Tester les matériaux sous irradiation

ans un réacteur nucléaire. les matériaux sont soumis à rude épreuve : ils subissent des sollicitations thermomécaniques et chimiques, mais aussi et surtout, une irradiation par les neutrons. Par ailleurs, les réactions nucléaires qui ont lieu dans le combustible créent des produits de fission et d'activation qui modifient les propriétés physicochimiques du matériau combustible. Les matériaux de structure ou composant l'assemblage combustible doivent donc satisfaire à un cahier des charges exigeant : il faut assurer la bonne tenue mécanique de l'assemblage combustible et des structures internes du réacteur, garantes de la géométrie du cœur. La cuve du réacteur ne doit pas se fragiliser sous irradiation. Les crayons combustibles doivent rester étanches pour éviter le relâchement de produits de fission radioactifs dans le circuit primaire du réacteur. Les phénomènes à maîtriser concernent la corrosion par le fluide caloporteur, la fatigue thermique, la fragilisation et la déformation des matériaux sous irradiation, la migration de produits de fission et de défauts cristallins dans

les solides. Tous ces phénomènes sont intimement couplés, ce qui rend difficile leur étude par modélisation ou par des expériences à effets séparés. Celles-ci sont indispensables pour la compréhension et la maîtrise des phénomènes cités, mais elles ne sauraient suffire pour qualifier les matériaux de cuve, de structure, de gaine ou de combustible, conditions indispensables dont dépendent les performances du réacteur, et sa sûreté. Les réacteurs « d'irradiation de matériaux » répondent, pour une large part, à ce besoin : ils permettent de faire des essais analytiques sur échantillons et des qualifications globales de composants à l'échelle 1, dans des conditions de température, pression, environnement chimique et d'irradiation représentatives de celles rencontrées dans des réacteurs industriels en conditions nominales ou accidentelles. Ils représentent la pièce maîtresse de la panoplie d'outils permettant la qualification des composants des réacteurs nucléaires. Ce sont de grands outils de recherche, existant à quelques exemplaires seulement sur chaque continent.



#### Le réacteur OSIRIS

#### La raison d'être du réacteur OSIRIS

Le réacteur OSIRIS et les cellules chaudes associées constituent un outil permettant d'irradier des échantillons ou des objets technologiques sous haut flux de neutrons et d'évaluer les effets de cette irradiation. Le réacteur OSIRIS (fig. 61) et les installations attenantes, deux **cellules chaudes**\* blindées et le réacteur ISIS, répondent à un très grand nombre de besoins d'irradiations expérimentales et industrielles.

Décidé en 1963, il est venu compléter les réacteurs ayant même vocation et déjà en service en France, à cette époque : « EL3 », fonctionnant à Saclay depuis 1957, « SILOÉ », à Grenoble, et « PÉGASE », à Cadarache. Même si d'autres réacteurs européens avaient récemment vu le jour à la même époque, l'ampleur de la tâche pour améliorer les connaissances sur l'évolution en réacteur des caractéristiques thermomécaniques des matériaux devant être utilisés dans les centrales du parc électronucléaire français nécessitait la construction d'un nouveau réacteur de recherche performant. OSIRIS a été implanté à Saclay pour profiter de l'infrastructure technologique considérable qui existait : laboratoire de haute activité, laboratoire d'examen des combustibles Irradiés, installations de préparation de radioéléments, halls de montage, d'essais ou de mesures, à proximité de l'industrie et des laboratoires de recherche parisiens.

L'objectif de ce réacteur a été de réaliser des irradiations jusqu'à des **flux intégrés**\* en neutrons représentatifs de ceux rencontrés par les combustibles ou matériaux de structure des réacteurs électrogènes (soit environ 10<sup>22</sup> n/cm<sup>2</sup>). Afin de limi-



Fig. 61. Vue d'ensemble du réacteur OSIRIS.



Fig. 62. Vue du cœur d'OSIRIS.

ter la durée d'irradiation à une valeur raisonnable, de l'ordre de l'année, il a fallu rechercher des flux instantanés voisins de 10<sup>14</sup> n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>.

Concernant les expériences, l'objectif a été de conserver dans OSIRIS une accessibilité maximale au cœur (fig. 62), ce qui a conduit au choix d'un bloc réacteur immergé dans une piscine, sans caisson de pressurisation.

Le choix de la puissance de 70 MW a résulté d'un compromis entre :

- Un besoin de flux de neutrons rapides élevé dans des volumes expérimentaux notables ;
- une puissance compatible avec les possibilités de réfrigération en eau du Centre de Saclay ;
- une puissance ne nécessitant pas de dispositions techniques trop complexes (pressurisation faible et échauffement gamma d'intensité moyenne).

#### La conception d'OSIRIS

L'importance des flux instantanés dans les emplacements expérimentaux au sein du réacteur, le volume du cœur (issu du choix d'utiliser des éléments combustibles du type de ceux de PÉGASE) ont conduit à une puissance spécifique de l'ordre de 400 kW par litre de volume de cœur.

Le choix de la pile piscine sans pressurisation conduit à une limite quant à la vitesse de l'eau entre les plaques combustibles, et donc, le niveau de température à partir duquel appa-

 $(\mathbf{e})$ 



Fig. 63. Disposition du bloc réacteur d'OSIRIS dans la piscine et arrangement de la circulation de l'eau.

raît l'ébullition. Par ailleurs, la température de la piscine doit rester inférieure à 40 °C, ce qui entraîne, pour de fortes puissances totales, des dépenses importantes sur les échangeurs de chaleur.

Afin de réaliser un cœur à forte puissance spécifique, sans recourir à un réacteur pressurisé qui ferait perdre l'accessibilité aisée au cœur et nécessiterait des circuits d'eau complexes, le cœur a été placé dans un caisson au fond d'une piscine de grande profondeur. L'option a été prise de faire circuler l'eau de bas en haut du cœur, ce sens ascendant étant, de surcroît, celui de la convection naturelle, ce qui permet de s'affranchir des délicats problèmes dus au renversement du sens de circulation de l'eau, en cas d'accident.

Le caisson du cœur est surmonté par une cheminée, dans laquelle débouche une tuyauterie latérale qui reprend intégralement le débit ascendant.

Pour éviter des remontées de l'eau du circuit primaire vers la piscine, un courant descendant est créé dans la cheminée d'environ 150 m³/h. Cet apport d'eau dans le circuit primaire cœur est compensé par un retour du même débit vers la piscine, en sortie d'échangeur (fig. 63).

Le choix d'une circulation d'eau ascendante dans le cœur pose le problème du risque d'envol des éléments combustibles et des dispositifs expérimentaux, soumis à une force hydrodynamique supérieure à leur poids. Ces éléments, ainsi que les boîtes à eau recevant les dispositifs expérimentaux, sont donc verrouillés en position basse, en plus de leur fixation sur la grille supérieure. Les barres de commande\* ont, en outre, été munies de contrepoids pour assurer leur bon fonctionnement.



Fig. 64. La salle des mécanismes d'OSIRIS

Le souci constant d'accessibilité au cœur a conduit, par ailleurs, à placer les mécanismes de commande des barres de commande dans une chambre située sous la piscine (fig. 64).

Le cœur actuel d'OSIRIS est composé de :

- 38 éléments combustibles standard à plaques (fig. 65) ;
- · 6 éléments de commande comportant une partie absorbante en hafnium ·
- 7 éléments réflecteurs en béryllium (situés sur la face sud du cœur), dont certains peuvent recevoir des dispositifs d'irradiation dans un trou central.

En fin de cycle d'irradiation\*, environ un élément sur six est déchargé pour être remplacé par un élément combustible neuf.

OSIRIS utilise un combustible constitué par un alliage U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> -Al, de type siliciure.



Fig. 65. Maguette d'un élément combustible standard d'OSIRIS.



L'élément combustible standard est constitué de 22 plaques, chaque plaque contenant l'alliage  $U_3Si_2$  Al d'épaisseur 0,51 mm gainé par deux couvercles en alliage d'aluminium d'épaisseur 0,38 mm. La largeur entre plaques du canal de refroidissement est de 2,46 mm.

Les parois des boîtiers portant les plaques de combustible contiennent du bore (**poison neutronique**\* consommable) destiné à écrêter les pics de flux neutronique dus à l'excès de réactivité disponible en début de cycle d'irradiation. Il est ainsi possible de réaliser des cycles de fonctionnement longs (4 à 5 semaines).

Chaque élément de commande comprend 17 plaques combustibles de constitution identique à celle des éléments standards, surmontées par un élément absorbant en hafnium.

La réfrigération du cœur (fig. 66) est assurée par un **circuit primaire**\* cœur, dont le débit est de 5 500 m<sup>3</sup>/h. La température en entrée cœur est de l'ordre de 37 °C, pour atteindre 45 °C en sortie cœur. Le circuit primaire échange ses calories vers le circuit secondaire *via* des échangeurs à simple passage. Le débit du **circuit secondaire**\* est de 5 100 m<sup>3</sup>/h ; ce circuit comporte une tour de réfrigération qui réalise l'évaporation de 70 t/h d'eau, lorsque le réacteur fonctionne à 70 MW. Les caractéristiques physico-chimiques de l'eau secondaire sont maintenues grâce à l'apport équivalent de 70 t/h d'eau, extrait du bac de recondensation de la tour de réfrigération, et à son remplacement en continu dans ce bac par un apport d'eau extérieur équivalent de qualité adéquate.

Les **enceintes de confinement**\* des réacteurs OSIRIS et ISIS sont des enceintes à fuites contrôlées. La ventilation a donc pour objectif de maintenir les locaux en constante dépression, afin de confiner les éventuels gaz et aérosols radioactifs. Une filtration de très haute efficacité retient les particules de diamètre supérieur à 0,15  $\mu$ m, et des pièges à iode interviennent en cas d'incident de type rupture de la gaine d'un élément ou d'un échantillon combustible.

#### Le fonctionnement d'OSIRIS

Depuis 1966, trois types de combustibles se sont succédé dans OSIRIS. Le combustible « UAI », jusqu'en 1979, puis le combustible « caramel » à base d'UO<sub>2</sub> à faible enrichissement, adopté pour satisfaire les recommandations de l'AIEA sur l'utilisation d'uranium faiblement enrichi dans les réacteurs de recherche, et, enfin, le combustible « siliciure », adopté depuis 1997.

Le tableau 10, page suivante, indique les caractéristiques principales de ces combustibles.



Fig. 66. Principe de réfrigération du cœur.

Les réacteurs nucléaires expérimentaux

#### Tableau 10

Principales caractéristiques du combustible utilisé -flux neutroniques obtenus avec ces combustibles				
	UAI	CARAMEL UO <sub>2</sub>	SILICIURE U3Si2AI	
Enrichissement (%)	93,15	7,5	19,75	
Nombre d'éléments standards en cœur	33	38	38	
Nombre d'éléments de commande en cœur	6	6	6	
Gainage	AG3	ZY4	AG3	
Masse U5 (kg)	11,63	21,6	13,6	
Masse Utot (kg)	15,52	368	97	
Masse du cœur (kg)	480	982	574	
Échauffement gamma emplacement intérieurs (W/g)	15	8	14	
Masse U5 /élément (g)	390,5	662	458,35	
Énergie extractible par élément combustible (BU de rejet)	195 MWj (BU 60 %)	341 MWj (BU 52 %)	239 MWj (BU 60 %)	
Consommation U5 par MWJ (g)	1,2	1,014	1,156	
Flux de neutrons thermiques en 24 (10 <sup>14</sup> n/cm <sup>2</sup> .s)	2,9 ( <mark>en 26</mark> )	1,52	1,83	
Flux de neutrons thermiques en 44 (10 <sup>14</sup> n/cm <sup>2</sup> .s)	3,6 ( <mark>en 34</mark> )	1,48	2,00	
Flux thermique en 64 (10 <sup>14</sup> n/cm <sup>2</sup> .s)	3,0 (en 42)	1,64	2,20	
Flux thermique en 52 (10 <sup>14</sup> n/cm <sup>2</sup> .s)	2,7 ( <mark>en 76</mark> )	1,45	1,85	
Flux de neutrons rapides en 24 (10 <sup>14</sup> n/cm <sup>2</sup> .s)	2,2 ( <mark>en 26</mark> )	1,07	1,09	
Flux rapide en 44 (10 <sup>14</sup> n/cm <sup>2</sup> .s)	2,8 ( <mark>en 34</mark> )	1,86	1,88	
Flux rapide en 64 (10 <sup>14</sup> n/cm <sup>2</sup> .s)	2,6 (en 42)	2,06	2,00	
Flux rapide en 52 (10 <sup>14</sup> n/cm <sup>2</sup> .s)	0,6 ( <mark>en 76</mark> )	1,82	1,88	

N.B. Les mentions en rouge font référence aux emplacements dans le cœur représentés sur la fig. 69.

Le réacteur fonctionne en moyenne 200 jours par an, par cycles d'une durée variant de trois à cinq semaines. Un arrêt de l'ordre de 10 jours entre deux cycles est requis pour assurer le rechargement du cœur en combustible, procéder aux opérations de maintenance légère et aux manutentions nécessaires aux expériences (fig. 67). La maintenance plus conséquente est assurée pendant des arrêts dédiés de plus longue durée.



Fig. 67. Manutention en piscine.

Il est mis en œuvre par une équipe de quart composée de 5 personnes. Six équipes se relaient selon le régime des 3 x 8 pour assurer le fonctionnement continu du réacteur. Cinquante agents, dont treize ingénieurs, intervenant en horaire normal, complètent l'équipe d'exploitation.

#### La sûreté du réacteur OSIRIS

La sûreté de fonctionnement comporte deux aspects principaux et complémentaires.

Le premier aspect consiste à assurer un régime de fonctionnement compatible avec des conditions définies de manière à éviter toute situation dangereuse.

Pour réaliser cet objectif, il existe :

- Des automatismes qui empêchent tout régime de fonctionnement incompatible avec les conditions autorisées ;
- des actions de sûreté qui entraînent des arrêts d'urgence, en cas d'évolution anormale des paramètres représentatifs du régime de fonctionnement. Chacune des actions de sûreté est réalisée à partir de dispositifs redondants, dont le bon fonctionnement est régulièrement testé.

Le second aspect de la sûreté consiste à prendre toutes les dispositions nécessaires pour limiter les conséquences d'un



Fig. 68. la salle de conduite d'OSIRIS.

incident, grâce à des dispositifs d'autoprotection permanents, plutôt que des dispositifs à démarrage automatique. Il faut noter les plus importants :

- Pour pallier un manque de refroidissement accidentel, les pompes de circulation des circuits primaires cœur et piscine sont munies de volants d'inertie dimensionnés pour assurer des débits compatibles avec les niveaux de **puissance résiduelle**\* à évacuer, et ce, jusqu'à ce que la convection naturelle devienne suffisante pour assurer l'évacuation de la puissance résiduelle ;
- les composants du circuit primaire sont disposés, en totalité, dans des compartiments en béton ayant des capacités individuelles telles, qu'en cas de communication accidentelle avec la piscine, le niveau d'eau dans cette dernière ne puisse descendre au-dessous du niveau – 4,5 m – , et ainsi ne puisse dénoyer le cœur.

Pour assurer une amélioration constante de la sûreté nucléaire, des « campagnes de jouvence » se succèdent dans l'installation, ponctuées de réexamens de sûreté réalisés tous les dix ans, depuis 1999. Parmi les rénovations, il convient de citer le remplacement du caisson cœur, celui des moteurs diesels des générateurs d'alimentation de secours, la refonte du contrôle commande d'OSIRIS (fig. 68) et d'ISIS, la mise en place d'un circuit d'appoint d'eau dans la piscine d'OSIRIS, d'importantes améliorations de l'étanchéité de l'enceinte, etc.

Par ailleurs, l'implication permanente du personnel d'exploitation conduit à une amélioration constante des procédures d'exploitation.

