYDES COMBUSTIBLES

La plus grande partie de la discussion sur les oxydes combustibles a porté sur les méthodes de préparation du bioxyde d'uranium et sur sa transformation en éléments combustibles pour réacteurs; la raison en est que le comportement de ce combustible dépend dans une grande mesure des antécédents de la matière et des procédés utilisés pour fabriquer les éléments combustibles. Parmi les principales opérations que comporte cette transformation, on distingue : 1) la réduction de l'oxyde d'uranium, riche en oxygène, extrait des gisements de minerai, de façon à former l'oxyde le moins riche en oxygène, c'est-à-dire à obtenir du bioxyde d'uranium (UO_2); 2) le "frittage" ou la densification de la poudre de bioxyde en vue de la rendre extrêmement compacte, sous forme de pastilles ou de petits grains fortement agglomérés entre eux. Le frittage est souvent effectué par chauffage et compression.

Plusieurs participants ont présenté des mémoires sur les méthodes de préparation du bioxyde d'uranium, notamment des spécialistes tchécoslo-



Vue générale d'un four pour le frittage industriel de l'oxyde d'uranium (Communication de R. Hauser et A. Porneuf)

vaques (G. Landspersky et coll.) qui ont décrit les modifications allotropiques intervenant lors de la fabrication du bioxyde d'uranium à partir du biurate d'ammonium. D. Kolar et deux autres spécialistes yougoslaves ont traité de la conversion de l'hexafluorure d'uranium (UF_6) en bioxyde d'uranium (UO_2). Au cours des travaux qui font l'objet de leur mémoire, ils ont préparé un fluorure complexe d'uranium et d'ammonium par réduction d'hexafluorure d'uranium avec du gaz ammoniac à $40^\circ C$; le produit obtenu a été retenu dans des précipitateurs électriques et transformé en bioxyde d'uranium par hydrolyse à chaud avec de la vapeur d'eau et de l'hydrogène.

Dans diverses usines françaises, on produit du bioxyde d'uranium fritté par réduction du trioxyde provenant de la calcination d'un uranate d'ammonium précipité. M. Delange (France) a décrit dans un mémoire les différents modèles d'appareillage et les modes opératoires utilisés pour les opérations de précipitation, de filtration, de calcination et de réduction. Deux autres spécialistes français (R. Delmas et J. Holder) ont fait un exposé sur la préparation du bioxyde d'uranium destiné à la fabrication par frittage du combustible du réacteur EL-4; il s'agit d'un réacteur à uranium enrichi et à eau lourde, refroidi par un gaz, actuellement en cours de construction en France.

