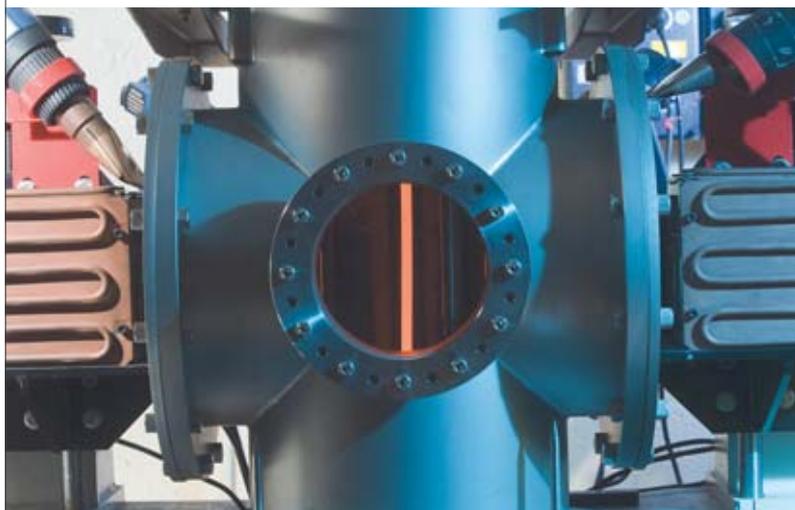


Des innovations pour les matériaux de l'assemblage combustible des réacteurs à eau légère

Bien que les efforts de R&D de ces dernières années aient permis d'améliorer significativement les performances des matériaux de l'assemblage combustible des réacteurs à eau légère et de disposer ainsi de marges de fonctionnement importantes, le gainage du combustible, première barrière de confinement des produits et des gaz de fission radioactifs, fait toujours l'objet d'une attention soutenue. Aussi, des pistes d'innovation sont à l'étude pour accroître encore sa robustesse en conditions nominales ainsi qu'en situations hypothétiques accidentelles.

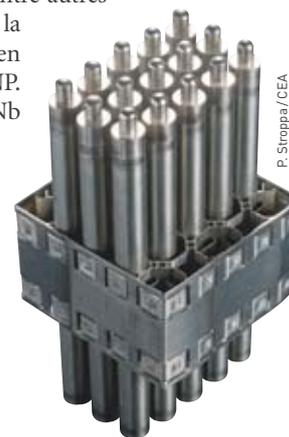


P. Stroppa / CEA

Des essais d'éclatement de gaines en conditions accidentelles à haute température sont réalisés dans l'installation « EDGAR » du Service de recherches métallurgiques appliquées (DEN/DMN/SRMA). Une partie de la gaine chauffée par effet Joule est visible à travers le hublot.

Au sein des réacteurs nucléaires à eau légère (REL), l'assemblage combustible (figure 1) joue un rôle de tout premier ordre sur l'efficacité et la sûreté du réacteur. En particulier, les matériaux de gainage du combustible doivent obéir à un cahier des charges strict et exigeant, dans la mesure où la gaine constitue non seulement la première barrière de confinement des produits et des gaz de fission radioactifs, mais participe aussi à la stabilité dimensionnelle de l'ensemble de l'assemblage, tout en assurant le transfert de chaleur entre le combustible proprement dit et le fluide caloporteur (eau). Les matériaux de gainage du combustible des REL, en alliages base zirconium (Zr), sont donc tenus de résister au mieux aux différentes contraintes en service telles que la corrosion due à l'eau du milieu primaire, à une température de fonctionnement relativement élevée, aux effets de l'irradiation neutronique et aux charge-

ments mécaniques⁽¹⁾ potentiels. Tout ceci a conduit, depuis de nombreuses années, le CEA et ses partenaires industriels à étudier et qualifier de « nouveaux » matériaux de gainage du combustible en visant à accroître leurs performances et à garantir les marges de fonctionnement en conditions nominales ainsi qu'en situations incidentelles ou accidentelles. Ainsi, au cours des vingt dernières années, les développements industriels menés en particulier par Areva NP, en partenariat avec le CEA, ont permis d'apporter des améliorations significatives à l'assemblage combustible des REL. Au niveau des matériaux de gainage, il faut entre autres retenir le développement, la qualification et la mise en œuvre du M5™ d'Areva NP. Cet alliage [base Zr-1%Nb (niobium)-O (oxygène)] présente en effet une résistance à la corrosion en service très nettement supérieure à celle



P. Stroppa / CEA

Figure 1. Portion d'assemblage combustible d'un réacteur à eau sous pression (REP) composé de courts tronçons de gaines de combustible avec bouchons et d'une partie de grille d'espacement des crayons. Un assemblage combustible réel peut comporter jusqu'à 17 x 17 crayons de plus de 4 m de long.

