

Les alliages ODS pour les structures sous irradiation

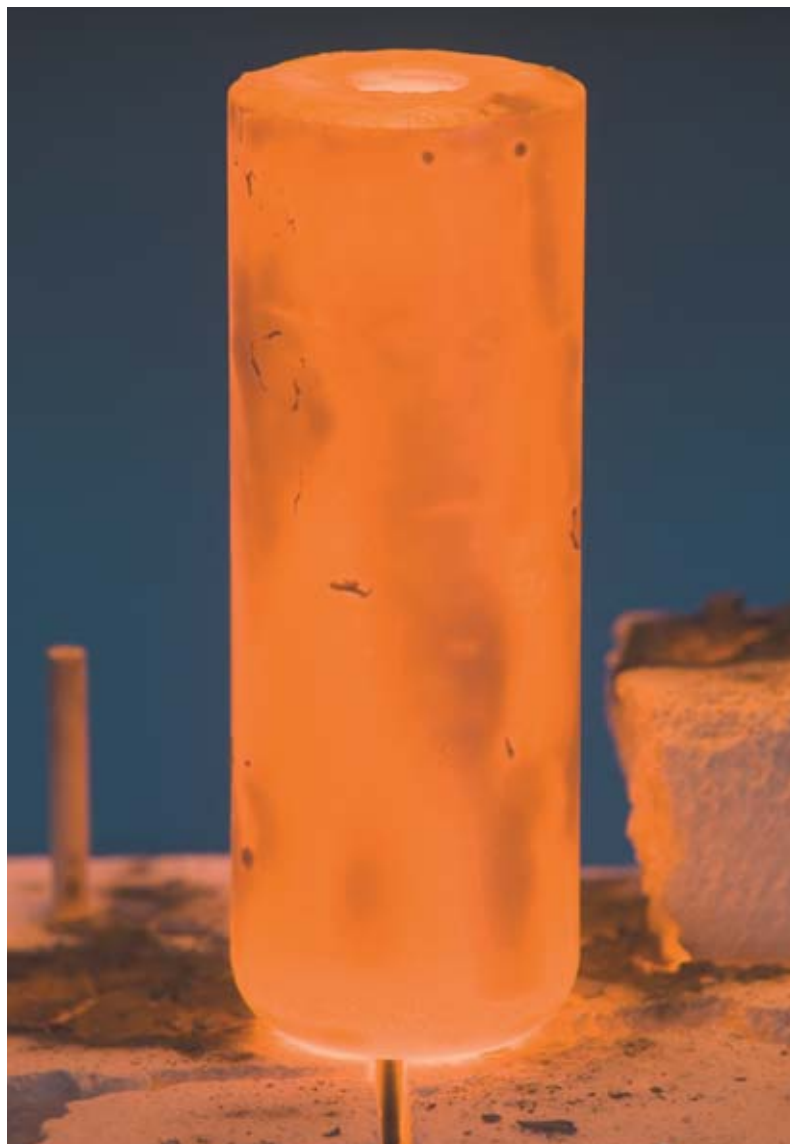
Parmi les solutions envisageables pour le gainage des éléments combustibles des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium de quatrième génération, les ODS, matériaux nanorenforcés par dispersion d'oxydes, offrent de nombreux atouts. En effet, ces matériaux à hautes performances allient à la fois une remarquable résistance mécanique à chaud et un excellent comportement sous irradiation.

Parmi les différentes options possibles pour la construction d'un réacteur à neutrons rapides de quatrième génération, le concept d'un réacteur refroidi au sodium (RNR-Na; SFR en anglais pour *Sodium Fast Reactor*) est celui qui bénéficie du plus grand retour d'expérience. Afin d'améliorer les performances neutroniques de ces réacteurs, la conception du cœur de la filière nécessite un faisceau d'éléments combustibles plus resserré, c'est-à-dire avec des aiguilles combustibles plus grosses et un fil espaceur entre les tubes de gainage plus fin que dans les réacteurs à neutrons rapides Phénix⁽¹⁾ ou Superphénix⁽²⁾ (SPX); figure 1.

Pour éviter une déformation des aiguilles combustibles trop importante, il est primordial que le matériau de gainage gonfle peu sous irradiation. Par ailleurs, dans un objectif d'optimisation économique, les taux de combustion envisagés conduisent à des doses supérieures à celles admissibles sur le matériau de gainage utilisé dans Phénix, les aciers austénitiques 15-15Ti. Il faut donc développer de nouveaux alliages comme les nuances ODS (*Oxide Dispersion Strengthened*) qui sont plus performantes que les aciers austénitiques de dernière génération conçus pour les réacteurs Phénix et Superphénix. Les matériaux ODS proposent non seulement un gonflement négligeable sous irradiation, du fait de leur structure « ferritique » cubique

(1) Phénix : réacteur expérimental de la filière des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Situé à Marcoule (Gard), ce réacteur a divergé pour la première fois en 1973 et s'est arrêté le 1^{er} février 2010. Il a permis, entre autres, d'acquérir des connaissances sur le comportement sous irradiation des matériaux envisagés dans les réacteurs du futur.