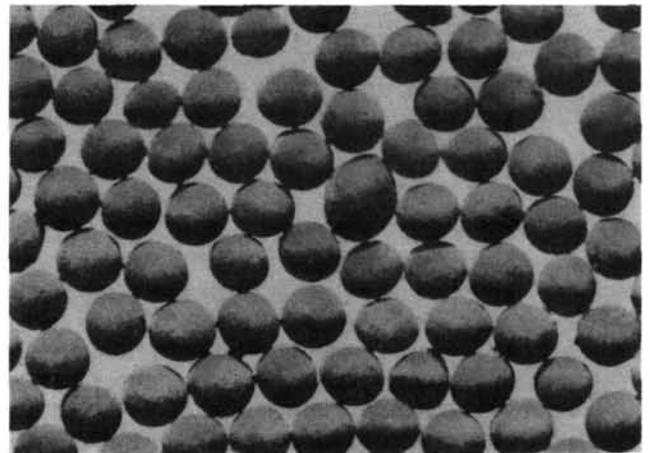
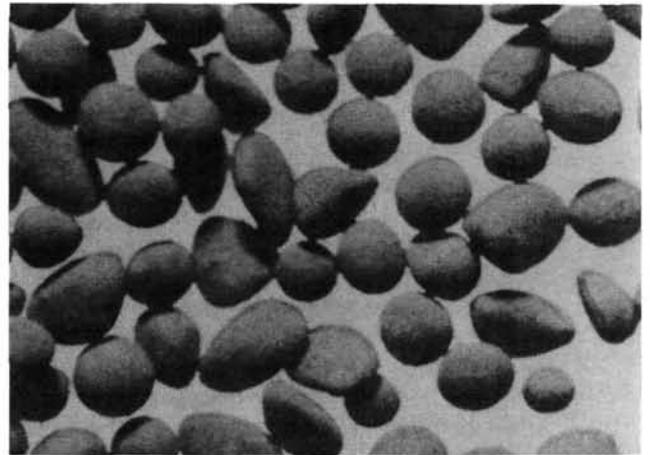
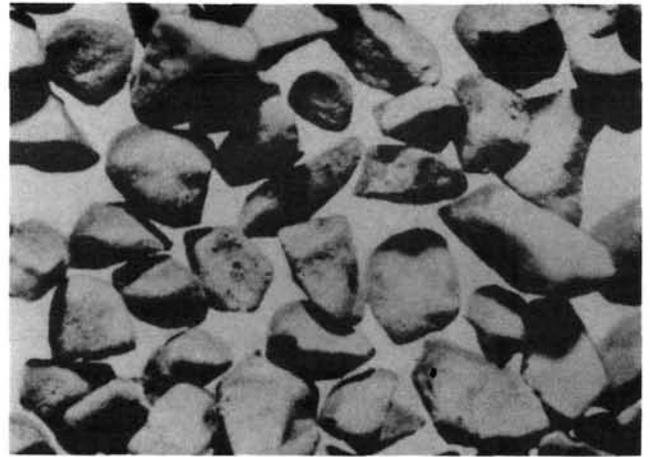
Les techniques de frittage ont été étudiées dans un certain nombre de mémoires. R. Hauser et A. Porneuf (France) ont décrit un four continu pour le frittage industriel du bioxyde d'uranium. Ce four se caractérise par l'automatisme de fonctionnement, un contrôle rigoureux des atmosphères de pré-frittage et de frittage, une grande souplesse de réglage de la température et une production importante (5 tonnes d'oxyde d'uranium par mois). Il peut fonctionner en continu jusqu'à $1700^\circ C$; le frittage se fait en atmosphère d'ammoniac craqué ou d'hydrogène pur.

Un mémoire présenté par des spécialistes italiens (C. Bondesan et coll.) décrit un procédé de fabrication de petits éléments sphériques en bioxyde d'uranium fritté, consistant à mouler les sphères et à les soumettre à une méthode spéciale de pressage; d'autres techniciens italiens (E. Brutto et coll.) ont traité d'essais de choc thermique effectués sur ces éléments sphériques. Dans un mémoire sur le comportement thermique d'éléments combustibles à oxyde d'uranium, H. Andriessen et J. M. Leblanc (Belgique) expliquent que la puissance calorifique qui peut être extraite d'un élément combustible est limitée, d'une part par la conductivité thermique effective de cet élément et, d'autre part, par la température centrale maximum permise. Ils font part des expériences qu'ils ont réalisées et dont l'objectif consistait à a) déterminer la variation, en fonction de la température, de la conductivité thermique effective d'éléments combustibles à oxyde d'uranium densifiés suivant différentes techniques (vibration, rétreinte, etc.); b) évaluer l'interférence des modifications structurales du matériau (frittage, grossissement du grain et fusion) sur sa conductivité thermique.

On a présenté plusieurs autres travaux sur la conductivité thermique des oxydes d'uranium combustibles. R. Caillat et coll. (France) ont présenté un rapport sur des mesures en pile de la conductivité thermique de l'oxyde d'uranium faites dans le réacteur français EL-3.