Ces améliorations doivent être prochainement complétées, par la fiabilisation des moyens de manutention, la mise en place d'un sas permettant l'accueil de camions en zone arrière des cellules chaudes, sans rupture de confinement, l'amélioration de l'étanchéité de la salle des mécanismes, la mise en place d'arrêt d'urgence sur agressions externes (chute d'avions, séisme, explosion externe...), le bouchage des vitres et hublots du hall des ateliers chauds et de l'enceinte ISIS.

#### La conduite des expérimentations

Le principe même de conception d'un réacteur piscine à cœur ouvert permet l'accès direct au cœur, facilité par l'absence de caisson de pressurisation.

Les parois épaisses du caisson entourant latéralement le cœur dispensent d'un cloisonnement intérieur pour résister à la pression. De surcroît, ces parois constituent un écran au rayonnement gamma pour les dispositifs expérimentaux placés à l'extérieur du caisson.

La visibilité et l'accessibilité directes du cœur rendent la manutention des éléments combustibles et des dispositifs expérimentaux (chargement, déchargement et permutations) très aisées, évitent les erreurs de positionnement et facilitent les observations et les contrôles.

Le casier alvéolé maintenant le cœur en place réserve cinq emplacements aux dispositifs expérimentaux (fig. 69).

À la périphérie du cœur, sur trois faces du caisson, trois grilles sont disposées pour accueillir les irradiations dans le **réflecteur**\*. Les expérimentateurs ont donc un grand choix de positions présentant des niveaux variés de flux de neutrons rapides et thermiques.



Fig. 69. Les emplacements expérimentaux dans OSIRIS : un exemple de chargement du cœur. Les carrés rouges représentent les éléments de contrôle du cœur. Les éléments verts représentent la rangée d'éléments réflecteurs en béryllium. Le carré indigo représente le caisson entourant le cœur. Les zones en jaune représentent les emplacements destinés aux dispositifs d'irradiations expérimentales ; les zones en grisé représentent les autres emplacements d'irradiation industrielle.

Ces grilles ont été aménagées pour recevoir des expériences d'irradiation de tronçons de crayons REP de grande longueur (jusqu'à 2 mètres) extraits d'assemblages en provenance de réacteurs électronucléaires.

Des systèmes de déplacement autorisent un ajustement en position du dispositif expérimental, par rapport au cœur, afin de régler précisément les conditions d'irradiation et d'effectuer des variations de puissance (cyclages, rampes), représentatives des conditions de fonctionnement normal ou incidentel dans les centrales électronucléaires. Par ailleurs, ces systèmes de déplacement permettent de charger et de décharger les dispositifs expérimentaux, le réacteur étant en fonctionnement.

#### Les applications pour l'industrie

Grâce à son flux de neutrons particulièrement élevé, OSIRIS permet la production industrielle d'un grand nombre de radionucléides artificiels (fig. 70). Ces radionucléides sont, ensuite, mis en œuvre dans le domaine médical par des sociétés de l'industrie pharmaceutique, clientes du réacteur. Ils permettent d'établir des diagnostics médicaux par scintigraphie (OSI-RIS assure environ 6 % de la production mondiale [2007] en molybdène 99) ou de traiter certains cancers par curiethérapie (voir encadré sur l'utilisation des radionucléides artificiels dans le secteur médical, *supra*, p. 25 et 26).

Enfin, dans le domaine de l'industrie électronique OSIRIS réalise l'irradiation de lingots mono-cristallins de silicium (fig. 71), ce qui modifie la structure de ce matériau et le rend semiconducteur (voir encadré sur le dopage du silicium à l'aide de neutrons, *supra*, p. 28 et 29). Le silicium « dopé » par le phos-



Fig. 70. Manutention de radionucléides en conteneur blindé dans le hall d'OSIRIS.



Fig. 71. Tranche de silicium.

phore 31 produit par l'irradiation du silicium 30 est utilisé dans l'électronique industrielle pour les composants de puissance employés, notamment, pour les onduleurs.

L'industrie électronique, essentiellement japonaise, regroupe les principaux clients d'OSIRIS pour cette production.

## Des expériences d'irradiation pour l'étude des matériaux

La modification des propriétés mécaniques et métallurgiques des matériaux, avec l'irradiation, limite leur utilisation sous flux. Aussi, est-il important d'étudier les mécanismes associés à la dégradation de leurs propriétés sous irradiation avec, comme enjeu majeur, l'augmentation de la compétitivité économique et de la durée de vie des réacteurs. Dans ce dossier, le principal composant impliqué est la **cuve**\*, dont il convient d'analyser si son comportement reste acceptable, après avoir subi une irradiation correspondant à plusieurs dizaines d'années de fonctionnement. Un programme expérimental important a été mené au CEA, dans cette perspective (irradiations TÉNOR, BARITON, SOPRANO, DV 50 et DIVA). Lors de ces expériences, les différentes éprouvettes irradiées permettent de vérifier l'évolution des différentes caractéristiques mécaniques des aciers de cuve sous des **fluences\*** significatives.

Les dégâts produits dans un acier de cuve dépendent beaucoup de la température sous laquelle se fait l'irradiation. Aussi la majorité de ces expériences a-t-elle été menée dans des dispositifs, nommés IRMA, qui permettent l'irradiation d'échantillons de matière sous une température contrôlée, plongés dans la piscine d'OSIRIS, à proximité du cœur du réacteur (fig. 72). Dans ces emplacements, les échantillons reçoivent, en moins de deux ans, les doses similaires à celles reçues par les cuves de REP en plusieurs dizaines d'années. Le dispositif IRMA est constitué de deux tubes concentriques. Entre les deux tubes, une lame de gaz jouant le rôle de barrière ther-



mique permet d'atteindre les températures souhaitées sur les échantillons. Le porte-échantillons, au centre du dispositif, est plongé dans un gaz inerte ; la température des échantillons est obtenue grâce à leur **échauffement**  $\gamma^*$  et à celui du porte-échantillons. Le pilotage de la température et le suivi des fluctuations de l'échauffement  $\gamma$  est réalisé à l'aide des éléments chauffants électriques portés par le tube interne.

Les principales caractéristiques de ce dispositif sont : un volume utile du chargement de 700 cm<sup>3</sup>, soit une section de 6,2 x 2,5 cm<sup>2</sup> sur une hauteur de 45 cm, un flux de neutrons (E > 1 MeV) pouvant aller jusqu'à 5.10<sup>12</sup> n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, un échauffement gamma inférieur à 0,5 W/g, une température de la charge expérimentale située entre 250 °C et 320 °C, régulée à ± 6 °C. L'instrumentation comprend 18 thermocouples et des intégrateurs de dose répartis sur la hauteur du porte-échantillons.

Dans le domaine des aciers de cuve, les dispositifs IRMA sont utilisés, par exemple, pour :

- · La caractérisation des effets de température et de dose ;
- l'évaluation de la ténacité\* des zones affectées thermiquement par les opérations de soudage ;
- l'étude de l'influence du spectre neutronique\* sur la fragilisation ;
- l'étude de l'influence du recuit sur la température de transition ductile – fragile\* des aciers.

Une variante du dispositif IRMA, de taille bien supérieure, a été développée pour accueillir des éprouvettes plus conséquentes (CT50) : il s'agit du dispositif BARITON.

Le prolongement de la durée de vie des réacteurs concerne également la durée de vie des structures internes de ces derniers. Il convient, cette fois, de se situer dans des flux de neutrons plus importants et, par conséquent, de se trouver à l'intérieur même du cœur d'OSIRIS.

Les programmes expérimentaux portent aussi sur les matériaux de gainage de combustibles comme, par exemple, dans les irradiations visant à tester les propriétés de croissance et de fluage sous irradiation à fort **taux de combustion**\* d'alliages de zirconium. Dans le cadre de ces expériences, la charge expérimentale est alors composée de gaines pré-irradiées ou non et pressurisées. D'autres sollicitations peuvent aussi être appliquées aux éprouvettes pendant l'irradiation, en mettant en œuvre des systèmes plus ou moins complexes dans les porte-échantillons utilisés. Dans le programme EMMA, par exemple, le train d'éprouvettes d'une forme conçue et brevetée spécifiquement par le CEA est soumis à une traction continue. D'autres types de structures internes de réacteurs font aussi l'objet d'irradiation. OSIRIS a accueilli, pendant de nombreuses années, des programmes expérimentaux consacrés aux **tubes de force**\* des réacteurs **CANDU**\* développés par les Canadiens.

Le comportement sous flux des absorbants neutroniques est, lui aussi, analysé sous irradiation. On étudie ainsi, de manière précise, le gonflement de divers objets mettant en œuvre du gadolinium ou d'autres « **poisons consommables\*** ». On peut aussi regarder le comportement de concepts innovants intégrant ce type d'isotope au sein du gainage combustible.



Fig. 72. Le dispositif IRMA pour l'étude des matériaux sous irradiation dans le réacteur OSIRIS.

À droite, vue d'ensemble du dispositif montrant l'emplacement des échantillons à irradier ;

À gauche, détail de l'instrumentation pour le contrôle de la température pendant l'irradiation.



Pour mener à bien ces campagnes d'irradiation, les dispositifs de type CHOUCA sont mis en œuvre dans OSIRIS. Ces dispositifs, dédiés à l'irradiation de matériaux, peuvent être utilisés à l'intérieur ou à l'extérieur du cœur. Comme le dispositif IRMA, le CHOUCA est constitué d'une double enveloppe formant une barrière thermique et possède des éléments chauffants répartis sur la hauteur de la capsule, afin d'assurer la régulation fine de la température des échantillons, tout au long de l'irradiation.

L'intérieur de la capsule est rempli de NaK (alliage eutectique sodium potassium) qui assure une homogénéité thermique. C'est dans ce milieu qu'est inséré un porte-échantillons accueillant les échantillons spécifiques, à chaque type d'expérience.

Les principales caractéristiques de ce dispositif sont : un diamètre utile de 24 à 30 mm, une hauteur sous flux de 600 mm, un flux de neutrons rapides (E > 1 MeV) allant jusqu'à 2.10<sup>14</sup> n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, un échauffement gamma admissible maximum de 12 W/g et des températures habituelles de fonctionnement de 250 à 400 °C, régulées à ± 5 °C. L'instrumentation associée comprend 12 thermocouples sur le CHOUCA et 18 sur le porte-échantillons, ainsi que des intégrateurs de dose pour accéder à la fluence neutronique reçue par les échantillons. Une instrumentation spécifique associée à l'expérience peut être ajoutée.

#### Des expériences d'irradiation pour l'étude des combustibles nucléaires

Améliorer la souplesse de fonctionnement et augmenter le taux de combustion des combustibles, tout en intégrant leur devenir après leur passage en réacteur, sont les enjeux majeurs de la R&D menée sur les combustibles des réacteurs électrogènes. En particulier, le suivi de charge pratiqué sur les réacteurs français implique de rapides transitoires de puissance qui mettent le combustible, lors de ces transitoires, implique la maîtrise de toutes les interactions mécaniques et physico-chimiques se produisant sous irradiation entre les pastilles combustibles et leur gaine, pour éviter les ruptures de ladite gaine. La problématique de l'interaction **pastille gaine**\* est décrite dans la monographie DEN M2, consacrée aux combustibles nucléaires.

#### L'interaction pastille-gaine

Un vaste programme de R&D est entrepris dans le cadre tripartite EDF AREVA CEA et dans des cadres contractuels bilatéraux, de manière à améliorer les connaissances des divers phénomènes mis en jeu au niveau du combustible et de la gaine. Pour OSIRIS, ce programme expérimental comporte de nombreux transitoires (rampes) de puissance qui permettent de reproduire dans une **boucle**\* (ISABELLE) les transitoires de puissance, normaux ou incidentels, rencontrés dans les réacteurs électrogènes.

La charge expérimentale est constituée d'un crayon combustible court neuf, ou le plus souvent refabriqué en laboratoires chauds par le procédé FABRICE, à partir d'un crayon irradié en centrale. Les conditions thermohydrauliques (température et pression) et chimiques de l'eau dans la boucle sont représentatives de celles des réacteurs de puissance REP ou REB. Le refroidissement du crayon est assuré en convection forcée par un débit d'eau légère, déminéralisée, dégazée et traitée chimiquement qui est induit à partir d'un système injecteur tuyère amplifiant le débit produit par le groupe de pompage du circuit d'alimentation de la boucle. Ce système permet de réduire les dimensions des lignes de liaison vers les casemates où sont situés les organes nécessaires au conditionnement du fluide caloporteur (pressuriseur, pompes, échangeurs...) et, ainsi, de les rendre souples pour autoriser les mouvements en piscine.

La conception de ces boucles et leur positionnement en périphérie du cœur permettent leur mise en irradiation et leur retrait réacteur en fonctionnement. Ces dispositifs sont placés sur des supports mobiles dont le déplacement par rapport au cœur du réacteur permet, soit d'ajuster la puissance du combustible, soit d'effectuer par pilotage automatique des rampes de puissance ou des cycles à des vitesses variables. La variation de puissance est obtenue par déplacement de la partie sous flux de la boucle perpendiculairement au cœur du réacteur, avec asservissement du déplacement à la puissance neutronique.

La puissance évacuable par la boucle est de 60 kW, et la puissance linéique maximale sur le crayon est de 620 W.cm<sup>-1</sup>, avec une « pente de rampe » maximum de 700 W. cm<sup>-1</sup>. mn<sup>-1</sup>. *Via* l'instrumentation de la boucle (incluant une spectrométrie neutron et  $\gamma$  en ligne), l'évolution des différents paramètres est suivie pendant l'expérience. La puissance dégagée par la charge expérimentale pendant l'irradiation est mesurée en temps réel par bilan thermique, au moyen de capteurs de débit, de pression et de température, ainsi que par un bilan neutronique effectué à l'aide de collectrons. La détection d'une rupture de gaine éventuelle d'un crayon combustible est fournie par un détecteur d'activité gamma dans l'eau, sur la partie retour vers la partie hors piscine, associé à un détecteur de **neutrons retardés\***.

Enfin, une caractérisation fine du combustible par les examens non destructifs (neutronographie et spectrométrie  $\gamma$ ) est également assurée dans l'installation, avant l'envoi de la charge expérimentale en laboratoire chaud pour de nombreux examens non destructifs comme destructifs (fig. 73).



Fig. 73. Résultat d'un essai de rampe thermique sur un combustible irradié sur la boucle ISABELLE 1. a) Spectrométrie axiale du crayon ; b) Gonflement du crayon ; c) Calcul du comportement thermomécanique du crayon par éléments finis 3d.

#### Améliorer les performances du combustible MOX

Le combustible **UOX**\* des réacteurs à eau est déjà qualifié pour une **combustion massique**\* (**burn-up**\*) de 60 GW.j/t, valeur probablement assez proche de l'optimum technico-économique. Le combustible **MOX**\*, mis en œuvre depuis moins longtemps, est encore loin de cet objectif. Pourtant, rien ne permet de penser que les limites intrinsèques en combustion massique sont très différentes pour ces deux types de combustible. Un effort reste donc à faire pour amener le combustible MOX à parité, c'est à dire vers 60 GW.j/t. À cette fin, un autre dispositif expérimental est utilisé, dans le cadre de l'analyse du comportement du combustible sous irradiation : il s'agit de GRIFFONOS.

Les expériences menées dans GRIFFONOS apportent des informations nécessaires à la compréhension du comportement sous flux des crayons combustibles, actuels ou futurs, dans le but d'optimiser leurs performances. Les phénomènes physiques étudiés sont variés : mesures de la température centrale du combustible ou de la pression interne du crayon, en fonction de la puissance et du taux de combustion ; mesure de la déformation de la gaine pendant l'interaction pastille-gaine...

Le dispositif GRIFFONOS est de type bouilleur : l'évacuation de la puissance produite par le crayon combustible y est assurée par convection naturelle de l'eau sous pression. La puissance linéique maximale sur le crayon est de 600 W/cm ajustable comme pour la boucle ISABELLE 1 par déplacement du dispositif par rapport au cœur du réacteur. La puissance dégagée par le crayon pendant l'irradiation est mesurée par bilan neutronique avec des **collectrons**\* ; elle est ensuite recalée par **spectrométrie gamma**\* quantitative.