(2) Superphénix : réacteur prototype à neutrons rapides refroidi au sodium situé à Creys-Malville (Isère), actuellement en cours de déconstruction. Il a atteint sa pleine puissance en 1986 et s'est arrêté en 1998. Le cœur comprenait 364 assemblages, constitués chacun de 271 aiguilles combustibles contenant un empilement de pastilles d'oxyde mixte U-Pu.



Gainage (billette) porté à haute température, environ 1 100 °C, et contenant la poudre ODS. La billette est prête pour être filée grâce à une presse.

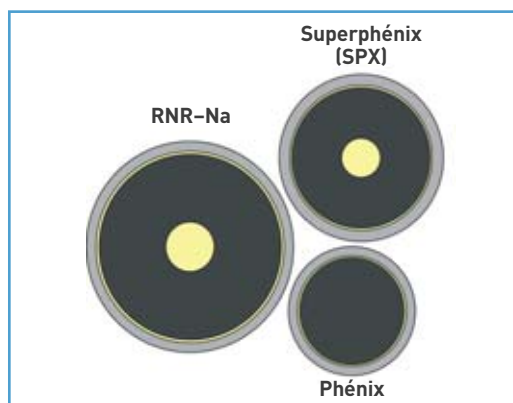


Figure 1. Vue en coupe du combustible et du gainage des réacteurs à neutrons rapides Phénix et Superphénix, et du futur RNR-Na. Apparaissent en noir le combustible, en gris le gainage métallique et en jaune l'espace laissé vide, sans combustible.

centrée – ce qui n'est pas le cas pour les nuances austénitiques à structure cubique à faces centrées –, mais aussi d'excellentes propriétés de fluage grâce aux nano-renforts présents dans la matrice.

C'est dans les années 70 que sont apparus les premiers ODS commerciaux, dont les nuances étaient des bases nickel (Ni) ou fer (Fe). Les techniques conventionnelles d'élaboration des métaux, mettant en œuvre des procédés de type fusion puis coulée de la nuance, ne permettent pas d'obtenir un matériau contenant de fins oxydes. Lorsque les oxydes sont introduits pendant la fusion du matériau, soit ils réagissent avec le creuset du four et ne sont plus présents après la coulée, soit ils coalescent dans le bain liquide et forment des oxydes trop massifs pour provoquer un effet de renfort dans le matériau. Il est donc indispensable de passer par une synthèse par voie mécanique issue de la métallurgie des poudres, couramment appelée *mécanosynthèse*.

La métallurgie des ODS

La gamme de fabrication standard des matériaux ODS se déroule en plusieurs étapes (figure 2). Les matériaux ODS sont obtenus par métallurgie des poudres et le premier stade de l'élaboration consiste à réaliser le cobroyage d'une poudre métallique avec une poudre d'oxyde d'yttrium (Y_2O_3). Il est également possible d'introduire, à ce niveau, un oxyde de fer ou un intermétallique⁽³⁾ riche en yttrium (Y), pour apporter l'yttrium et l'oxygène (O) nécessaires à la production des nano-oxydes. La poudre métallique est constituée d'une poudre pré-alliée avec la composition chimique du matériau visé, excepté l'yttrium et l'oxygène, ou de plusieurs poudres métalliques avec des compositions chimiques différentes qui vont, lors du broyage, former une poudre avec une répartition homogène de tous les éléments. Cette étape de mécanosynthèse conduit à une poudre qui peut être décrite, en première approximation, comme une



P. Stroppa / CEA

Presse à filer à chaud permettant la consolidation des matériaux, située au Laboratoire de technologie des matériaux extrêmes (DEN/LTMEX) du CEA/Saclay. Cette installation est utilisée à la fois pour la R&D sur le gainage en alliage ODS des éléments combustibles des réacteurs de quatrième génération et pour certaines des études innovantes sur le gainage des éléments combustibles des REP de deuxième et troisième générations.

matrice métallique avec l'ensemble des éléments d'alliage en solution solide. Le CEA a engagé diverses collaborations avec les industriels, et notamment avec Mecachrome au travers du laboratoire commun CEA-Mecachrome dénommé MATPERF (Matériaux Hautes Performances), de manière à ce que le tissu industriel soit en mesure de répondre aux besoins du nucléaire pour produire à grande échelle les tonnes d'ODS nécessaires à la fabrication des assemblages combustibles.