En examinant quelques-uns des progrès récents accomplis dans la technologie du bioxyde d'uranium, J. A. L. Robertson (Canada) a fait remarquer que des réacteurs au bioxyde d'uranium fonctionnent normalement depuis plusieurs années et que par conséquent on n'en est plus à se demander si les performances de cette matière sont satisfaisantes. L'objectif actuel des recherches n'est plus de démontrer les possibilités de ce combustible, mais de réduire l'élément du prix de revient de l'énergie imputable au combustible en abaissant le coût de sa transformation et en améliorant ses performances. En ce qui concerne les trois facteurs limitatifs de cette amélioration, à savoir la répartition des températures, la libération des produits de fission et les contraintes dans la gaine dues à la dilatation thermique du combustible, M. Robertson a constaté que des progrès importants ont été accomplis récemment dans la compréhension de ces trois phénomènes.

En ce qui concerne la répartition des températures, il a fait état d'une découverte récente qui a été établie qu'un monocristal de bioxyde d'uranium avait une très forte conductivité thermique à haute température (au lieu d'une conductivité décroissant en fonction de la température). D'autres recherches poursuivies à Chalk River ont permis d'expliquer de quels facteurs dépendait cette augmentation de la conductivité. On a également accompli des progrès de même ordre dans la compréhension des deux autres fac-



Ces trois photographies, extraites de la communication de H. Lloyd, montrent l'arrondissement progressif de granules de bioxyde d'uranium par giration. En haut, les granules avant l'opération; au milieu, après quatre heures de giration; en bas, après neuf heures de giration

teurs : dégagement de produits de fission gazeux libérés par le combustible et distension des gaines d'éléments combustibles à la suite de la dilatation thermique du combustible. M. Robertson a déclaré que la possibilité que l'on a maintenant de faire des mesures en pile permettra de déterminer si la mise au

point de nouveaux types de combustibles offre des avantages économiques. En attendant, l'amélioration continue des éléments à bioxyde d'uranium fritté composés de barreaux à géométrie simple suscitera une compétition serrée.

On procède actuellement dans plusieurs pays à d'importantes recherches technologiques pour mettre au point des produits qui combinerait les qualités des matières céramiques (non métalliques) et celles des métaux. Ces produits, appelés cermet, sont constitués par des particules non métalliques dispersées dans une matière métallique appelée matrice. On cherche surtout à résoudre ainsi le problème que pose la basse conductivité des oxydes d'uranium à haute température, la matrice métallique constituant un bon conducteur.

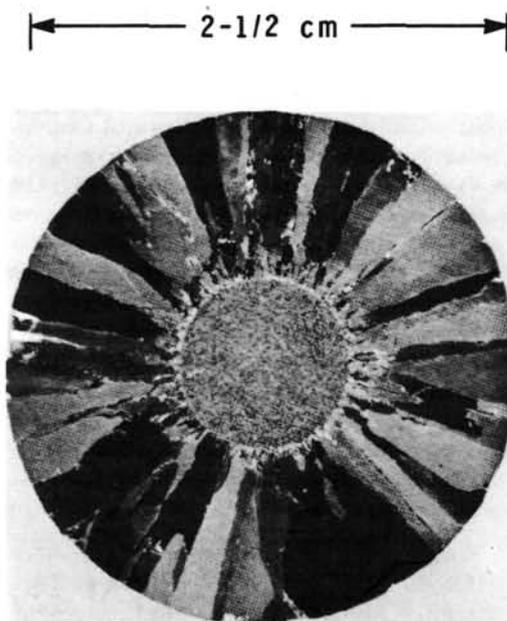
On a déjà beaucoup travaillé à la mise au point de divers cermet et on a utilisé avec succès dans plusieurs réacteurs américains des plaques de bioxyde d'uranium dispersé dans de l'acier inoxydable. Au sujet de ces formes d'éléments combustibles, H. Lloyd (Royaume-Uni) a indiqué que, dans la plupart des cas, la teneur en bioxyde d'uranium du combustible en plaques était assez réduite, et il a décrit des expériences portant sur les possibilités de fabriquer des cermet d'une teneur plus élevée en bioxyde d'uranium. Il a obtenu des résultats encourageants qui ont montré que l'on pouvait fabriquer des plaques de cermet en UO_2 et acier inoxydable contenant de 30 à 50 % d' UO_2 .