Il s'agit, cette fois, d'irradiations de crayons fortement instrumentés auxquels on fait subir des variations de puissance. Ainsi, dans le cadre du programme REMORA, cette instrumentation permet de suivre simultanément l'évolution de la température à cœur des pastilles et la pression des gaz de fission dégagés. Un capteur acoustique a été ajouté à la charge expérimentale pour pouvoir différencier les produits de fission gazeux de l'hélium dégagé pendant les transitoires dans le cas d'un crayon MOX. Toujours dans le cadre du programme Parité MOX, l'irradiation REGATE a permis d'analyser ce même relâchement d'hélium par analyse post-irradiation, cette fois.

#### Études pour l'aval du cycle futur

Dans le cadre de l'aval du cycle, des expériences d'irradiations de pastilles chargées en **actinides mineurs**\* sont en préparation, afin de déterminer leur comportement et d'évaluer la faisabilité des différentes options de recyclage des actinides mineurs, répondant ainsi aux engagements pris dans ce domaine par le CEA.



#### Mesure de la puissance résiduelle

D'autres programmes, en soutien du parc actuel, sont menés ponctuellement dans le réacteur. Ainsi, en 2008, une nouvelle problématique a été abordée dans OSIRIS : celle de la puissance résiduelle, dans le cadre du programme expérimental MERCI (voir encadré, ci-dessous).

#### L'expérience MERCI (Mesure de l'Énergie Résiduelle d'un Crayon de Combustible Irradié)

#### La mesure de la puissance résiduelle : objectif et enjeu

Lors de l'arrêt d'un réacteur, la puissance dégagée par le cœur ne tombe pas instantanément à zéro, en raison de l'énergie dégagée par la décroissance radioactive des produits de fission à vie courte. La puissance ainsi dégagée, appelée « **puissance résiduelle\*** », doit être évacuée pour éviter la surchauffe du combustible, voire la fusion du cœur. C'est cette puissance résiduelle qui, faute d'avoir pu être évacuée à temps, a conduit à la dégradation des cœurs des réacteurs japonais de Fukushima, à la suite du tsunami du 11 mars 2011.

L'évaluation précise de cette puissance résiduelle permet de définir les limites de la puissance locale maximale admissible en fonctionnement normal et pour le dimensionnement des systèmes de sauvegarde ; elle est aussi une donnée essentielle dans l'élaboration des procédures de déchargement du combustible, lors des arrêts de tranche ou pour garantir la sûreté des conditions d'entreposage ou de transport des combustibles irradiés.

La puissance résiduelle est relativement bien connue aux temps longs, mais beaucoup moins aux temps courts, où compte principalement la contribution des produits de fission à vie très courte, pour lesquels les bases de données sont assez imprécises. L'expérience MERCI avait justement pour but de combler cette lacune et de mesurer la puissance résiduelle dégagée par un échantillon de combustible REP, après irradiation dans des conditions bien définies sitôt après l'arrêt du réacteur. Son caractère novateur repose sur le fait de rechercher une acquisition de la puissance résiduelle aux temps courts, en considérant, pour la première fois, tous les phénomènes physiques liés à l'irradiation d'un tronçon de crayon, tels que ceux utilisés en réacteur de puissance. Les sources de puissance résiduelle, d'origine variée (radioactivité  $\alpha$ ,  $\beta$ , neutrons,  $\gamma$ ...), proviennent des produits de fission et des noyaux lourds, et sont, par conséquent, très différentes aux temps courts et aux temps longs. De manière conventionnelle, la puissance résiduelle peut être prise en compte à partir de standards reconnus, et le but est, in fine, de pouvoir contribuer à l'élaboration de ces standards.

Une fois réalisée, l'expérience a été modélisée et calculée avec une approche *best-estimate*, à l'aide des codes de neutronique TRIPOLI4 et DARWIN / PEPIN2. La confrontation des résultats de calcul à l'expérience constitue alors une validation globale de l'ensemble des données de calcul : données nucléaires de base, description des chaînes d'évolution des noyaux lourds et des produits de fission pris en compte...

#### Déroulement de l'expérience

Le projet MERCI-1, consacré à l'étude d'un tronçon de crayon REP UO<sub>2</sub> neuf, s'est déroulé de 1999 à 2009. Les années 1999 à 2004 ont porté sur la faisabilité de l'expérience et du calorimètre. Le développement des appareils, ainsi que les études de conception et de sûreté ont été effectuées de 2005 à 2007, et la phase expérimentale elle-même s'est déroulée en 2008.

Il convient de souligner que le calorimètre, en raison de la précision demandée (± 1 %), a nécessité des innovations conceptuelles et des développements technologiques qui ont donné lieu à dépôt de brevets. Sa localisation en cellule blindée s'est également avérée très contraignante. Afin de prendre en compte la composante de la puissance résiduelle transportée par le rayonnement γ, il a été nécessaire de disposer le crayon dans un récipient à parois épaisses en tungstène massif. Dans ces conditions, pour obtenir la valeur de la puissance résiduelle, il est nécessaire de corriger la mesure brute des fuites  $\gamma$ résiduelles hors du calorimètre (calculées de l'ordre de 4 %, à l'aide du code TRIPOLI4) et de prendre en compte les phénomènes d'inertie thermique. Afin que ces phénomènes soient du second ordre, une fois passés les premiers instants de la mesure, une régulation extrêmement précise de la température (à ± 0,01 K) s'impose.

L'expérience proprement dite s'est déroulée selon trois phases successives dans les installations d'OSIRIS :

 Phase n°1 : irradiation en périphérie du réacteur expérimental OSIRIS (fig. 74); cette première phase a consisté à irradier un tronçon de crayon REP UO<sub>2</sub> neuf enrichi à 3,7 % en U 235, jusqu'à une combustion massique\* (burn-up\*) de l'ordre de 3 000 à 4 000 MW.j/t ; une telle combustion massique permet, en effet, de garantir une bonne mesurabilité de la puissance résiduelle sur une durée de deux mois, échelle



Fig. 74. L'expérience MERCI : irradiation du crayon combustible dans OSIRIS.





Fig. 75. L'expérience MERCI : phase de transfert du crayon dans le canal entre réacteur et cellule chaude.

de temps pertinente, au regard des enjeux ; le crayon a ainsi été irradié durant 55 **JEPP**\*, à une **puissance linéique**\* moyenne par cycle évoluant entre 260 et 312 W/cm ;

- Phase n°2 : transfert du crayon, à la suite d'un arrêt programmé du réacteur depuis son emplacement d'irradiation jusqu'en cellule chaude et introduction dans un calorimètre (fig. 75) ; cette deuxième phase, mobilisant une équipe de 20 personnes du CEA, s'est concrétisée le 17 mars 2008 par le transfert du crayon en 26 minutes du cœur vers la cellule blindée n° 2 d'OSIRIS et son introduction dans le calorimètre MOSAÏC ; elle constituait le point clé de l'expérience, dont l'apport dépendait, en effet, en grande partie, du délai de transfert qui devait être le plus court possible, tout en respectant l'ensemble des dispositions de sûreté inhérentes à la manutention de combustible nucléaire irradié ;
- Phase n°3 : mesure de la puissance évacuée par le crayon, via le calorimètre MOSAÏC installé en cellule blindée à OSI-RIS pendant ~ 2 mois (fig. 76); cette troisième phase s'est achevée après 49 jours de calorimétrie, et des examens postirradiatoires ont eu lieu (spectrométrie γ\*, neutronographie\* et dissolution de pastilles à Marcoule, pour dosage isotopique à Saclay).



Fig. 76. Le calorimètre MOSAÏC, pour la mesure de la puissance résiduelle en cellule blindée.

#### Interprétation

L'interprétation de l'expérience MERCI-1 a nécessité la modélisation fine de l'irradiation du combustible. Pour cela, un couplage entre le code de transport TRIPOLI-4 (code de neutronique **Monte-Carlo\***) et le formulaire d'évolution DARWIN/ PEPIN2, codes développés par le Département de modélisation des systèmes et des structures/SERMA, a été mis en œuvre. Ce modèle fournit la composition isotopique du combustible, en fin d'irradiation. Le formulaire DARWIN/PEPIN2 permet, ensuite, à partir de cette composition, le calcul de la puissance résiduelle dégagée par les noyaux instables produits au cours de l'irradiation.

La caractérisation de l'irradiation du combustible (**taux de combustion**\*), nécessaire à la détermination du nombre de fissions au sein du crayon MERCI-1, a été effectuée à partir de mesures réalisées au cours de l'irradiation, à l'aide d'un ensemble d'instrumentations nucléaires dédié (**chambre à fission**\*, **collectrons**\*) et à partir des résultats de mesures postirradiatoires par spectrométrie  $\gamma$  et spectrométrie de masse pour un certain nombre d'isotopes lourds et produits de fission (Cs 137, Nd 148, U 235...).

La comparaison calcul / mesure présente trois périodes distinctes (fig. 77) :

- **Temps courts** : de 27 à 44 minutes, les écarts  $\binom{C-M}{M}$  évoluent de -10 % à 1 %, la sous-estimation du calcul résulte d'une mesure surestimée consécutive à une surchauffe du crayon avant son introduction dans le calorimètre ;
- temps intermédiaires : de 44 minutes à 10 jours, les écarts évoluent de 1 % à 6 % (à 12h30 de refroidissement) et se stabilisent autour de 1 % entre 4 à 10 jours de refroidissement ;
- temps longs (non représentés) : > 10 jours. Les résultats expérimentaux doivent être consolidés entre 15 et 25 jours et de 41 à 49 jours ; néanmoins, de 10 à 15 jours et de 25 à 34 jours de refroidissement, les écarts oscillent autour de 1 % ; entre 34 et 41 jours, les écarts évoluent de 1 % à -1 %.

Les incertitudes (à un intervalle de confiance) cumulées mesures + calcul varient de 5 % (à 27 minutes) à 3 % (à 10 jours). Les écarts  $\left(\frac{C-M}{M}\right)$  sont compris dans l'intervalle d'incertitude à 1  $\sigma$ , à l'exception des périodes [27 minutes; 44 minutes] et [6 h 20 min; 1,5 j] où ils sont compris dans l'intervalle à 2  $\sigma$ . Ces premières analyses apportent des améliorations dans la quantification des incertitudes intervenant dans les dossiers d'exploitation et de sûreté des réacteurs.

Par son caractère à la fois très innovant et hautement technique, l'expérience MERCI-1 a nécessité la mobilisation, sur plusieurs années, des compétences majeures du CEA dans différentes disciplines (neutronique, radioprotection, thermique, thermohydraulique, mécanique, thermomécanique, instrumentation, chimie, expérimentation...) et mis en œuvre plusieurs

Les réacteurs nucléaires expérimentaux





installations importantes de la DEN (réacteur OSIRIS, laboratoires chauds ATALANTE et LECI, laboratoires d'analyses...). Le pilotage opérationnel de cet ensemble de compétences et de moyens, allant de la conception de l'expérimentation, de sa réalisation en réacteur jusqu'à son interprétation fine, a permis de fédérer des équipes réparties sur cinq centres du CEA (Saclay, Grenoble, Cadarache, Marcoule et Bruyères-le-Châtel).

L'expérience a permis la validation des principes de base et des solutions techniques originales retenues et, surtout, l'atteinte des objectifs en termes de durée du transfert et de précision de la mesure, pour le calorimètre diphasique.

La puissance résiduelle issue du combustible MERCI-1 a pour origine principale la désintégration des produits de fission de l'uranium. Ainsi, l'expérience MERCI-1 permet la qualification de la composante issue de ces produits de fission à la puissance résiduelle. Au sein d'un combustible comportant un taux de combustion plus élevé, une fraction non négligeable de la puissance résiduelle est due aux produits de fission des noyaux lourds formés lors de l'irradiation. Afin de qualifier les composantes plutonium et actinides des combustibles irradiés, une seconde expérience MERCI-2 est en cours de définition. Elle s'appuie sur un combustible MOX à haute teneur en plutonium (≈ 9 % Pu).

#### Étude des accidents graves

L'irradiation en réacteur de recherche constitue aussi la première étape de certains programmes de recherche sur les accidents graves en réacteur. Ainsi, le programme VERDON consiste en l'étude des relâchements des produits de fission et des actinides par des combustibles en situation accidentelle.

Dans les expériences VERDON, menées dans un cadre international, la charge expérimentale est constituée d'un crayon combustible très court (2 ou 3 pastilles) refabriqué en laboratoire chaud à partir d'un crayon irradié en centrale de puissance. Ce crayon est ré-irradié dans le réacteur OSIRIS, afin de reconstituer dans le crayon combustible l'inventaire en produits de fission à vie courte avant l'accident (ce sont ces radionucléides qui sont les plus pénalisants sur le plan radiologique, en cas d'accident grave), puis ce crayon est envoyé rapidement dans le laboratoire LECA, à Cadarache. Les conditions accidentelles y sont alors simulées, en chauffant le crayon expérimental dans un four à induction et sous une atmosphère mixte de vapeur d'eau, d'hydrogène ou d'air. Des mesures de spectrométrie gamma\* en ligne assurent, au cours de la chauffe, le suivi du relâchement des PF à travers la céramique, puis la gaine du combustible.

#### **Expériences d'irradiation pour les** réacteurs de quatrième génération

Au-delà du soutien à l'amélioration des performances des deuxième et troisième générations de réacteurs, OSIRIS prend sa place dans le programme international de recherche et développement de la quatrième génération de réacteurs, et en particulier les réacteurs à gaz (RHT – RTHT – RNR-G). La spécificité des ces réacteurs à gaz est leur très haute température de fonctionnement, et, pour le RNR-G, leur haut flux neutronique. Les matériaux pressentis, tant pour les structures que pour les combustibles, sont donc à qualifier dans ces conditions. Afin d'atteindre un domaine de fonctionnement cohérent avec ces filières, le NaK du CHOUCA est remplacé par un gaz neutre, ce qui a permis de réaliser l'expérience CEDRIC sur le comportement de torons de fibres de carbure de silicium sous traction à des températures au-delà de 900 °C. Outre le niveau de température, cette expérience incluait deux spécificités : la traction qui était appliquée à l'échantillon était pilotée via un système de vérin, et son élongation était suivie en direct par un capteur inductif.

Pour aller plus loin, le CEA a développé, sur la base du concept CHOUCA, un nouveau dispositif baptisé PHAETON permettant d'atteindre des températures d'échantillons supérieures à 1 000 °C avec une précision de pilotage de ± 10 °C. L'ensemble des autres caractéristiques sont celles d'un CHOUCA. Le dispositif PHAETON a accueilli des échantillons SiC et W pour les couvertures\* des réacteurs de fusion (irradiation FURIOSO), cela dans le cadre d'un programme du 6<sup>e</sup> PCRD.

### Qualification des matériaux et du futur combustible des MTR

En dehors des réacteurs pour la production d'énergie (électrogènes ou calogènes), OSIRIS prépare aussi l'avenir des réacteurs d'irradiation en participant au programme international de développement de nouveaux combustibles pour ce type de réacteur qui met en œuvre l'UMo, combustible à forte densité et à faible enrichissement permettant d'éliminer l'emploi d'uranium fortement enrichi (> 20 %) dans les réacteurs expérimentaux.

Pour cela, le réacteur OSIRIS accueille au sein de son cœur un dispositif spécifique recevant des plaques de combustible expérimental aux dimensions similaires à celles du réacteur. Ce dispositif appelé « IRIS » est l'hôte, depuis plusieurs années, du programme expérimental du même nom. Il peut recevoir jusqu'à quatre plaques combustibles, simultanément. À chaque cycle, les plaques ainsi irradiées sont extraites du dispositif pour en mesurer le gonflement sur un banc spécifique situé dans l'installation.