(1) Chargements mécaniques : contraintes exercées sur le matériau/composant en service et/ou en conditions accidentelles, d'origines thermique et/ou mécanique. Par exemple, en service, le tube de gainage combustible subit une pression interne due au gaz de pressurisation initiale et aux gaz de fission, ainsi qu'une pression externe due à l'eau pressurisée (155 bars). En outre, après rattrapage du jeu pastille-gaine initial (au-delà de 1 à 2 cycles de fonctionnement), viennent s'ajouter des contraintes exercées par la pastille de combustible elle-même qui a tendance à gonfler, du fait de la création en son sein des gaz de fission.

du Zircaloy-4 – matériau de gainage du combustible de référence⁽²⁾, déjà ancien, de type Zr-1,3%Sn (étain)-0,2%Fe (fer)-0,1%Cr (**chrome**)-O (oxygène) –, comme l'illustre la figure 2.

À plus long terme, les chercheurs ambitionnent cependant d'accroître encore les performances et la robustesse des matériaux de l'assemblage combustible des REL, en particulier pour permettre une meilleure manœuvrabilité et une augmentation des cycles de fonctionnement et/ou du **taux de combustion** à décharge du combustible, tout en garantissant des marges de sûreté suffisantes, notamment en conditions hypothétiques accidentelles. La R&D en support nécessite d'étudier le comportement des matériaux, depuis les échelles fines (pour la compréhension des phénomènes physiques) jusqu'aux échelles plus macroscopiques (comportement en service, essais semi-intégraux en conditions accidentelles...), et de développer en parallèle une **modélisation** avancée pour **simuler** au mieux le comportement des matériaux de gainage du combustible et disposer ainsi « d'outils prédictifs ».

Des concepts de gainage combustible innovants

Des pistes d'innovation pour les matériaux de l'assemblage combustible sont donc explorées. Des études prospectives visant à évaluer, à plus ou moins long terme, des concepts innovants de gainage, permettant des gains vis-à-vis de certaines des propriétés recherchées pour l'assemblage combustible des REL du futur, sont menées au CEA.

Une gaine « composite »

Il s'agit ici d'améliorer significativement la résistance mécanique à chaud des gaines de combustible, jusqu'aux hautes températures susceptibles d'être atteintes lors de certains scénarios accidentels hypothétiques tels que l'**accident par perte de réfrigérant primaire (APRP)**. L'une des idées qui a prévalu consiste à développer des gaines composites en associant un matériau de gainage traditionnel métallique (alliages base zirconium) – garantissant l'étanchéité de la gaine – à un matériau **céramique** plus résistant à chaud. Parmi les matériaux céramiques envisagés, il convient de citer le **spinelle de magnésium** choisi pour sa compatibilité à l'égard des propriétés neutroniques requises et pour son comportement sous irradiation *a priori* non réducteur. Des prototypes de gaines composites stratifiées métal-céramique ont ainsi été réalisés par **dépôt par projection plasma**. Toutefois, cette piste a été pour l'instant abandonnée car la phase de **frittage** à haute température, indispensable pour densifier le matériau projeté, induit des phénomènes d'**interdiffusion** conduisant à une forte dégradation des interfaces entre les différentes couches de matériaux. Par ailleurs, aux plus basses températures, caractéristiques des conditions nominales de fonctionnement, la présence de couches en matériau céramique entraîne une diminution de la **conductivité thermique** et une perte de **ductilité** globale du gainage combustible, qui pourraient