Un autre spécialiste britannique (J. Williams) a étudié des cermet dans lesquels les phases fissiles et fertiles sont constituées par les bioxydes de plutonium, d'uranium et de thorium et la matrice par des oxydes de béryllium, d'aluminium et de magnésium. Dans son mémoire, l'auteur examine la possibilité d'utiliser ces cermet dans des réacteurs à haute température, au point de vue de l'intégrité du combustible et de sa transformation. Il fait observer qu'on peut recourir à diverses méthodes pour préparer des particules de produits fissiles et fertiles, pour les revêtir et pour les incorporer dans des matrices à densité élevée.

Six spécialistes soviétiques ont examiné certains phénomènes qui se produisent dans le bioxyde d'uranium en dispersion dans une matrice (S. T. Kono-béevsky et coll.). Les auteurs exposent dans leur mémoire certaines données relatives à l'effet de taux de combustion élevés sur la structure et la période de réseau du bioxyde d'uranium, ainsi qu'à l'interaction du bioxyde d'uranium et de l'aluminium pendant l'irradiation. Un autre mémoire soviétique (V. E. Ivanov et coll.) décrit certaines propriétés des cermet à base d'uranium.

Deux spécialistes français (J. Doumerc et R. Hauser) ont étudié une autre possibilité qui con-

siste à utiliser des éléments combustibles formés d'un noyau de thorine et d'un anneau d'oxyde d'uranium. Ils font remarquer que les limites pratiques de l'emploi de combustibles nucléaires à base de pastilles d'oxyde d'uranium ont pour origine les températures élevées qui règnent dans de tels éléments et les gradients thermiques abrupts qui en résultent. Ils décrivent un travail ayant pour objet d'étudier les gains de puissance que l'on peut attendre de la concentration de la matière fissile, donc des sources de chaleur, à la périphérie du combustible. La partie centrale, chargée en matière fertile, n'intervient dans la production d'énergie que pour une moindre part, et en fin de service seulement. En outre, elle peut tolérer des températures maximums légèrement supérieures à celles qui sont admises dans la matière fissile.



Coupe d'un cylindre de bioxyde d'uranium (Communication de G.E. Benedict et coll.)

Un mémoire présenté par cinq spécialistes américains (G. E. Benedict et coll.) rend compte de travaux effectués aux laboratoires de Hanford sur les techniques de fabrication d'oxydes combustibles présentant des propriétés particulières. Les auteurs indiquent qu'en utilisant comme milieu réactionnel des chlorures fondus, on est parvenu à produire, à des températures relativement basses, des bioxydes d'uranium et de plutonium cristallins, ainsi que des solutions solides de divers mélanges d'oxydes. Des travaux préparatoires ont montré que ces techniques peuvent également s'appliquer très utilement à la préparation d'autres combustibles non métalliques.

CARBURES ET AUTRES MATERIAUX

Comme on l'a indiqué précédemment, il semble que les carbures combustibles soient appelés à un grand avenir, surtout si l'on envisage la construction de réacteurs à neutrons rapides. On a présenté à la conférence plusieurs travaux sur la production des carbures d'uranium et de plutonium et sur leur transformation en éléments combustibles.

On peut préparer des carbures d'uranium par réduction du bioxyde d'uranium par le carbone. La tendance oxydante du bioxyde d'uranium constitue une difficulté mais, selon un mémoire de J. A. B. Lowell (Afrique du Sud), on peut résoudre le problème en remplaçant le bioxyde d'uranium par l'uranate d'urane stable (U_3O_8). Lowell indique deux méthodes de préparation du carbure à partir de l'uranate d'urane stable (U_3O_8); il a préparé par ces méthodes des échantillons satisfaisants de monocarbure d'uranium et de bicarbure d'uranium, ainsi que des cermet de monocarbure d'uranium et d'uranium métallique.