Parallèlement au programme combustible déjà mentionné, des irradiations sont menées dans OSIRIS pour caractériser les matériaux propres aux réacteurs d'irradiation. Ainsi, en soutien à la conception du RJH, des irradiations de caractérisation de l'aluminium utilisé généralement pour le bloc réacteur sont réalisées.

#### Instrumentation

Enfin, de manière à améliorer la qualité des mesures qui sont réalisées dans les réacteurs de recherche, un programme de R&D en instrumentation est mené au CEA, en partie en collaboration avec le SCK-CEN, en Belgique, pour développer des instrumentations novatrices et performantes. Citons, par exemple, les méthodes de mesure dimensionnelles ou spectrométriques par fibres optiques, ou l'utilisation d'ondes acoustiques pour caractériser le combustible, en cours d'irradiation. Les programmes d'irradiation correspondants permettent de qualifier ces capteurs dans des conditions représentatives de leur utilisation dans les dispositifs d'irradiation de demain.

Michel AUCLAIR, Philippe DURANDE-AYME, Stéphane LOUBIÈRE, Département des réacteurs et services nucléaires Caroline VERDEAU, Direction de l'innovation et du soutien nucléaire Richard LENAIN et Danielle GALLO

Département de modélisation et de simulation des systèmes



#### Les laboratoires associés aux réacteurs expérimentaux

Les laboratoires chauds sont des installations associées, de façon indispensable, aux réacteurs expérimentaux. Ils sont nécessaires en amont des irradiations en réacteur pour préparer ces dernières : fabrication du combustible et du crayon pour des irradiations sur combustible vierge ou, lorsque l'objet est déjà irradié, refabrication en laboratoire chaud de crayons courts, avec ou sans instrumentation. Ils interviennent également en aval, pour la réalisation des examens, destructifs ou non, après irradiation.

### Les domaines d'activité des laboratoires chauds

La base des activités est liée au parc de réacteurs électrogènes avec deux grands volets :

1. Les activités associées à l'amélioration des combustibles (UO<sub>2</sub> et MOX) incluent les programmes de surveillance pour les nouveaux combustibles et gainages, les combustibles à forts **taux de combustion\***, le comportement du combustible en régime transitoire, le recyclage des uranium et plutonium de **retraitement\***, les **poisons consommables\***, les expertises de crayons abîmés en centrale. À ces thèmes se rajoutent les études sur la sûreté, l'entreposage de longue durée et le transport des combustibles. Les systèmes du futur créent également de nouveaux besoins, comme la fabrication et l'examen de crayons et de cibles contenant des **actinides mineurs\***, ou les combustibles carbures ou nitrures.

2. Les activités de recherche sur les matériaux irradiés : aciers de cuve et d'internes pour surveiller la durée de vie des centrales (AMI Chinon, VTT\*...), expertise des dégradations en service pour les centrales, analyse chimique ou radiochimique des effluents primaires, gainages (au LECI\*, fig. 78 et 79), la corrosion (dans les laboratoires de Řež), matériaux de paroi pour la fusion (par exemple, à Jülich), examens sur graphite, etc.

En plus de ce soutien direct aux réacteurs, les laboratoires chauds permettent aussi :

**3.** Les études sur le traitement des combustibles usés, en soutien aux usines (Sellafield et La Hague).

4. La production de radio-isotopes et de sources radioactives, liée à la proximité d'un réacteur expérimental (HFR\*, OSIRIS\*, BR2\*).



Fig. 78. Le laboratoire chaud LECI, à Saclay, pour l'étude des matériaux irradiés.

**5.** Certaines activités support, comme les travaux sur la décontamination ou les déchets (Chicade), ou des analyses associées au suivi environnemental (Erlangen).

**6.** Les examens associés aux irradiations de **spallation**\* et les analyses pour la non-prolifération.

Certains laboratoires se sont spécialisés sur un domaine pointu (par exemple, les matériaux pour la fusion, à Jülich). Quelques organismes se sont spécialisés dans les études de métallurgie ; d'autres dans la radiochimie (CEA) ; d'autres, encore (ITU, EDF), couvrent un spectre plus large et réunissent un ensemble de compétences sur un même site.



Fig. 79. Une machine de traction en cellule chaude, au LECI.

#### Les laboratoires chauds en Europe

L'Europe dispose d'une vingtaine de laboratoires chauds pour réaliser des examens sur matériaux et combustibles irradiés, en support aux réacteurs nucléaires (fig. 80). Ce parc présente une grande diversité, par ses thèmes : combustibles, matériaux, retraitement, radio-isotopes et sources, par la taille des laboratoires et par leur évolution, en fonction des besoins et des contraintes nationales.

Ces installations ont souvent été construites dans les années soixante, au début du nucléaire, et sont associées à un parc de réacteurs électrogènes, ou à un réacteur expérimental.

L'architecture de ces laboratoires chauds est similaire : une ou plusieurs lignes de cellules de haute activité, avec des blindages variés (béton, béton baryté, plomb, acier) ; une zone de travail, avec des télémanipulateurs, une zone arrière, avec un pont roulant pour manutentionner les emballages de transport ; un puissant système de ventilation ; une salle de contrôle de la radioprotection et des locaux annexes. Certains comportent des espaces d'entreposage (puits en cellules, piscine).

À ces laboratoires de haute activité s'ajoutent ceux destinés aux études sur les combustibles  $UO_2$  ou MOX non irradiés. On observe toutes les gradations de protection contre les rayonnements, depuis le laboratoire « froid » concernant des combustibles  $UO_2$  vierges ou des matériaux inactifs, jusqu'à la cellule blindée pour les études sur les actinides mineurs, en passant par les boîtes à gants pour les combustibles au plutonium.

Ces laboratoires appartiennent à des organismes publics (ITU\*, CEA, **PSI**\*), à des sociétés à capitaux mixtes (EDF Chinon, AREVA Erlangen), voire à des sociétés privées (Studsvik AB).



Fig. 80. Les laboratoires chauds européens et les transporteurs de matières nucléaires.

#### L'intégration européenne

La coopération entre les laboratoires et les réacteurs de recherche européens existe depuis longtemps, *via* des programmes internationaux avec irradiation dans un pays et partage des examens dans d'autres labos (PHÉBUS, programmes OCDE, Halden). Cette pratique est limitée par les difficultés des transports. Les législations nationales sont parfois contraignantes, par exemple avec l'obligation du retour des déchets.

L'étape suivante d'intégration sera plus délicate. Il faudra partager les ressources, avec des budgets contraints : acheter des appareils d'analyse perfectionnés (microscope électronique à transmission, analyse **SIMS\***, flash laser...) est impossible dans chaque laboratoire. Il faudra coopérer, ce qui implique de transporter les échantillons irradiés.

Le réacteur Jules Horowitz prévoit de travailler avec de nombreux laboratoires chauds. Cela se fera soit au départ du réacteur, soit en passant par le laboratoire LECA-STAR, comme plaque tournante.

### L'évolution et les grandes rénovations des laboratoires chauds européens

Après une période d'expansion accompagnant le démarrage de l'électronucléaire, les laboratoires chauds ont vécu une phase de concentration et une réduction. Leurs laboratoires chauds étant anciens, plusieurs pays ont lancé d'ambitieuses rénovations, comme la Suisse, le Royaume-Uni et la France. La construction de nouveaux laboratoires, en Suisse et en Finlande, va dépendre des décisions de construction de nouveaux réacteurs. Le Canada envisage un nouveau laboratoire chaud, comme la Chine.

- En France :
- À EDF, l'AMI Chinon a vu son périmètre limité : les activités sur combustible et barres de commande ont été arrêtées, et tout le combustible évacué. Le travail continue sur les métaux irradiés, comme la surveillance des cuves et les expertises en soutien du parc. En 2004, EDF a regroupé ses compétences en métallurgie et en radiochimie sur l'AMI Chinon, en transférant des laboratoires froids de Saint-Denis. La construction d'un nouveau bâtiment destiné à remplacer l'ancien a été lancée fin 2009. Ce sera une simple ICPE radioactive ;
- le CEA a optimisé et rationalisé son parc de laboratoires chauds : les études de radiochimie de Fontenay-aux-Roses ont été transférées à Marcoule (ATALANTE), en 1992 ; les LHA ont été arrêtés à Saclay (2001-2003) ; les activités sur combustibles irradiés, à Fontenay-aux-Roses (RM2) et à Grenoble (LAMA), ont été arrêtées pour être regroupées à Cadarache. De grandes rénovations ont été réalisées sur les laboratoires subsistants (LECI, LECA, LEFCA), afin de respecter les normes de sûreté actuelles.



Fig. 81. Le LECA-STAR, à Cadarache : examens sur combustibles irradiés.

#### Les laboratoires chauds, au CEA

Entre 1995 et 2005, le CEA a regroupé ses activités dans les laboratoires chauds jugés nécessaires et suffisants pour réaliser ses programmes de développement.

La rationalisation opérée par le CEA a abouti à la situation suivante :

- Les combustibles irradiés (LECA-STAR), à Cadarache (fig. 81);
- les matériaux irradiés (LECI), à Saclay ;
- · l'aval du cycle (ATALANTE), à Marcoule.

La partie combustible est organisée entre :

- Le laboratoire Bernard François pour la R&D concernant l'UO<sub>2</sub> non irradié ;
- le LEFCA pour la R&D MOX et les combustibles du futur, en boîtes à gants ;
- · le LECA pour le combustible irradié ;
- et ATALANTE pour les combustibles avec actinides mineurs.

#### Les types d'examens pratiqués dans les laboratoires chauds du CEA

À partir de tronçons de crayons irradiés, le LECA et le LECI réalisent des crayons courts (35 à 50 cm), appelés « Fabrices », qui subissent ensuite des rampes de puissance dans le réacteur OSIRIS (transitoires de classe 2, fig. 82) ou dans **CABRI**\* (essais de transitoire accidentel du type accident de réactivité, **RIA**\*). Ces crayons peuvent être dotés d'un thermocouple ou d'un capteur de pression, voire d'un capteur acoustique, pour la validation des codes de simulation des combustibles.

Après irradiation en réacteur, les combustibles expérimentaux sont examinés de façon non destructive au LECA (contrôles visuels, détection de fissures, gammamétrie, déformation, radiographie X), puis percés pour quantifier le relâchement des gaz de fission et analysés en microscopie (optique, MEB, microsonde, SIMS, diffractométrie X) [fig. 83].



Fig. 82. Mesures de déformation sur un crayon combustible ayant subi une rampe thermique dans OSIRIS.

Les réacteurs nucléaires expérimentaux

 $(\mathbf{e})$ 



Fig. 83. Microstructure de combustible MOX par microsonde électronique (en couleur, la teneur en Pu). On distingue, en bas, à gauche, un amas de plutonium.

En outre, le LECA dispose de deux installations pour étudier le relâchement des produits de fission lors du chauffage de combustibles irradiés : MERARG, pour les études du comportement en conditions nominales ou accidentelles, et VERDON, pour simuler, sur du combustible fraîchement ré-irradié dans OSIRIS, le relâchement des produits radioactifs, lors d'un hypothétique accident grave (fig. 84).

Le LECI, à Saclay, est équipé pour réaliser tous les types d'essais mécaniques sur des éprouvettes métalliques (voire en graphite ou céramique), après irradiation. Ces essais permettent de mieux appréhender la durée de vie des aciers de cuves ou des gaines de combustibles.

Les laboratoires chauds européens sont en pleine évolution. Celle-ci dépend du contexte nucléaire local et se traduit par des fermetures, des réorganisations autour de certaines installations et des rénovations, voire des constructions. Les contraintes économiques incitent à une mutualisation des moyens d'examen. Mais la difficulté des transports et les législations nationales freinent cette tendance. Les projets européens et les programmes internationaux, comme le lancement du RJH, forceront cette mutualisation des moyens, *via* une meilleure intégration des équipes.



Fig. 84. Construction des cellules blindées du dispositif expérimental VERDON, au sous-sol du laboratoire STAR.

#### Un exemple de recherche utilisant les laboratoires chauds : les expériences REMORA pour l'étude du comportement du combustible en situation incidentelle

Les expériences REMORA (RE-irradiation instruMentée dans OSIRIS, avec mesure du Relâchement et de la tempérAture à cœur) menées ces dernières années dans le réacteur OSI-RIS sont dédiées à l'étude du comportement en situation incidentelle de combustibles UO<sub>2</sub> et MOX à fort taux de combustion irradiés en réacteurs de puissance. Ces expériences, conduites en partenariat avec AREVA-NP et EDF, permettent, outre une meilleure compréhension des phénomènes majeurs intervenant dans le combustible en irradiation, d'apporter les données nécessaires à la validation des codes thermomécaniques qui décrivent le comportement global du crayon (codes ALCYONE, CYRANO et COPERNIC, respectivement pour le CEA, EDF et AREVA-NP), avec, notamment :

- L'étude du comportement thermique, et en particulier de la dégradation de la conductivité thermique à fort taux de combustion\*;
- l'étude de la cinétique de relâchement des gaz de fission, durant des transitoires de puissance ;
- et, dans le cas des combustibles MOX, la cinétique de relâchement de l'hélium, avec l'objectif d'étudier le comportement couplé entre les gaz de fission et l'hélium.

Les irradiations REMORA consistent à ré-irradier des tronçons de combustible à fort taux de combustion préalablement instrumentés en laboratoire chaud, au cours d'expériences de courte durée réalisées dans un des dispositifs d'OSIRIS (GRIFFONOS). Les historiques de puissance de ces ré-irradiations sont constitués de phases représentatives des puissances en réacteurs REP et de phases de type transitoire incidentel.

Ces expériences ont nécessité le développement et la mise en œuvre d'une instrumentation fine, l'utilisation de procédés de fabrication innovants, ainsi que le développement de méthodologies spécifiques pour la réalisation et l'interprétation des expériences.

Deux expériences ont déjà été réalisées sur des combustibles  $UO_2$  à fort taux de combustion : un combustible standard irradié 6 cycles en REP et un combustible dopé à l'oxyde de chrome irradié 5 cycles en REP. Pour ces deux premières expériences, une instrumentation standard REMORA a été mise en place sur le crayon combustible, à savoir, un thermocouple à cœur et un capteur de pression.



Fig. 85. Neutronographie de la partie basse d'un crayon REMORA, équipé d'un thermocouple implanté dans le crayon pour la mesure de sa température centrale.

La troisième expérience a été réalisée, fin 2010, sur un combustible MOX irradié 5 cycles en réacteur de puissance. Dans le cas du combustible MOX, un capteur acoustique permettant de mesurer en ligne l'évolution de la composition des gaz, au cours de l'expérience, a été ajouté à l'instrumentation standard.

Les phases de conception de la charge instrumentée et des expériences ont été menées de manière à disposer de grandeurs expérimentales fiables et précises, et plus particulièrement :

1. Pour la mesure de la température centrale, les combustibles pré-irradiés en réacteur de puissance ont été équipés d'un thermocouple à cœur (fig. 85). La mise en place de cette mesure a nécessité le développement d'un procédé de forage sans cryogénie, procédé innovant développé spécifiquement pour les expériences REMORA. La qualification de ce procédé de forage a été conduite sur des combustibles  $UO_2$  et MOX de 2 à 6 cycles, avec l'objectif de garantir, d'une part, l'absence d'impact sur la microstructure (fissuration radiale ou circonférentielle, arrachement, modifications des grains en bord de forage et la position axiale de la soudure chaude du thermocouple. L'incertitude sur la mesure de température ainsi obtenue est inférieure à 1,5 % sur un domaine de températures centrales mesurées jusqu'à 1 500 °C.