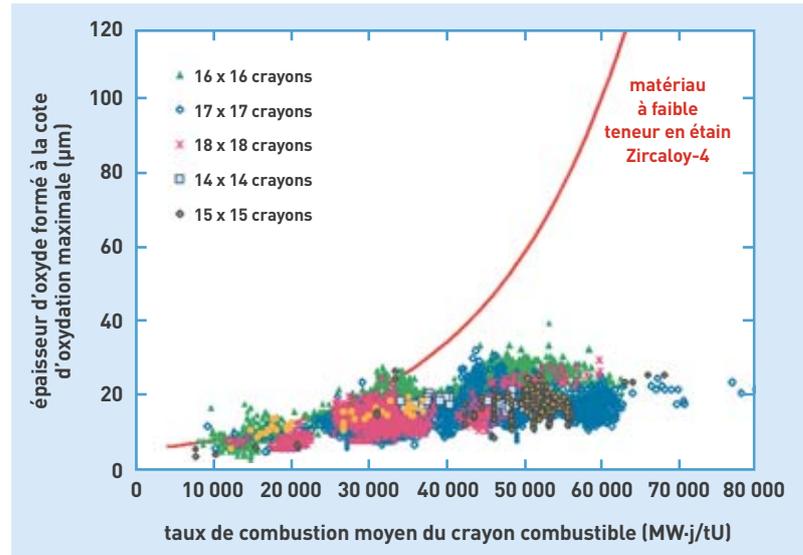


Figure 2. Évolution de l'épaisseur d'oxyde formé en service sur les matériaux de gainage du combustible des REP (au niveau le plus chaud) en fonction du taux de combustion. [D. KACZOROWSKI *et al.* « Corrosion behavior of alloy M5®: experience feedback and understanding of phenomenological aspects » WRFPM, Seoul, Korea, October 19-23, 2008].



Échantillons de gaines ayant subi des tests d'éclatement en conditions accidentelles à haute température dans l'installation « EDGAR ».



Essai de dilatométrie de **trempe** effectué sur un échantillon de gaine soumis à des conditions dynamiques de chauffage puis refroidissement (jusqu'à 100 °C/s).

(2) Combustible de référence : le combustible standard UOX des réacteurs à eau légère est constitué d'oxyde d'uranium enrichi en **uranium 235**.



Machine d'essais d'éclatement en pression interne de gaines en conditions nominales (environ 350 °C) et vue des tronçons de gaines après test.

P. Strappa/CEA

s'avérer rédhibitoires en service. Néanmoins, il faut signaler qu'un concept « céramique-céramique » de type SiCf/SiC (matrice de **carbure** de **silicium** SiC renforcée par des fibres longues de SiC), inspiré des développements effectués pour le gainage des futurs **réacteurs à neutrons rapides refroidis au gaz (RNR-G ; GFR** en anglais pour *Gas Fast Reactor*) – l'une des

filères des **réacteurs nucléaires de quatrième génération** –, est à l'étude dans certains laboratoires étrangers pour une application à des REL du futur.

Une gaine revêtue

Une autre piste d'innovation consiste à tenter d'améliorer la résistance à la corrosion en conditions nominales – mais surtout accidentelles à haute température (APRP) – par le biais d'un revêtement *ad hoc*, en bénéficiant des technologies modernes de dépôt telles que les procédés de **dépôt physique en phase vapeur (PVD)** et de **dépôt chimique en phase vapeur (CVD)**. Le choix s'est rapidement porté sur des revêtements métalliques plutôt que de type céramique, notamment en raison des problèmes de compatibilités physicochimique et thermomécanique entre le revêtement et le substrat métallique en alliage de zirconium. Toute une variété de dépôts est à l'étude, en particulier de type multicouches **submicroniques**. La multiplication des sous-couches permet d'une part, d'associer alternativement différents types de matériaux de revêtement et d'autre part, d'augmenter l'étanchéité du revêtement en cas de défauts et/ou de fissuration de certaines des sous-couches.

Les premiers résultats obtenus sont encourageants. En particulier, sur plusieurs types de dépôts multicouches, un gain très significatif sur la résistance à l'**oxydation** à haute température, simulant des conditions accidentelles hypothétiques, a été constaté (figure 3). Il reste toutefois à étudier le comportement de tels dépôts sous irradiation ainsi que la possibilité de leur transposition à une échelle plus industrielle.