Rendant compte de travaux sur le carbure d'uranium faits dans les laboratoires de la Commission espagnole de l'énergie atomique, H. Bergua et A. Fornes font savoir qu'ils produisent du carbure d'uranium à partir d'uranium métallique lorsqu'ils ont besoin de petites quantités et à partir du bioxyde d'uranium lorsqu'ils veulent obtenir de grandes quantités. Dans le processus de fabrication à partir de l'uranium métallique, l'uranium est tout d'abord réduit en poudre fine, qui est ensuite mêlée à de la poudre de graphite; le mélange est comprimé en pastilles que l'on soumet au frittage ou que l'on place directement dans un four à arc. Lorsqu'ils partent du bioxyde d'uranium, ils utilisent la réaction de réduction du bioxyde par le carbone.

J. Vangeel (Belgique) décrit des méthodes de stabilisation du monocarbure d'uranium et de production du carbure monphasé et examine le processus par lequel la fusion de carbures d'uranium en présence d'oxygène et d'azote permet d'obtenir un carbonitride d'uranium monphasé.

En examinant le comportement sous frittage de poudres de carbures, L. E. Russel (Royaume-Uni) indique que l'oxydation des poudres fines utilisées inhibe leur aptitude au frittage, et il rendra compte d'expériences qui permettent d'expliquer jusqu'à un certain point le mécanisme de cette inhibition. Indépendamment de ce travail, il a étudié quelques aspects de la structure et des propriétés des alliages uranium-carbone et uranium-plutonium-carbone. Un autre mémoire britannique ayant trait aux carbures combustibles (R. Ainsley et coll.) porte sur des études relatives à la préparation de ces carbures effectuée en réduisant directement des oxydes par le carbone, sous vide, à des températures variant entre 1 300 et 1 800°C. Les carbures ainsi produits ont

été frittés dans diverses atmosphères gazeuses et sous vide et l'on a obtenu des densités élevées.

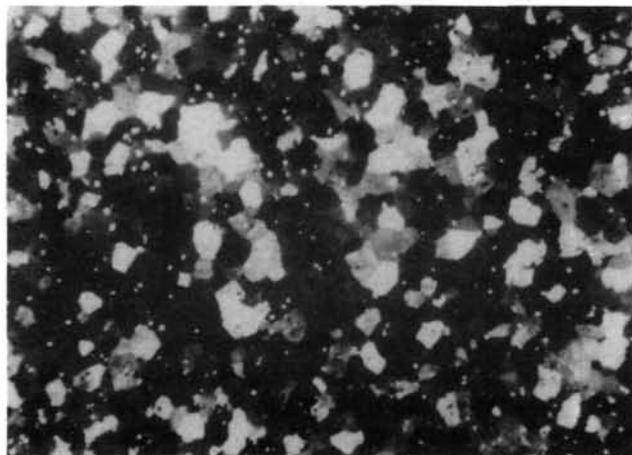
Un mémoire sur les effets des rayonnements dans le carbure d'uranium, dû à B.G. Childs et J.C. Ruckman (Royaume-Uni), donne les résultats de recherches sur le comportement sous irradiation du carbure d'uranium moulé, qui avait fait l'objet d'un mémoire présenté l'année dernière au colloque de l'AIEA sur les effets des rayonnements dans les solides et les matériaux pour réacteurs.

La possibilité d'employer le carbure d'uranium comme combustible nucléaire a conduit au développement de divers procédés de densification de ce carbure. Un mémoire de A. Porneuf et R. Häuser (France) décrit les résultats de l'étude, de la mise au point et du développement industriel d'un procédé de fabrication de barreaux par fusion à l'arc et coulée.

R. Liebmann et deux autres spécialistes de la République fédérale d'Allemagne ont présenté un compte rendu d'études d'éléments combustibles sphériques non métalliques pour le réacteur à haute température, refroidi par un gaz, de la société Brown-Boveri/Krupp Reaktorbau GmbH. On a retenu et mis au point deux types différents d'éléments combustibles. Dans le premier type, le noyau combustible de la sphère est constitué par un mélange de bicarbure d'uranium et de graphite, et dans le second il s'agit d'une solution solide de monocarbure d'uranium dans du monocarbure de zirconium. Des données sur la diffusion des produits de fission libérés par le noyau combustible figurent dans un autre mémoire.