2. Pour mesurer les cinétiques de relâchement des gaz de fission et de l'hélium indépendamment, deux capteurs sont implantés sur le crayon combustible, associés à une méthode spécifique (gaz traceur) permettant de réduire significativement l'incertitude sur le bilan hélium final :

- Un capteur de pression innovant, de conception CEA, dit « à contre-pression » (fig. 86) destiné à réaliser des mesures de pression, en particulier au cours d'irradiations de courte durée, le principe de la contre-pression permettant de s'affranchir totalement de tout effet de dérive de la mesure sous flux neutronique ou gamma. L'incertitude de la mesure a été déterminée au cours d'une expérience de qualification sous flux à ± 0,5 bar à 2s ;
- un capteur acoustique permettant une mesure en ligne de la composition des gaz internes au plénum. Ce capteur (fig. 87) a été développé conjointement par le CEA et l'Institut d'électronique du Sud (Unité mixte CNRS – Université Montpellier II) et a fait l'objet d'un brevet déposé en juillet 2008. Le principe général de la mesure consiste à émettre un signal ultrasonore dans une cavité dédiée et à accéder, à partir des échos émis et réfléchis, à la composition des gaz *via* la mesure de la vitesse de propagation des ondes acoustiques (mesure du temps de vol). L'incertitude de mesure est de l'ordre de 1 % ; elle est essentiellement liée à l'incertitude sur la température des gaz présents dans la cavité de mesure.



Fig. 86. Capteur à contre-pression, pour la mesure de la pression dans le crayon.





Fig. 87. Capteur acoustique équipant un crayon REMORA, permettant la mesure de la composition des gaz relâchés dans le crayon. Mesure de la masse molaire des gaz.

L'ajout d'un gaz traceur au gaz de remplissage du crayon expérimental permettant de réduire l'incertitude attachée à la mesure du relâchement d'hélium, à l'issue de l'expérience. Le principe consiste à introduire un élément supplémentaire précisément quantifié (traceur) dans l'hélium de remplissage, élément ne subissant pas ou peu de modifications sous flux neutronique (captures) et n'étant pas lui-même créé par la fission (ou à rendement de fission très faible). En mesurant à nouveau cet élément, après irradiation, il est alors possible de quantifier précisément la partie correspondant à l'hélium de remplissage dans l'hélium total mesuré (initial + relâché). L'incertitude ainsi obtenue sur la quantification du relâchement d'hélium final est d'environ 15 %.

La figure 88 présente le crayon complet triplement instrumenté REMORA 3 intégré au dispositif expérimental GRIFFONOS d'OSIRIS :

Les mesures acquises et l'interprétation fine des deux premières expériences REMORA ont permis de comparer le comportement des combustibles UO<sub>2</sub> standard et dopé, à la fois du point de vue des modèles de comportement thermique, de la quantité totale de gaz de fission relâché et de la cinétique de relâchement de ces gaz.

Au cours de ces expériences, la cinétique de relâchement des gaz (fig. 89) est calculée, en utilisant :

L'évolution de la pression interne mesurée en ligne ;



Fig. 89. Pression interne et puissance linéique mesurées au cours d'une expérience REMORA – Évolution du volume et de la fraction de gaz relâchés calculés.

- l'évolution de la température moyenne des gaz dans le volume libre, en fonction de la puissance linéique, évolution donnée par des calculs thermiques spécifiques et une phase particulière de mesures réalisée en début d'expérience;
- l'évolution du volume libre total calculée par le code thermomécanique combustible.

Les deux premières expériences ont ainsi pu mettre en évidence :

• Le bon accord, sur l'ensemble du domaine exploré, entre les températures mesurées et calculées par le code de thermomécanique combustible du CEA (fig. 90) avec une conductivité effective du combustible UO<sub>2</sub> dopé légèrement, dégradée par rapport à celle de l'UO<sub>2</sub> standard ;



Fig. 88. Crayon triplement instrumenté REMORA 3, dans son dispositif expérimental GRIFFONOS.



Fig. 90. Comparaison calcul/mesure température combustible – lois de conductivité  $\mathrm{UO}_2$  standard.

- la meilleure capacité de rétention des gaz de fission du combustible AREVA dopé au chrome, en condition transitoire ;
- une cinétique de relâchement des gaz de fission sensiblement différente entre le combustible UO<sub>2</sub> standard et le combustible AREVA dopé au chrome.

L'expérience REMORA 3 sur combustible MOX, triplement instrumentée (température à cœur, pression interne, composition des gaz), a été réalisée avec succès, fin 2010, et se trouve en cours d'analyse. Cette irradiation, *via* la mesure en ligne de l'évolution de la pression couplée à celle de la composition des gaz dans les volumes libres a permis d'acquérir des données expérimentales spécifiques sur le comportement de l'hélium et le relâchement des gaz de fission (mécanismes de fissuration, existence de températures seuil, cinétique différenciée de relâchement hélium et gaz de fission...) et va contribuer significativement à la validation du modèle RACHEL de relâchement d'hélium développé par le CEA. Elle va également permettre la validation globale des modèles de comportement thermique pour un MOX à fort taux de combustion.

Jean-Yves BLANC, Direction de l'innovation et du soutien nucléaire Thierry LAMBERT et Emmanuelle MULLER Département d'étude des combustibles

#### ▶ Bibliographie

BLANC (J.-Y.), « Les laboratoires d'examens », Journée SFEN, Les Moyens de recherche en support à l'évolution des réacteurs nucléaires, Paris 19-20 octobre 2005.

http://www.sckcen.be/hotlab/

http://www-nfcis.iaea.org/



### Le réacteur Jules Horowitz

#### **Opportunité du lancement du projet RJH**

Dans les années 60, des réacteurs destinés à l'étude des matériaux et combustibles sous irradiation, dits « MTR\* » (Material Test Reactors), tels que OSIRIS (France), HFR (Hollande), BR2 (Belgique), Halden (Norvège), ont été financés et construits dans un cadre national. Ils ont apporté une contribution essentielle au développement sûr d'une industrie nucléaire compétitive.

Approchant ou ayant dépassé les 50 ans, les réacteurs MTR contribuant dans le monde au développement de l'industrie nucléaire sont maintenant victimes d'une obsolescence croissante. La question du renouvellement de cette capacité expérimentale se pose donc. De nombreux échanges ont eu lieu, en Europe, sur cette question, dans la première moitié de la décennie. Un débat de même nature s'est développé au Japon.

Ces débats ont conclu à la nécessité de maintenir une capacité expérimentale dans le domaine du comportement des matériaux et combustibles sous irradiation, du fait du développement général de l'énergie nucléaire, de l'évolution continue des exigences de sûreté, des enjeux liés à la durée de vie des centrales, de la recherche de compétitivité dans leur exploitation et dans l'évolution des produits combustibles, ainsi que des besoins d'innovation identifiés pour les systèmes nucléaires du futur.

Compte tenu du temps de construction d'un nouveau MTR (plus de dix ans) et de l'importance du maintien des compé-

Fig. 91. Vue d'artiste du projet de réacteur Jules Horowitz, sur le site de Cadarache

tences dans ce domaine, le lancement du RJH a fait l'objet d'un consensus en Europe. Un consortium de partenaires financeurs a été formé en 2007, apportant au projet de réacteur Jules Horowitz (RJH) le statut d'une installation de service (« user-facility ») européenne ouverte à la collaboration internationale (fig. 91).

Un nouveau réacteur MTR est une infrastructure de recherche qui va structurer, pour plusieurs décennies, les capacités de développement dans le domaine de la fission. Il s'agit d'un investissement coûteux, dont les spécifications initiales détermineront la valeur ajoutée future.

Compte tenu des éléments suivants :

1. Les réacteurs refroidis à l'eau seront en exploitation pendant la majeure partie du siècle ; les enjeux de compétition technologique, de maîtrise de la durée de vie, d'amélioration continue des référentiels de sûreté dimensionneront, pour plusieurs décennies, les besoins en irradiation expérimentale.

2. Dans le même temps, les impératifs d'un accès durable à l'énergie nucléaire imposent le développement progressif des technologies liées aux réacteurs à neutrons rapides.

Le RJH doit être optimisé sur deux objectifs, comme soutien aux réacteurs de puissance à neutrons thermiques et comme outil de recherche et développement pour les réacteurs à neutrons rapides.

Ce compromis est délicat et comporte des limitations :

- · Dans le domaine du soutien aux réacteurs thermiques, la nature des besoins expérimentaux est bien cernée. Le RJH doit répondre à ces besoins avec des technologies expérimentales bien maîtrisées. La faible taille du cœur rend nécessaires des efforts tout particuliers pour maîtriser les gradients thermiques et de flux neutronique induits sur les échantillons ;
- dans le domaine du soutien aux réacteurs rapides, les besoins sont moins connus, à ce jour. Par précaution, le RJH doit être conçu pour offrir une capacité de flux de neutrons rapides maximum. Toutefois, le RJH ne permettra pas, dans ce domaine, de conduire des expériences totalement représentatives, qui ne seront possibles que dans des réacteurs prototypes des filières concernées ;





 enfin, pour toutes les filières de réacteurs, le RJH devra apporter une capacité expérimentale essentielle dans l'étude des régimes de fonctionnement incidentels et accidentels par la mise à disposition des systèmes à déplacement, d'une cellule spécifique pour permettre la bonne gestion d'échantillons combustibles détériorés dans les expériences, d'un laboratoire de mesure en ligne des produits de fission relâchés, etc.

#### La conception du réacteur Jules Horowitz

Le RJH a été conçu comme un réacteur piscine de 100 MW nucléaire, polyvalent, pouvant accueillir une vingtaine d'expériences simultanées, en reproduisant les conditions d'environnement spécifiques des différentes filières et générations de réacteurs.

Au réacteur sont associés des piscines et des cellules chaudes qui permettent une gestion efficace du cycle des expériences. Cet ensemble constitue ce que l'on appelle l'« îlot nucléaire » (fig. 92).

Le cœur du réacteur, contenu dans un caisson d'une soixantaine de centimètres de diamètre et de hauteur, est refroidi par un circuit primaire, sous une pression de 10 bars.

Le RJH est conçu pour fournir un **flux**\* de **neutrons rapides**\* important (flux perturbé de 5 à 6.10<sup>14</sup> n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> d'une énergie



Fig. 92. Vue en coupe de l'îlot nucléaire du réacteur Jules Horowitz.

supérieure à 0,1 MeV) permettant de créer un endommagement significatif (jusqu'à une quinzaine de « déplacements par atome et par an » – **dpa**\*/an) dans les matériaux de structure. Le tableau 11, ci-dessous, compare cet endommagement à celui rencontré dans différents types de réacteurs.

#### Tableau 11

Représentativité des endommagements des matériaux accessibles dans le réacteur Jules Horowitz		
dpa subis dans le RJH/dpa subis, pendant le même temps, dans le réacteur		
Réacteurs à eau	7	
Réacteurs rapides refroidis au gaz	1	
Réacteurs rapides refroidis au sodium	0,5	

Le RJH a été optimisé pour rendre maximale cette capacité d'endommagement nécessaire aux études des matériaux des réacteurs du futur (Génération IV).

Le RJH permet aussi de disposer d'un flux élevé de **neutrons thermiques**\* destiné à favoriser l'étude du comportement du combustible nucléaire. Ainsi, pour le combustible actuel, le flux du RJH permet de chauffer, jusqu'à la fusion à cœur des pastilles, un crayon disposant d'un enrichissement équivalent à 1 % en Uranium 235 dans une géométrie représentative d'un réacteur à eau sous pression. Cette performance est nécessaire pour étudier les limites du fonctionnement des combustibles.

À ces deux performances quantitatives (intensité des flux de neutrons rapides et thermiques), il convient d'ajouter une performance qualitative essentielle : la capacité de conduire des expériences de qualité. Dans des réacteurs industriels ou prototypes, il est possible de mener des tests de cuisson pour des matériaux ou combustibles ; ces tests sont, par définition, passifs et dans des conditions imposées par le réacteur d'accueil. *A contrario*, dans le RJH, comme dans tous les MTRs, il est possible de mener des expériences instrumentées, d'explorer des transitoires très sollicitants, de pousser l'expérience jusqu'à la destruction de l'échantillon, de contrôler précisément les gradients, le tout avec un pilotage indépendant des paramètres (éventuellement, en ligne) permettant l'étude d'effets séparés.

Pour atteindre les objectifs de performance ci-dessus, il a fallu concevoir un cœur **sous-modéré\***, afin de disposer de forts flux de neutrons rapides, à haute densité de puissance, et à forte vitesse d'écoulement de l'eau de refroidissement pour évacuer la puissance associée. Ainsi, le cœur du RJH est constitué par un casier de 60 cm de diamètre seulement, dans lequel un combustible, sous forme de plaques, assure une forte densité de matière fissile. L'intervalle entre les plaques est réduit au maximum pour garantir la compacité du cœur, et

œ

donc sa densité de puissance, limiter le volume d'eau et minimiser ainsi la thermalisation des neutrons. Dans les 37 alvéoles de ce casier, on peut placer entre 34 et 37 assemblages combustibles. Une vitesse de 15 m/s a été retenue pour l'eau de refroidissement traversant les assemblages ; les assemblages sont cylindriques pour éviter les vibrations, compte tenu des vitesses de l'eau de refroidissement. Les fuites neutroniques d'une telle configuration sont importantes. Elles sont mises à profit en plaçant autour du cœur un **réflecteur\*** en béryllium qui thermalise les neutrons. Le pic du flux de neutrons thermiques est ainsi obtenu dans le réflecteur, à quelques centimètres du cœur. À cette position, le flux de neutrons rapides reste significatif. Cela offre des positions expérimentales adaptées aux études de combustible nécessitant, à la fois, du flux thermique pour la combustion rapide de la matière fissile, et du flux rapide pour simuler l'endommagement de la **gaine**\*.

Toujours dans le but d'atteindre les objectifs de performance de flux, tout en prenant en compte les directives, en matière de non-prolifération, qui limitent l'enrichissement en U 235 de l'uranium mis en œuvre dans les combustibles des réacteurs expérimentaux à 20 %, le RJH fait appel à un combustible à forte densité en uranium, de façon à compenser la réduction de l'enrichissement. Ce combustible est en cours de développement dans un cadre international (voir encadré, ci-dessous).

#### Les développements de combustibles pour les réacteurs expérimentaux

Les combustibles des réacteurs expérimentaux se caractérisent par de fortes densités de puissance, afin de fournir des flux de neutrons importants. Ils sont conçus à cet effet et, dans les premières décennies de développement des réacteurs expérimentaux, ils ont mis largement en œuvre de l'uranium hautement enrichi en U 235 (UHE), ce qui était la voie la plus simple pour obtenir les hauts flux requis.

Depuis la fin des années 70, une initiative internationale a été lancée pour réduire et, à terme, éliminer l'usage de l'UHE considéré comme proliférant, notamment dans les réacteurs expérimentaux, en se limitant, pour la mise en œuvre destinée à faire fonctionner ces réacteurs, à l'utilisation d'uranium faiblement enrichi (UFE) pour lequel l'enrichissement est inférieur à 20 % et considéré comme non proliférant.

Les combustibles des réacteurs expérimentaux sont de conception et de forme très diverses. Toutefois, de nombreux réacteurs expérimentaux dans le monde utilisent des combustibles constitués de plaques assemblées dans des boîtiers ou cylindres pour constituer des éléments (fig. 93). Ces plaques minces (d'environ 1 mm d'épaisseur) sont constituées de particules d'un composé métallique d'uranium, dispersées dans une matrice d'aluminium, ce dernier étant choisi pour sa bonne conductivité thermique, et l'ensemble étant recouvert d'un gainage le plus souvent constitué d'un alliage d'aluminium.

Les combustibles UHE à plaques sont constitués de particules d'un composé d'uranium-aluminium (dénommé « combustible UAI »). La concentration maximale en uranium obtenue avec ce combustible est de l'ordre de 1,7 gU/cm<sup>3</sup> dans la matrice d'aluminium.