Une gaine « empoisonnée » à l'erbium

En vue d'accroître le taux de combustion à décharge du combustible et/ou les longueurs de cycles de fonctionnement, il est indispensable d'augmenter l'**enrichissement** du combustible en **isotopes fissiles**. Une telle évolution implique nécessairement de disposer d'une **anti-réactivité neutronique** améliorée. Pour ce faire, l'une des voies traditionnellement adoptées consiste à ajouter directement dans les **pastilles** de combustible un **poison neutronique consommable**, en général de l'oxyde de **gadolinium** (Gd_2O_3). Il est alors question d'empoisonnement neutronique hétérogène, car seuls quelques **crayons** de chaque assemblage combustible sont concernés. Ce type de concept constitue d'ailleurs une référence pour les assemblages des futurs **EPR (European Pressurized water Reactor)**. Une alternative, objet d'une R&D en cours, consiste alors à introduire le poison neutronique dans le matériau de gainage plutôt que dans les pastilles de combustible. Le choix s'est porté sur l'**erbium** (Er), compte tenu de ses caractéristiques neutroniques jugées plus favorables pour le concept envisagé. Comme c'est généralement le cas pour tout développement de matériaux nouveaux, les premiers problèmes à résoudre concernent les aspects « fabricabilité ». Puis, dans un deuxième temps, il s'agit de vérifier l'adéquation des propriétés obtenues avec le cahier des charges pour l'application visée.

CEA/DEN/DMN/SRMA

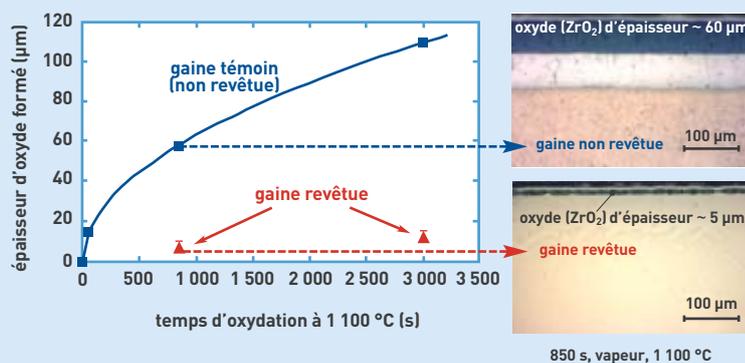


Figure 3. Comportement de tronçons de gaines de combustible lors de l'oxydation en vapeur à haute température (1 100 °C) simulant des conditions accidentelles hypothétiques, tel l'accident par perte de réfrigérant primaire (APRP).