Des auteurs ont également présenté des mémoires sur d'autres matériaux qui peuvent être utilisés dans la technologie nucléaire. Plusieurs de ces

Microstructure d'une solution solide de carbure de zirconium et de carbure d'uranium obtenue par compression à chaud (Communication de R.B. Kotelnikov et coll.)



études traitent des possibilités d'utiliser le béryllium comme ralentisseur et comme réflecteur de neutrons dans un réacteur. La métallurgie des poudres d'oxyde de béryllium a fait l'objet de travaux présentés par J. S. O'Neill et D. T. Livey (Royaume-Uni). Trois spécialistes français (R. Beauge et coll.) ont étudié les effets de l'irradiation aux neutrons sur les propriétés physiques et les caractéristiques mécaniques de briques d'oxyde de béryllium utilisées comme réflecteurs de neutrons.

Selon un mémoire présenté par six auteurs soviétiques (V. E. Ivanov et coll.), les cermetts au magnésium et les alliages de magnésium-béryllium peuvent trouver une large application dans la technique nucléaire, en raison de leur grande stabilité aux températures élevées. Les auteurs ont donné les résultats de travaux sur la mise au point de cermetts et d'alliages ayant une résistance élevée à la chaleur, obtenus grâce aux méthodes de la métallurgie des poudres.

LE DEUX CENTIEME CONTRAT DE RECHERCHE

L'Agence internationale de l'énergie atomique a passé un contrat de recherche avec le Département d'anatomie et d'histologie de l'Université Lovanium de Léopoldville (Congo) en vue d'études sur les affections du tissu osseux à l'aide de techniques nucléaires. L'Agence fournira le matériel et les radioisotopes nécessaires à ces recherches.

Ce contrat de recherche est le deux centième conclu par l'Agence avec des instituts et des laboratoires scientifiques d'environ 50 pays. Ces contrats sont l'expression d'une nouvelle forme de collaboration scientifique et un stimulant de la recherche scientifique sous des auspices internationaux. En finançant des travaux de recherche, l'Agence contribue à la solution de problèmes scientifiques communs et stimule l'activité des centres scientifiques récemment créés dans des pays sous-développés. En outre, certains contrats ont été passés pour des recherches sur des questions directement liées aux tâches mêmes de l'Agence.

Chaque contrat tend à répondre à l'un au moins de ces trois besoins. Certains contrats concernent des recherches dont tous les Membres de l'Agence, ou du moins une grande partie, pourront bénéficier; ils comblent certaines lacunes dans les travaux nationaux de recherche ou ont trait à des problèmes pour lesquels la coordination internationale des recherches est particulièrement souhaitable. Tels sont notamment les contrats concernant la radiobiologie ou la radioprotection; comme exemple de coordination, on peut citer les contrats de recherche passés avec des instituts de différents pays pour étudier le problème des engrais dans la riziculture (voir Bulletin, Vol. 5, No 3). D'autres contrats de recherche sont destinés, du moins partiellement, à aider les instituts scientifiques de pays sous-développés à amé-



Dans le cadre du programme de recherches coordonnées sur le riz, on compare l'efficacité de plusieurs catégories d'engrais phosphatés pour 10 terres de rizières dans la serre de l'Agence, en utilisant du phosphore-32 comme indicateur. Les échantillons de sols ont été envoyés par des titulaires de contrats de recherche en Asie, en Afrique et en Europe

liorer leurs moyens et leurs méthodes de recherche. De tels contrats ont été passés dans plusieurs pays pour des recherches sur les applications des radioisotopes en médecine et en agriculture, par exemple. En troisième lieu, des contrats de recherche sont conclus dans le cadre des activités mêmes de l'Agence, notamment sur les questions de santé et de sécurité et sur les garanties. C'est ainsi que plusieurs contrats de recherche ont été passés pour des études sur la gestion des déchets radioactifs, qui serviront à élaborer un règlement international ou des manuels, ou pour des études sur l'analyse non destructive des matériaux, qui seront utiles pour la mise au point des méthodes d'application des garanties.