Le passage à l'uranium faiblement enrichi nécessite, tant pour les réacteurs existants que pour de nouveaux réacteurs, une augmentation de cette concentration, de manière à compenser la baisse de l'enrichissement et conserver ainsi la forte densité de puissance. Une première étape a été franchie dans les années 80, avec le développement d'un combustible faisant appel, pour les particules d'uranium, à un mélange uranium-silicium (combustible  $U_3Si_2$ ) qui conduit à une concentration en uranium dans la matrice d'aluminium de 4,8 gU/cm<sup>3</sup>. La mise en œuvre de ce combustible a permis de « convertir » progressivement bon nombre de réacteurs expérimentaux à l'utilisation de l'UFE.



Fig. 93. Divers modèles de combustibles à plaques de réacteurs expérimentaux produits par AREVA/CERCA.

Les réacteurs nucléaires expérimentaux

 $(\mathbf{e})$ 



sion » des réacteurs expérimentaux les plus performants, notamment les réacteurs dédiés aux irradiations technologiques et les réacteurs producteurs de faisceaux de neutrons intenses pour l'étude de la matière qui nécessitent, pour pouvoir maintenir leurs niveaux de performances, des concentrations en uranium plus fortes. Aussi, à la fin des années 90, le développement d'un nouveau combustible a-t-il été lancé, constitué cette fois-ci de particules d'uranium molybdène (combustible UMo), ce combustible devant permettre d'atteindre des concentrations en uranium de l'ordre de 8 à 8,5 gU/cm3 et étant retraitable\* après son utilisation.

La communauté internationale concernée, notamment les États-Unis d'Amérique, le Canada, la France, la Fédération de Russie, la Belgique, la Corée du Sud, l'Argentine, s'est organisée pour conduire le développement de ce combustible, tant en ce qui concerne la qualification des procédés de qualification que la démonstration du bon comportement du nouveau combustible sous irradiation ou de sa retraitabilité.

De nombreux essais de qualification de ce combustible sous irradiation, dans des conditions représentatives de flux, de température du combustible et de taux de combustion ont été réalisés dans plusieurs réacteurs expérimentaux d'irradiation, notamment sur des plaques combustibles à l'échelle 1. Plusieurs de ces irradiations, parmi les plus significatives, ont mis en évidence des gonflements et des cloquages anormaux des gaines des plaques (années 2004/2006). Les analyses faites ont montré qu'il se formait un composé d'interaction entre les particules d'UMo et l'aluminium de la matrice, avec de mauvaises propriétés, aussi bien vis-à-vis de la rétention des gaz de fission que de la conductibilité thermique. À l'interface entre ce composé et l'aluminium de la matrice se formaient des cavités où s'accumulaient les gaz de fission, d'où les gonflements et cloquages des plaques.

Depuis, des voies d'amélioration ont été définies pour limiter ou éliminer ces interactions entre particules d'uranium et d'aluminium et sont en cours de qualification en réacteurs d'irradiation. Il s'agit, plus précisément :

- De l'adjonction de silice dans la matrice d'aluminium ;
- de l'enrobage des particules d'UMo par une couche isolante de quelques microns (par oxydation, zirconium, zirconium/nitrure).

La figure 94 montre les résultats d'essais sous irradiation du combustible UMo, réalisés dans le réacteur OSIRIS du CEA (programme IRIS), et l'effet bénéfique de l'adjonction de silice dans la matrice d'aluminium et de l'isolation des particules par leur oxydation superficielle.

Les essais IRIS dans OSIRIS ont comporté trois types de plaques de combustible UMo :

- IRIS 1 : plaques avec des particules UMo oxydées en surface, dispersées dans une matrice d'aluminium ;
- IRIS 2 : plaques avec des particules d'UMo dispersées dans une matrice d'aluminium ;
- IRIS 3 : plaques avec des particules d'UMo dispersées dans une matrice d'aluminium comportant 2 % en masse de silice.

Le graphique montre l'évolution du gonflement des plaques, en microns, en fonction de l'irradiation cumulée. Il met en évidence le bon comportement des combustibles pour lesquels les particules avaient été, au préalable, oxydées ou pour lesquels de la silice avait été mélangée à l'aluminium de la matrice, par rapport aux plaques combustible ne comportant pas ces améliorations. Ces dernières présentent, vers le milieu du programme d'irradiation, des gonflements excessifs (supérieurs à 200 microns) surgissant brutalement. La poursuite de l'irradiation aurait conduit à la rupture de la gaine de ces combustibles.

Enfin, une autre alternative est également en cours de développement : elle consiste à réaliser un combustible constitué d'une fine plaque d'UMo métal (combustible dénommé « UMo monolithique ») gainée. Cette solution permet d'atteindre des concentrations en uranium de l'ordre de 16 gU/cm<sup>3</sup> et de convertir ainsi à l'uranium faiblement enrichi les réacteurs existants les plus performants. Les points durs nécessitant des



Dispositif expérimental pour irradiation de plaques combustibles dans OSIRIS



développements importants concernent la réalisation de la plaque d'UMo, dont l'épaisseur est de quelques dixièmes de millimètres, ainsi que le maintien de la cohésion du combustible entre la plaque d'UMo et la gaine.

Fig. 94. Évolution de l'épaisseur de plaques de différents combustibles de type UMo, sous l'effet de l'irradiation dans le réacteur OSIRIS.

Outre les performances neutroniques, un autre domaine important dimensionnant la conception du réacteur est celui de la sûreté. Si les réacteurs MTRs en fonctionnement sont sûrs, il n'en reste pas moins vrai que leur conception date bientôt d'une cinquantaine d'années, et les options de sûreté correspondantes ne sont plus acceptables aujourd'hui.

Le RJH est conçu pour répondre aux exigences de sûreté modernes applicables à l'ensemble des installations nucléaires, qu'elles soient de puissance ou de recherche.

De TRITON à ORPHÉE, des années 50 aux années 80, les réacteurs de recherche au CEA ont vu leurs référen-

tiels de sûreté se développer, tout en restant sur une ligne directrice commune : des dessins simples et robustes visant des performances neutroniques maîtrisées, des validations de concepts expérimentales, la prise en compte d'un accident de réactivité de type **BORAX**\*, etc.

Pour répondre aux exigences de la sûreté, un **circuit primaire**\* fermé a été adopté. Cela représente une discontinuité majeure, par rapport aux autres réacteurs de recherche développés par le CEA.

La conception du cœur RJH réalise un compromis entre les objectifs de performances et les contraintes de sûreté, en plaçant la virole du circuit primaire entre le casier du cœur et le réflecteur.

Ce schéma présente l'avantage de :

- 1. Sur-pressuriser le cœur, permettant ainsi d'améliorer le refroidissement du combustible ;
- 2. laisser le réflecteur en dehors du circuit primaire. Cette conception offre une grande flexibilité expérimentale : il est, notamment, possible de mettre en place des systèmes à déplacement permettant de rapprocher ou d'éloigner du cœur des échantillons combustibles, simulant ainsi des transitoires de puissance ou encore offrant une position de repli sûre pour des expériences sensibles (fig. 95).

Néanmoins, cela impose de soumettre la virole du circuit primaire au droit du cœur à un flux de neutrons important. La qualification de cette virole et sa durée de vie sont ainsi devenus un des points importants du projet.

La phase de gestation du projet RJH, de 1996 à 2001, a permis la maturation de son référentiel de sûreté, en prenant en compte les règles fondamentales de sûreté valables pour les réacteurs de puissance, en élaborant des codes conception



et construction pour les équipements mécaniques, électriques, et en tirant toute l'expérience des réévaluations de sûreté de SILOÉ, ORPHÉE et OSIRIS.

Les principes de base modernes ont été appliqués à la démarche de sûreté : **défense en profondeur**\* déclinée sur plusieurs niveaux, application du principe des trois **barrières de confinement**\*, démarche d'optimisation de la radioprotection. D'autres points sont devenus essentiels dans la démonstration de sûreté du réacteur, tels que le couplage réacteur-expériences, la prise en compte des facteurs humains, la gestion des risques de mode commun par la séparation géo-graphique, la diversification des matériels, etc. La mise en application de ces principes s'appuie sur l'identification et le classement en situations/conditions de fonctionnement, sur l'étude des agressions d'origine interne et externe, sur l'identification et le classement des éléments importants pour la sûreté, sur la définition de critères qualité de tous les composants, etc.

Cette démarche de sûreté, entérinée par l'Autorité de sûreté, a abouti au décret de création de l'INB 172 – RJH –, le 14 octobre 2009.

La construction du RJH a démarré en 2007, pour une mise en service en 2016 (fig. 96, page suivante).

Daniel IRACANE, Direction de l'innovation et du soutien nucléaire, directeur du programme RJH

André CHABRE Direction de l'énergie nucléaire et Patrick LEMOINE

Direction de l'innovation et du soutien nucléaire, projet RJH





Fig. 96. Le chantier du réacteur Jules Horowitz, sur le site de Cadarache (mars 2011).

#### ▶ Bibliographie

Monographie DEN, *Les combustibles nucléaires*, combustibles pour les réacteurs de recherche.

Van Den-Berge (S.) et al., « From high enriched to low enriched uranium fuel in research reactors », SCK/CEN (Belgium), revue RGN,  $n^{\circ}$  6, 2010.

LAKOVLEV (V.V.) et al., « The main results of investigation of modified dispersion LEU UMo fuel tested in the MIR reactor », HOTLAB Conference 2011, RIAR, Dimitrovgrad, Russie (2011).



# Les programmes expérimentaux et les dispositifs associés, dans le réacteur Jules Horowitz

#### Ce qu'on veut faire avec le RJH

Les réacteurs expérimentaux MTR (*Material Test Reactor*) sont des outils destinés à mettre en œuvre des dispositifs expérimentaux d'irradiation, en vue de la qualification de matériaux, de combustibles, ou de composants de réacteurs sous sollicitation nominale ou accidentelle.

Le RJH arrive à la croisée des chemins, dans un contexte très particulier où :

- D'une part, les réacteurs de deuxième et troisième génération, en service ou qui seront mis en service dans les prochaines années vont continuer à fonctionner sur une période de plusieurs dizaines d'années. Pour ces réacteurs, le soutien apporté par les réacteurs expérimentaux va porter essentiellement sur les problèmes d'allongement de la durée de vie (vieillissement de leurs matériaux) et l'amélioration des performances, notamment celles des combustibles ;
- d'autre part, le développement de réacteurs de quatrième génération constitue une rupture technologique bien plus prononcée. Ces réacteurs nécessitent de nouveaux matériaux, capables de résister aux irradiations aux neutrons rapides et aux hautes températures, et de nouveaux combustibles s'intégrant dans des cycles d'utilisation optimisés des matières nucléaires.

Cela a conduit à orienter les besoins en programmes expérimentaux et en dispositifs associés, vers deux domaines :

- Les programmes du RJH pour le soutien au nucléaire industriel actuel et à moyen terme destinés à qualifier la combustible haute performance pour les réacteurs de troisième génération : comportement en régime transitoire (rampes), analyse des produits de fission relâchés, quantification des marges par rapport à la rupture de la gaine du combustible, en situations normales et accidentelles ;
- les programmes du RJH pour le nucléaire du futur : centrés, dans un premier temps, sur les matériaux (pour les structures et le combustible) envisagés pour les réacteurs correspondants, et notamment les réacteurs rapides refroidis au sodium ou à gaz.

En outre, il ne faut pas oublier que les réacteurs expérimentaux sont des outils qui devront s'adapter à des besoins et aux programmes correspondants non identifiés, au moment de leur conception et de leur mise en service.

#### Les types d'expériences dans le RJH

Les dispositions prises dans les réacteurs expérimentaux, et notamment les réservations de zones expérimentales, sont conçues pour permettre de réaliser une gamme très étendue de types d'expérimentations, en fonction des niveaux de flux voulus, des emplacements disponibles, de l'implantation possible de dispositifs et de boucles aux performances très variées.

Ainsi, les programmes associés au développement de matériaux et combustibles se déroulent, en général, en plusieurs étapes, avec, en particulier :

- Des essais de screening\* (recherche des matériaux les plus appropriés et de la meilleure microstructure en situation voisine des conditions d'utilisation nominale); il s'agit de tests comparatifs, avec une importante capacité d'emport en échantillons à tester;
- des essais de caractérisation (domaine d'étude plus étendu, mais sur un nombre réduit d'échantillons). Les conditions d'irradiation couvrent alors un domaine plus vaste que les situations nominales et s'étendent, en général, aux situations incidentelles, voire accidentelles. Des conditions très spécifiques, parfois très différentes de situations de fonctionnement, peuvent être requises pour améliorer les connaissances physiques et pour apporter, par l'expérimentation, des éléments de données de base intervenant en soutien à la modélisation par le calcul ;
- des essais de qualification qui viseront à tester un produit proche du produit industriel (par exemple, un crayon combustible qui associe le (ou les) matériau(x) fissile(s) et la (ou les) différente(s) enveloppe(s) assurant le confinement des produits radioactifs);
- des essais de sûreté permettant l'étude du comportement des éléments combustibles, lors d'accidents hypothétiques (par exemple, un Accident de Perte de Réfrigérant Primaire – APRP\*).

Pour ces différents essais, les paramètres expérimentaux sont multiples et seront testés individuellement (essais à caractère analytique) ou de façon simultanée pour étudier les couplages éventuels, en particulier dans les essais de qualification. Par ailleurs, ces domaines d'utilisation sont relativement larges et

Les réacteurs nucléaires expérimentaux

supposent des environnements ou des technologies spécifiques, appropriés pour chaque cas. Il est également évident que les besoins évolueront, comme nous l'avons déjà indiqué, et que la description des dispositifs d'accueil qui va suivre ne correspond qu'à une vision actuelle, même si certains aspects sont déjà connus pour être pérennes sur des durées relativement longues.

### La conception du RJH, au service des expériences

La conception générale du réacteur Jules Horowitz (RJH) a été optimisée pour conduire le programme expérimental évoqué ci-dessus. Le cœur du RJH, bien que refroidi à l'eau, est conçu pour la production, d'une part, d'un fort flux de neutrons rapides dans le cœur, afin d'étudier le vieillissement des matériaux sous flux ou d'effectuer des essais « combustibles » nécessitant un flux rapide, et, d'autre part, d'un fort flux de neutrons thermiques en réflecteur pour l'étude du comportement des combustibles.

Les cavités permettant d'accueillir les dispositifs d'irradiation dans le cœur ont un diamètre de 35 mm, pour les plus petites, à 80 mm, pour les plus grandes. Dans le réflecteur, les dispositifs peuvent être fixes (la puissance est alors directement liée au réacteur) ou mobiles, sur des emplacements qui permettent l'ajustement de la puissance par simple déplacement du dispositif. Le diamètre est d'environ 100 mm pour les emplacements mobiles, mais peut être adapté (jusqu'à environ 200 mm) pour les emplacements fixes (fig. 97). Afin de créer des conditions expérimentales représentatives des conditions réelles en réacteur électrogène, les dispositifs d'irradiation implantés dans le cœur ou dans le réflecteur peuvent reconstituer un environnement thermo-hydraulique/thermique particulier, associé à la circulation d'un fluide caloporteur (eau pressurisée, gaz, métal liquide...) à caractéristiques contrôlées (pression, débit, température, impuretés...). Les équipements correspondants (pompes, échangeurs, système de pressurisation, d'épuration...) et les systèmes électriques associés sont implantés en périphérie de piscine dans des locaux dédiés. La conception de l'installation autorise des charges au sol conséquentes et met à disposition une puissance électrique et une capacité de refroidissement significatives, ce qui autorisera l'implantation de matériel lourd, avec un blindage éventuel.

Par ailleurs, il est apparu important de prévoir le suivi en ligne du relâchement de produits radioactifs émis au cours d'une expérience (par prélèvement de gaz à l'intérieur d'un crayon étanche, en cours d'irradiation) ou par prélèvement dans le canal de refroidissement (gaz ou liquide), en situation de rupture de gaine.