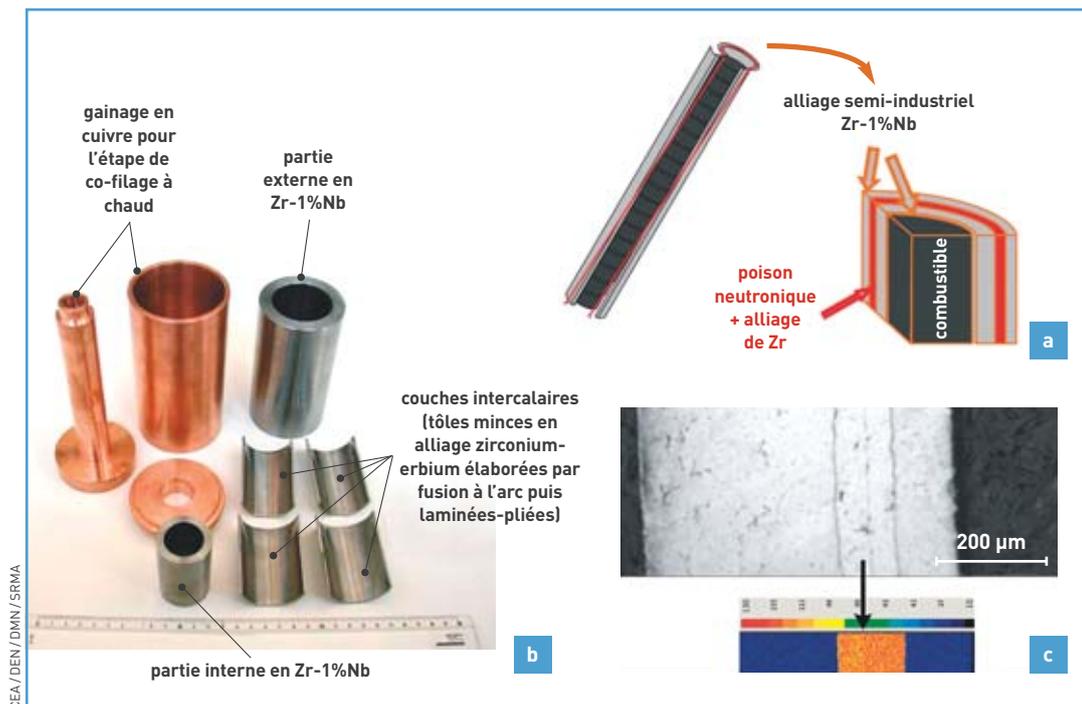


Figure 4.
En a, schéma de la gaine « Triplex » base zirconium avec introduction d'erbium. En b, les différents constituants de l'ébauche avant l'étape de co-filage à chaud. En c, micrographie optique et cartographie X de la gaine finale d'environ 600 µm d'épaisseur. La cartographie X (obtenue à la **microsonde électronique de Castaing**) montre la répartition de l'erbium dans l'épaisseur de la gaine.

vis-à-vis d'une matrice base zirconium. Une première voie de fabrication par **métallurgie des poudres** a tout d'abord été mise en œuvre avec les moyens disponibles au CEA. Celle-ci a permis d'aboutir à une première production de gaine « Triplex », c'est-à-dire à trois couches, dans laquelle l'erbium est inséré sous forme d'une couche intercalaire en alliage zirconium-erbium entre deux couches en alliage Zr-1%Nb (niobium) éprouvé industriellement. Plus récemment, une gamme de fabrication semi-industrielle, basée sur des procédés de **co-filage à chaud** puis co-laminage à froid, a été mise en œuvre avec succès grâce à une collaboration avec **Areva NP/CEZUS** et a conduit à l'élaboration de près de 10 mètres de tube de gaine prototype (figure 4). Les premiers résultats acquis s'avérant encourageants, deux brevets CEA ont été successivement déposés. Il reste cependant à élargir ces travaux à l'étude du comportement sous irradiation neutronique, représentative des conditions prévalant en service, ainsi qu'en situations hypothétiques accidentelles. Enfin, une étude technico-économique

plus poussée doit être réalisée pour évaluer l'intérêt d'un transfert à une échelle plus industrielle.

Du laboratoire à la production industrielle : un travail de longue haleine

Les études prospectives visant à évaluer des concepts innovants de gainage du combustible des REL ont donc permis d'identifier plusieurs pistes intéressantes, dont certaines ont conduit à des dépôts de brevets. Des évaluations à une échelle plus industrielle et des études du comportement sous irradiation sont envisagées dans les années futures. Il faut toutefois rappeler que le développement et la qualification de nouveaux matériaux pour l'assemblage combustible des réacteurs nucléaires répondent à de fortes contraintes de sûreté et passent de ce fait par un important retour d'expérience en service. Ce dernier point nécessite en particulier des irradiations en réacteur d'étude ainsi qu'en réacteurs de puissance industriels, puis des examens en laboratoires chauds. Toutes ces étapes induisent des constantes de temps très élevées, typiquement de 10 à 20 ans, pour pouvoir passer de l'échelle du laboratoire jusqu'à la production à un niveau industriel et à la qualification en service.

> **Jean-Christophe Brachet, Marion Le Flem et Didier Gilbon**

Département des matériaux pour le nucléaire
Direction de l'énergie nucléaire
CEA Centre de Saclay



Vue d'ensemble de la microsonde électronique de Castaing qui permet notamment de quantifier à l'échelle micrométrique la répartition des éléments d'addition et des impuretés au sein des gaines de combustible.

POUR EN SAVOIR PLUS

« Les combustibles nucléaires », Monographie de la Direction de l'énergie nucléaire du CEA, Éditions du Moniteur (2008).

« Science des matériaux pour le nucléaire », CLÉMENT LEMAIGNAN, collection Génie Atomique, EDP Sciences (2004).