Le cœur est dimensionné pour fonctionner en régime stable ou lentement variable. Les expérimentations nécessitant des variations de puissance rapides seront installées sur des systèmes à déplacement implantés dans le réflecteur. Ceux-ci permettent de régler la distance par rapport au cœur, et donc le niveau de puissance dans le dispositif. Ces systèmes peuvent simuler des transitoires de puissance relativement rapides, comme, par exemple, des accidents de remontée intempestive de barre de contrôle. En revanche, les transitoires accidentels de type excursion de puissance (les



Fig. 97. L'emplacement des dispositifs expérimentaux dans le cœur du réacteur Jules Horowitz.

Les programmes expérimentaux et les dispositifs associés, dans le réacteur Jules Horowitz

« **RIA**\* ») sont trop rapides pour être simulés au moyen d'un dispositif à déplacement, et n'entrent pas dans le dimensionnement du réacteur.

La capacité d'emport du RJH est typiquement d'une vingtaine d'expériences en simultané. Le déploiement de nombreuses expériences simultanées sur une même installation se traduit par une réduction du coût de chaque expérience. Ce critère est important dans les programmes de développement des matériaux et combustibles.

#### Les dispositifs d'accueil des expériences dans le RJH

Dans la suite du texte, nous parlerons de dispositifs d'accueil, et de « porte-échantillons ». Les dispositifs d'accueil sont des circuits qui permettent de piloter / contrôler l'environnement de la charge expérimentale ; ils permettent la réalisation de « type » ou « familles d'expériences ». Les « porte-échantillons » sont introduits dans ces dispositifs d'accueil avec une instrumentation adaptée et permettent la réalisation d'une expérience. Cette différentiation est également représentative de durées d'investissement plus ou moins longues : quarante à cinquante ans pour l'installation ; de l'ordre de dix à vingt ans pour les dispositifs d'accueil, et de quelques mois à quelques années pour les porte-échantillons. Les conceptions générales doivent être aussi accueillantes que possible pour que le réacteur offre un maximum d'intérêts pendant toute sa durée de fonctionnement. Ainsi, les dispositifs d'accueil et les porteéchantillons (PE) auront des technologies plus « ciblées » sur le besoin expérimental associé à l'actualité scientifique ou industrielle et à la technologie disponible.

Parmi les dispositifs d'accueil actuellement en cours de développement pour être opérationnels dès les premières années de fonctionnement du RJH, nous citerons :

#### MADISON (Multirod Adaptable Device for Irradiations of LWR fuel Samples Operating in Normal Conditions)

Cette boucle d'irradiation a été conçue pour les irradiations de combustible de longue durée en conditions nominales rencontrées dans les réacteurs à eau bouillante ou pressurisée. Ces irradiations seront d'autant plus attractives qu'elles pourront embarquer plusieurs crayons, et l'intérêt d'irradiations comparatives conduit à avoir un niveau de flux neutronique homogène dans le dispositif (fig. 98 et 99).

Cette installation est particulièrement dédiée aux effets à « long terme » ; elle sera donc utilisée pour des études de comportement de combustible sous irradiation (évolution de



Fig. 98. Le dispositif d'irradiation MADISON, pour l'étude du comportement du combustible en conditions « normales ».



la micro-structure, relâchement de gaz de fission, gonflement...), que ce soit pour des expériences de *screening* ou pour des expériences de qualification de composants. Ces irradiations supposent des conditions représentatives au niveau thermique, thermo-hydraulique, neutronique, mais aussi au niveau de la chimie de l'eau.



Fig. 99. L'implantation du dispositif MADISON dans le cœur du RJH.

Cette installation d'accueil comporte une partie implantée sur un système à déplacement (pour ajuster le niveau de puissance), afin d'irradier le combustible d'essai, et une partie « à terre » qui assurera les conditions thermohydrauliques du circuit (débit ; pression, température) et chimiques (additifs de type B, Li, H<sub>2</sub>...). Cette boucle à eau comporte aussi un système d'épuration pour éliminer les éléments indésirables).

### ADELINE (Advanced Device for testing up to Limits Nuclear fuel Elements)

ADELINE est un système d'irradiation conçu pour tester le combustible au-delà des critères de conception, afin d'évaluer les marges par rapport à la rupture, voire pour fonctionner avec une gaine défectueuse (fig. 100 et 101).

Sa finalité est donc d'étudier le combustible dans des conditions très sollicitantes. À titre d'exemples, nous pouvont citer :

- Le comportement en rampe de puissance ;
- les expériences de type
   « lift-off » (étude du risque
   de décollement de la gaine,
   en cas de sur-pressurisa tion interne d'un crayon);
- la détermination des puissances conduisant à la fusion du combustible ;
- l'évaluation des relâchements en PF, et éventuellement en matière fissile, dans le circuit primaire en situation de fonctionnement, avec rupture de gaine.

Les essais sont donc de durée relativement courte, de quelques heures à quelques semaines. Ils entrent dans les catégories des essais de caractérisation / qualification de crayon.



Fig. 100. Le dispositif expérimental ADELINE pour l'étude du combustible en conditions « altérées ».

Ces irradiations supposent des conditions représentatives aux niveaux thermique, thermohydraulique et neutronique.

Cette installation d'accueil comporte une partie implantée sur un système à déplacement (pour faire subir à l'échantillon testé le transitoire de puissance voulu) et



Fig. 101. L'implantation du dispositif ADELINE dans le cœur du RJH.

une partie « à terre » qui assurera les conditions thermohydrauliques du circuit (débit, pression, température) et chimiques (additifs de type B, Li,  $H_2...$ ), ainsi qu'un système d'épuration « PF » destiné à éliminer les éléments actifs émis lors de l'expérience.

### LORELEI (Light Water One Rod Equipment for LOCA Experimental Investigations)

Ce dispositif expérimental est dédié aux études d'accident de perte de réfrigérant primaire (voir, *infra*, p. 107-118, le chapitre intitulé « Étudier les situations accidentelles »).

#### CALIPSO-MICA

Ces dispositifs sont dédiés à l'irradiation de matériaux, l'objectif étant d'étudier leur comportement mécanique sous irradiation, dans des conditions thermiques homogènes et précises. Pour remplir cette dernière condition, ces dispositifs fonctionnent « en NaK » (eutectique sodium – potassium qui est liquide à température ambiante). Le pilotage de la température est effectué en mettant à profit l'échauffement gamma comme source de chaleur (avec, en général, un complément d'origine électrique) et en ajustant les fuites thermiques à travers les parois externes du dispositif (l'évacuation d'énergie est assurée par l'eau de refroidissement du cœur).

**CALIPSO** (*In Core Advanced Loop for Irradiation in Potassium-Sodium*) : ce dispositif est dédié à l'irradiation de matériaux dans la zone centrale du cœur où le flux de neutrons rapides permet d'atteindre des « taux d'endommagement » relativement importants (16 dpa/an) [fig. 102 et 103]. Compte tenu de l'échauffement gamma assez intense dans la zone centrale, et pour respecter une très bonne homogénéité thermique de la charge expérimentale (moins de 6 °C pour une charge type de 60 cm), le NaK est mis en circulation au moyen d'une pompe électromagnétique installée dans le dispositif lui-même (au-dessus de la zone sous flux).

**MICA**: ce dispositif est dédié à l'irradiation de matériaux dans la zone intermédiaire (demi-rayon) ou en périphérie du cœur. L'échauffement gamma moins intense permet de fonctionner en NaK statique, l'homogénéité thermique axiale étant assurée en compensant le profil d'échauffement gamma par des



Fig. 102. Le dispositif expérimental CALIPSO, pour l'étude du comportement thermomécanique du combustible sous irradiation.

éléments chauffants répartis axialement (moins puissants dans la zone centrale) et en adaptant également le profil axial de l'épaisseur de calorifuge.

Dans l'état actuel de leur conception, les dispositifs précédents sont dimensionnés pour fonctionner dans la gamme 250/400 °C qui correspond à la filière des réacteurs à eau légère ; leur dimensionnement sera, ensuite, adapté à la gamme 450/600 °C pour répondre au besoin de la filière des réacteurs à neutrons rapides. Pour ce qui est des gammes à haute température (1 000/1 200 °C), une technologie dérivée de MICA, et déjà mise en œuvre sur OSIRIS, sera employée. Le principe consiste à fonctionner « en gaz », au lieu d'utiliser le NaK pour l'environnement de la charge.



Fig. 103. Le dispositif expérimental CALIPSO.

Les descriptions précédentes correspondent à des dispositifs qui s'inscrivent dans la continuité des demandes actuelles et sont principalement orientées « réacteurs à eau légère ». La conception de dispositifs dédiés à la filière à neutrons rapides, sodium et éventuellement gaz, se fera en fonction des besoins exprimés. Les premières analyses ont, cependant, montré que le développement des technologies mises en œuvre pour les dispositifs actuels pourra être, au moins partiellement, déployée sur les dispositifs dédiés aux autres filières, en particulier les principaux composants de CALIPSO (échangeur, pompe électro-magnétique).

## Un projet européen pour l'étude des matériaux sous irradiation

Le projet européen « MTR+I3 » (Integrated Infrastructure Initiative for Material Testing Reactor), lancé dans le cadre du 6<sup>e</sup> PCRD, avait pour objectif d'établir une coopération durable entre les exploitants européens de réacteurs d'irradiation et les laboratoires associés, afin de maintenir le *leadership* européen dans le domaine des irradiations de matériaux et combustibles, et de préparer l'implantation de nouvelles installations, dont le RJH. Ce projet regroupait la quasi-totalité des instituts de recherche européens travaillant dans le domaine du développement de l'énergie nucléaire (18 instituts représentant 14 pays).

Les développements technologiques réalisés dans le cadre de ce projet européen ont couvert des domaines aussi variés que celui des études sur les performances d'écrans neutroniques, la conception de dispositifs, comme les boucles à caloporteur gaz (et, en particulier, la conception des compresseurs, composants clés de ce type d'installation), les boucles à métaux liquides (en particulier, Pb-Bi) et des dispositifs de simulation de transitoires de puissance dans les réacteurs de recherche. Le projet européen a aussi permis la conception (et, pour certains d'entre eux, la réalisation) de systèmes de mesure « fins », dans le domaine de la mise sous contrainte de matériaux et des mesures en ligne du fluage, des détections de relâchement de gaz de fission hors du combustible, et des techniques de contrôles chimiques de l'eau en réacteur.

Enfin, la tenue d'équipements électroniques sous irradiation a pu être testée.

#### *Un exemple de développement innovant d'un dispositif d'étude du fluage sous contrainte biaxiale et sous irradiation*

Pendant le fonctionnement normal d'un réacteur à eau légère, les gaines du combustible subissent des contraintes thermomécaniques variables et multiaxiales dues à l'environnement du crayon combustible et aux interactions entre les pastilles et la gaine. La modélisation des performances du combustible et les évaluations de sûreté exigent des données mécaniques fiables sur le comportement des gaines, comme, par exemple, le fluage en température et sous irradiation de gaines soumises à des contraintes multiaxiales. Cette modélisation est d'autant plus complexe que le matériau de gainage (alliage de zirconium) est fortement anisotrope, compte tenu de sa structure cristalline hexagonale et de la texture induite par le processus de fabrication.

Deux dispositifs innovants de système de mise sous contrainte d'un échantillon de gaine, avec mesure des déformations, ont été, pour cela, développés par les participants au réseau.

Ces dispositifs permettent la mise sous contrainte contrôlée de l'échantillon selon des états de contrainte uni-axiale ou bi-axiale (éventuellement variable) à l'aide de soufflets pneumatiques. Les mesures de déformations progressives de l'échantillon sont réalisées à l'aide de sondes différentielles linéaires (*Linear Variable Differential Transformer*, LVDT) à capteur inductif.

- Le dispositif uni-axial teste un tronçon de gaine : un système de soufflets placé à l'intérieur de l'échantillon permet de soumettre ce dernier à une charge axiale de 300 N, grâce à une pressurisation de 12 MPa.
- Le dispositif bi-axial met en œuvre un tronçon de gaine fermé et pressurisé, ce qui permet de solliciter ce tronçon en contraintes axiale et radiale; Il est équipé, en outre, d'un soufflet externe pressurisé (permettant d'atteindre des charges axiales de l'ordre de 2500 N). Le contrôle des deux pressions est indépendant et permet de piloter le rapport  $\sigma_{ax}/\sigma_{rad}$  de bi-axialité. Les déformations axiales sont mesurées par une sonde « LVDT ». Une mesure de déformation diamétrale par trois points de contact a également été étudiée. La conception schématique de ce dispositif est montrée ci-après (fig. 104).



Fig. 104. Dispositif pour l'étude de tronçons combustibles sous irradiation et sous contrainte.

Une autre application de ce type de dispositif a été développée pour l'étude de la corrosion sous contrainte et sous irradiation des aciers inoxydables composant les structures internes du cœur d'un réacteur à eau légère (*irradiation assisted stress corrosion cracking* – IASCC). Le phénomène comporte une étape d'initiation et une étape de propagation de la fissuration. Cette dernière étape a un comportement déterministe qui a été largement étudié. C'est l'étape d'initiation, moins connue, qui fait surtout l'objet de l'étude. Pour cela, l'essai de corrosion sous contrainte correspondant doit permettre le chargement mécanique de l'échantillon et disposer d'une instrumentation permettant des mesures en ligne des déformations et du processus de fissuration, sans oublier un contrôle précis de la composition chimique de l'eau.

Outre le système de chargement à soufflet pneumatique et les mesures de déplacement de type LVDT, le dispositif comporte des mesures électrochimiques de bruit pour détecter l'initiation des fissures, et des mesures électriques spécifiques (*« potential drop method »*) pour la mesure de propagation des fissures (systèmes développés par PSI et le CEA). La figure 105 montre les systèmes de chargement et de mesure développés. Des méthodes électrochimiques supplémentaires, pour le contrôle des conditions environnementales (chimiques), ont été développées par STUDSVIK, AEKI et UJV.



Fig. 105. Détail de l'appareillage pour l'étude de la corrosion sous irradiation et sous contrainte.

Christian GONNIER Département d'étude des réacteurs et Daniel IRACANE Directeur du programme RJH

Les programmes expérimentaux et les dispositifs associés, dans le réacteur Jules Horowitz

# Irradiation des matériaux, au moyen de faisceaux d'ions

orsqu'un faisceau de neutrons bombarde un matériau, les neutrons cèdent une partie de leur énergie cinétique aux noyaux de la cible, à la suite de collisions presque purement élastiques. L'endommagement du matériau résulte alors des déplacements d'atomes. Les ions primaires ainsi produits causeront, à leur tour, de nouveaux déplacements d'atomes à l'origine de l'apparition de cascades et de sous-cascades de collisions. Ces effets balistiques vont induire une modification de la microstructure du matériau irradié. Par ailleurs. les neutrons provoquent également des réactions nucléaires et des réactions de transmutation qui vont produire de nouveaux atomes : de l'hélium, de l'hydrogène et des produits de transmutation, à l'origine de modifications de la composition chimique du matériau irradié. Ces modifications sont susceptibles d'induire des changements dimensionnels au sein du matériau et peuvent avoir des répercussions sur ses propriétés thermomécaniques.

#### Simulation de l'irradiation neutronique par une irradiation aux ions

L'ensemble de ces processus physiques, déplacements d'atomes – production de gaz et de produits secondaires / modifications dimensionnelles –, évolution des propriétés thermomécaniques, peuvent être simulés expérimentalement en s'appuyant sur des irradiations, au moyen de faisceaux d'ions en mode mono – ou multi-faisceaux. En effet, lorsqu'un faisceau d'ions bombarde un matériau, les ions incidents vont produire, par des chocs nucléaires élastiques, des ions de recul primaires (ou « PKA » : *Primary Knocked-on Atom*) qui vont, à leur tour, alimenter la chaîne des collisions. La figure 106 montre les résultats en endommagement produit sur du fer, respectivement par des faisceaux de neutrons et des faisceaux d'ions.

Ces effets balistiques sur les noyaux des atomes s'accompagnent d'effets purement électroniques du type excitations et ionisations. Les contributions respectives des interactions nucléaires et des interactions électroniques dépendent du rapport énergie/masse des ions. Pour simplifier, le ralentissement nucléaire prédomine pour les ions dont l'énergie rapportée à la masse se situe entre quelques eV/nucléon, jusqu'à 50 keV/nucléon, avec un maximum autour du keV/nucléon. Le ralentissement électronique, quant à lui, prédomine à partir de 1 MeV/nucléon. Dans le domaine énergétique s'étendant de



Fig. 106. Spectres comparés d'endommagement du fer par des ions (courbes en couleurs) et des neutrons issus de différentes sources (courbes en noir).

quelques dizaines de keV/nucléon à quelques centaines de keV/nucléon, les deux processus interviennent de manière concomitante et contrôlent les transferts d'énergie.

La simulation de l'endommagement neutronique d'un matériau quelconque, ainsi que la production de nouveaux atomes, peuvent donc être réalisées au moyen d'un ou plusieurs faisceaux d'ions bombardant simultanément la cible [1, 2]. Contrairement aux irradiations neutroniques, l'irradiation aux ions offre une souplesse incontestable dans le choix des paramètres de la configuration d'irradiation, depuis la quantité totale de dommages visée, jusqu'à la température d'irradiation imposée au matériau, en passant par le contrôle de la proportion d'énergie déposée par effet électronique et par effet nucléaire. Cette souplesse autorise donc des études paramétriques exhaustives impossibles à mener en réacteur. Un certain nombre de diagnostics analytiques in situ peuvent être couplés à l'enceinte d'irradiation. Par ailleurs, compte tenu de l'absence d'activation des échantillons irradiés par des ions, la caractérisation ex situ peut être programmée sans aucun délai. En revanche, quelques limitations existent sur la représentativité des irradiations aux ions pour simuler des irradiations aux neutrons. Elles découlent, principalement, de la plus faible pénétration des ions dans la matière et des plus fortes valeurs de flux (nombre d'ions.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>) que l'on peut atteindre. Dans le cas d'une irradiation aux ions, la densité de dépôt d'énergie va être beaucoup plus grande, puisque le volume de matière endommagée sera nettement plus faible. Cette différence va limiter les possibilités de mesures post-irradiation

ultérieures de grandeurs physiques et thermomécaniques, à l'échelle macroscopique. Les flux d'ions largement supérieurs aux flux de neutrons vont induire des effets secondaires, comme des gradients locaux de température eux-mêmes susceptibles d'influencer l'évolution de la microstructure (changement de phase éventuel), ou bien la mobilité des défauts (mécanismes de recombinaison).

Malgré ces réserves, les expériences d'irradiation aux ions représentent un puissant moyen d'étude des effets d'irradiation dans les solides, qui vient en complément des expériences d'irradiation aux neutrons, en général beaucoup plus lourdes, longues et chères. Certes, les mécanismes d'endommagement ne sont pas exactement identiques pour les deux types de projectiles, ce qui interdit toute transposition directe des résultats. Cependant, ils sont suffisamment proches pour être justiciables d'une même description théorique.

Pour toutes ces raisons, les expériences d'irradiation aux ions prennent une place croissante dans l'étude des matériaux sous irradiation.

### La plateforme de multi-irradiation aux ions JANNUS

La conception, l'installation et l'exploitation de la plateforme de multi-irradiation JANNUS répondent à un triple objectif :

- Disposer d'un outil pour valider expérimentalement la simulation à l'échelle atomique du comportement des matériaux nucléaires sous irradiation ;
- avoir la possibilité de contrôler les propriétés physiques et mécaniques des solides par implantation/irradiation ;
- promouvoir l'enseignement des interactions ions/matière et des sciences et techniques nucléaires.

La plateforme JANNUS (Jumelage d'Accélérateurs pour les Nanosciences, le Nucléaire et la Simulation) dispose de deux sites expérimentaux. Le premier est situé sur le campus de l'université d'Orsay, où il se compose d'un accélérateur Van de Graaff/Tandem de 2 MV ARAMIS et d'un implanteur ionique de 190 kV IRMA, couplés à un microscope électronique en transmission (MET) de 200 kV. Cette installation est gérée par le CNRS. Le second site se trouve sur le Centre d'études nucléaires de Saclay (CEA) ; il regroupe trois accélérateurs électrostatiques d'ions : un Pelletron™ de 3 MV, ÉPIMÉTHÉE, un Van de Graaff simple étage de 2,5 MV, YVETTE, et un tandem 2 MV, JAPET. Le Pelletron™ est équipé d'une source d'ions multi-chargés à résonance cyclotronique électronique (ECR) [3]. La figure 107, ci-après, donne une idée des performances de la source ECR en termes de production d'ions multi-chargés.



Fig. 107. Flux d'ions produit par la source ECR du Pelletron™ 3 MV, en fonction de l'état de charge de l'ion considéré.

Le tandem est, quant à lui, équipé d'une source d'ions à échange de charges par pulvérisation au césium SNICS II (Source of Negative Ions by Caesium Sputtering).

La figure 108, ci-dessous, décrit schématiquement l'installation double faisceau + MET du site d'Orsay et la figure 109 (page suivante) représente la disposition spatiale des trois accélérateurs de l'installation JANNUS Saclay. Sur cette dernière figure, nous distinguons, d'une part, la chambre d'expériences triple faisceau dans laquelle convergent les trois lignes de faisceau issues respectivement des trois accélérateurs et, d'autre part, sur la gauche du schéma, la ligne d'analyse par faisceau d'ions issue du Van de Graaff YVETTE, avec, au centre, la ligne d'irradiation mono-faisceau issue d'ÉPIMÉTHÉE.

La figure 110 (page suivante) regroupe quatre photographies représentant respectivement : a) l'accélérateur ÉPIMÉTHÉE, b) l'amorçage de l'ampoule de la source d'ions d'YVETTE, c) la chambre triple faisceau et d) le tandem JAPET.



Fig. 108. Description schématique de l'installation double faisceau + microscope électronique à transmission du site JANNUS Orsay.



Fig. 109. Schéma de l'ensemble de l'installation triple faisceau du site JANNUS Saclay.

#### Thèmes de recherche abordés au moyen de la plateforme JANNUS

Parmi les grands thèmes de recherche qui font appel à la plateforme JANNUS, nous pouvons citer la physique fondamentale des interactions ions/matière, les matériaux de structure des réacteurs à eau pressurisée (REP), les combustibles actuels et avancés, les matériaux de structure des réacteurs de la Génération IV à neutrons rapides (RNR) ou à caloporteur gaz (RCG), les matériaux pour la fusion, les matrices de confinement des déchets nucléaires de haute activité et les matrices inertes pour la transmutation des radioéléments à vie longue. De façon plus précise, les problèmes scientifiques posés dans ces différents domaines auxquels les expériences d'irradiation aux ions tentent d'apporter des éléments de réponse, concernent :

- Le gonflement des aciers de structure des réacteurs à eau pressurisée ;
- les mécanismes de formation et de croissance des bulles d'hélium dans les aciers ferritiques ;
- l'influence de l'endommagement sur la vitesse d'oxydation ou la cinétique de corrosion sous contrainte des gaines d'alliages de zirconium ;
  - les mécanismes de transport atomique comme, par exemple, la diffusion de l'oxygène dans le dioxyde d'uranium, la migration du xénon dans les carbures de métaux de transition, ou celle de l'hélium dans les alliages et les composites ;
  - les processus de ségrégation et de précipitation induits par l'irradiation ;
  - les transitions de phase dans les céramiques comme, par exemple, les transitions ordre-désordre, l'amorphisation\* partielle des monazites ou des pyrochlores, ou bien la polygonisation des composés à structure fluorite à haute température ;
  - la stabilité microstructurale à forte fluence et à haute température des matériaux avancés pour les réacteurs du futur, comme les alliages à dispersion d'oxydes (ODS), de carbures (CDS) ou de nitrures (NDS), le carbure de silicium SiC ou encore les composites carbure de silicium matrice et fibres;



Fig. 110. Photographies représentant respectivement :a) l'accélérateur ÉPIMÉTHÉE,b) l'amorçage de l'ampoule de la source d'ions d'YVETTE,

- c) la chambre triple faisceau,
- d) le tandem JAPET.

Les réacteurs nucléaires expérimentaux



- l'étude des effets de synergie entre l'accumulation des dommages et la production des gaz (He et H) sur l'évolution microstructurale des céramiques avancées et des alliages métalliques (Fe ou W) de structure pour la fusion ;
- les mécanismes de croissance des défauts de surface produits dans les aciers à base nickel des tubes des générateurs de vapeur des réacteurs REP et leur influence sur la vitesse de corrosion ;
- les mécanismes de mélange ionique, au voisinage d'interfaces comme les couches de revêtement pour les combustibles avancés ou les matériaux de la fusion destinés à faire face au plasma ;
- la modification contrôlée des propriétés mécanique, physique ou chimique de composants pour des applications optique, magnétique ou micro-électronique ;
- la synthèse assistée par faisceaux d'ions de nouvelles phases de type céramique.

Parallèlement à ces travaux, des développements instrumentaux sont destinés à concevoir, autour de l'installation d'irradiation, une sorte de boîte à outils qui regroupe des techniques de caractérisation *in situ* ou *ex situ* permettant aux expérimentateurs d'évaluer en temps réel les conséquences de l'endommagement de leurs échantillons. En plus de la microscopie en transmission *in situ* à Orsay ou des techniques d'analyse par faisceaux d'ions accessibles sur les deux sites – comme la rétrodiffusion élastique Rutherford (**RBS**\*), la canalisation d'ions (RBS-c), la spectrométrie de recul élastique (ERDA), l'analyse par réactions nucléaires (NRA) et l'émission X induite par particules chargées (**PIXE**\*) –, la spectrométrie d'émission UV-visible, la spectrométrie **Raman**\*, la diffraction X, la thermodésorption et le **recuit de résistivité**\* offrent les possibilités les plus prometteuses.

#### **Positionnement international**

Il existe très peu d'installations expérimentales de multi-irradiation analogues à JANNUS, dans le monde. On en dénombre trois,

au Japon : « Institute for Advanced Energy of Kyoto », « Research Center for Nuclear Science of Tokyo » et « Japan Atomic Energy Agency at Ibaraki » et deux, en Allemagne (FZ Rossendorf et Université d'Iéna). Plusieurs projets ont vu récemment le jour, notamment, « Indira Gandhi Centre for Atomic Research of Kalpakkam » (Inde), « Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas de Madrid » (Espagne) et « Lawrence Livermore National Laboratory (USA) ».

#### Tableau 12

#### L'irradiation du carbure de silicium aux ions lourds

Le carbure de silicium est un matériau potentiellement intéressant comme matériau de gainage ou de structure pour les réacteurs nucléaires du futur, du fait de son caractère réfractaire, de sa bonne résistance mécanique et de son bon comportement sous irradiation. Deux expériences d'irradiation ont été réalisées sur le carbure de silicium monocristallin hexagonal 6H-SiC provenant de deux sources d'approvisionnement distinctes. La première expérience a consisté à irradier des échantillons provenant du LETI sur JANNUS Orsay avec des ions Au2+ de 4 MeV ; la seconde, des échantillons provenant de la société CREE sur JANNUS Saclay avec des ions Ni<sup>+</sup> de 0,92 MeV. Dans les deux cas, la dose atteinte est largement supérieure au seuil d'amorphisation (de l'ordre de 0,5 dpa, à température ambiante [4]). L'ensemble des données relatives à ces deux irradiations est résumé dans le tableau 12. Après ces deux irradiations, la microspectrométrie Raman a mis en évidence la disparition complète des pics Raman relatifs au SiC cristallin due aux brisures des liaisons Si-C (fig. 111). En revanche, de nouvelles bandes sont apparues correspon-



Fig. 111. Évolution sous irradiation et sous recuit des spectres Raman obtenus sur les monocristaux de 6H-SiC provenant du LETI (série 1) et de CREE (série 2).

Ensemble des données relatives aux deux irradiations.				
Échantillon	6H-SiC provenant du LETI	6H-SiC provenant de CREE		
lon	Au <sup>2+</sup>	Ni⁺		
Énergie	4 MeV	0,92 MeV		
Fluence	10 <sup>15</sup> ions.cm <sup>-2</sup>	1,54 x 10 <sup>16</sup> ions.cm <sup>-2</sup>		
R <sub>p</sub> *(nm)	608	505		
ΔRp*(nm)	92	120		
(dE/dx) <sub>e</sub> * (keV/µm)	3 691	1 029		
(dE/dx) <sub>n</sub> *(keV/µm)	2 726	624		
dpa*	2,64	13,5		

\* Paramètres calculés avec le programme de simulation SRIM2008 [6].



Fig. 112. Photos prises par un microscope optique à lumière polarisée a) d'un échantillon de 6H-SiC, avant recuit (les faciès de deux échantillons vierges et des deux échantillons irradiés et non recuits sont identiques) ;

b) d'un échantillon de 6H-SiC initialement monocristallin, irradié par des ions Au, après recuit ;

c) d'un échantillon de 6H-SiC initialement monocristallin, irradié par des ions Ni, après recuit. dant à du SiC désordonné et aux liaisons homonucléaires Si-Si, et C-C au niveau des pics secondaires [5]. Après un recuit à 1 000 °C pendant deux heures (fig. 111), les bandes relatives au 6H-SiC cristallin sont réapparues, du fait de la disparition d'interactions entre les phonons et les défauts d'irradiation, et à cause de la restauration des liaisons Si-C. Néanmoins, les bandes correspondant aux liaisons homonucléaires Si-Si et C-C sont toujours présentes ; la restauration du 6H-SiC monocristallin reste donc encore incomplète. Notons que les spectres relatifs aux deux échantillons sont quasiment identiques, avant irradiation ; ils le sont totalement, après irradiation, et ne présentent que de légères différences, après recuit. De surcroît, après recuit, nous avons pu observer, avec un microscope optique à lumière polarisée (fig. 112), l'apparition de nombreux cristaux à la surface des deux échantillons initialement monocristallins et ayant subi deux irradiations très différentes (tableau 12). La recristallisation de la zone amorphe s'est donc faite, dans les deux cas, sous forme polycristalline. Ces deux expériences sont un parfait exemple d'irradiation réalisées sur les deux sites de JANNUS et conduisant à des résultats très semblables, à savoir une transition de phase monocristal -> amorphe après irradiation de monocristaux 6H-SiC et une transition de phase amorphe  $\rightarrow$  **polycristal après recuit**, dans le même système cristallin.

#### Patrick TROCELLIER, Sandrine MIRO, Jean-Marc COSTANTINI, Stéphanie SORIEUL, Lionel GOSMAIN Département des matériaux pour le nucléaire

et Pascal CHAIX Direction de l'innovation et du soutien nucléaire

#### Références

[1] G.S. WAS et al., « Emulation of neutron irradiation effects with protons: Validation of principle », Journal of Nuclear Materials **300**, p. 198–216, 2002.

[2] R.C. BIRTCHER, P. BALDO, « Use of ion beams to simulate reactions of reactor fuels with their cladding », Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B242, p. 487-489, 2006.

[3] Y. SERRUYS et al., « JANNUS : A multi-irradiation platform for experimental validation at the scale of atomistic modelling », Journal of Nuclear Materials, p. 386-388 and 967-970, 2009.

[4] S. SORIEUL, J.-M. COSTANTINI, L. GOSMAIN, L. THOMÉ and J-J. GROB, *J. Phys.: Condens. Matter* 18 (2006), p. 1-17.

[5] W. J. WEBER, N. YU, L.M. WANG, N.J. HESS, J. Nucl. Mater. 244 (1997) p. 258-265.

[6] J.F. ZIEGLER, J.P. BIERSACK, et U. LITTMARK, « *The Stopping and Ranges of Ions in Solids* », vol. 1, Pergamon, New York, 1985; http://www.srim.org/.

#### ▶ Bibliographie

œ

*Comptes Rendus Physique* **9**, 2008, Numéro spécial consacré aux recherches sur le comportement des matériaux soumis à l'irradiation par des neutrons rapides.