Une fois la poudre obtenue, la consolidation des matériaux ODS est effectuée, soit par filage à chaud, soit par compression isostatique à chaud. Dans certaines gammes de fabrication, un filage succède à une première consolidation par compression isostatique à chaud. Dans le cas d'une production de tubes, le passage par une opération de filage semble indispensable. Ces étapes sont suivies de transformations à froid par laminage avec des traitements thermiques éventuels de détensionnement⁽⁴⁾.

Les micrographies présentées aux figures 3 et 4 montrent les microstructures-types observées pour les alliages ODS base fer pendant leur élaboration. Il est maintenant communément admis que les mécanismes mis en jeu, lors de la formation des nano-phases dans les alliages ODS, sont une dissolution des

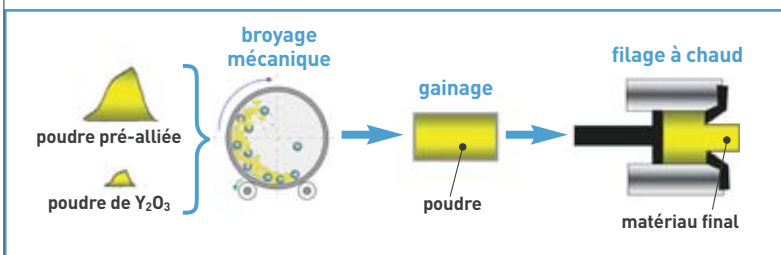
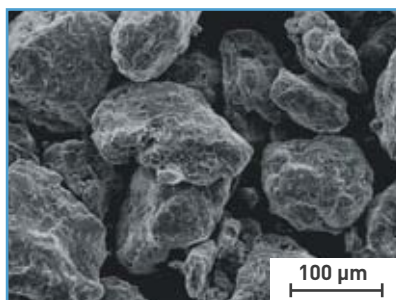
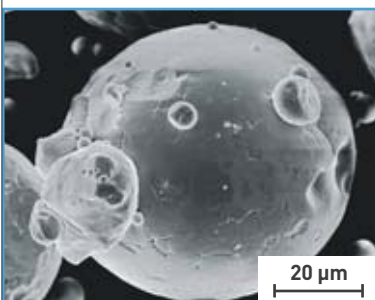


Figure 2. Les différentes étapes de fabrication d'un matériau ODS, nanorenforcé ici par Y_2O_3 .



CEA/DMN

Figure 3. Micrographies par microscopie électronique à balayage (MEB) de poudres avant (à gauche) et après (à droite) cobroyage.

(3) Intermétallique : composé métallique avec une cristallographie spécifique et formé par l'association de plusieurs métaux.

(4) Détensionnement : traitement thermique destiné à diminuer les tensions internes sans modifier sensiblement la structure.

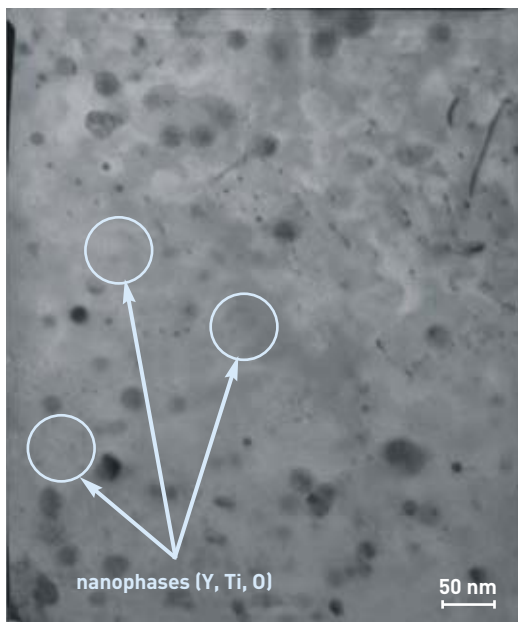


Figure 4. Micrographie par **microscopie électronique à transmission (MET)** d'un ODS ferritique avec des nanorenforts riches en **titane (Ti)**, yttrium (Y) et oxygène (O).

oxydes d'yttrium Y_2O_3 au cours du broyage et une **précipitation** de nanophases (Y, Ti, O) pendant la consolidation à chaud.

Ce procédé d'élaboration est le seul qui soit aujourd'hui industriel et qui ait permis la production massive (quelques dizaines de tonnes par an) d'ODS avec des renforts **nanométriques**. D'autres techniques sont néanmoins explorées à travers le monde. Il convient de citer, par exemple, les tentatives menées par le centre de recherche d'**OCAS d'ArcelorMittal** pour fabriquer des ODS en injectant dans des gouttelettes d'acier en fusion des oxydes nanométriques *via* une buse latérale. Une fois **dopées** en oxyde d'yttrium, les gouttelettes se solidifient pour former un lingot qui peut ensuite être transformé. De même, des méthodes par **EB-PVD (Electron Beam Physical Vapor Deposition)** sont à l'étude à l'Institut de technologie d'Harbin en Chine.

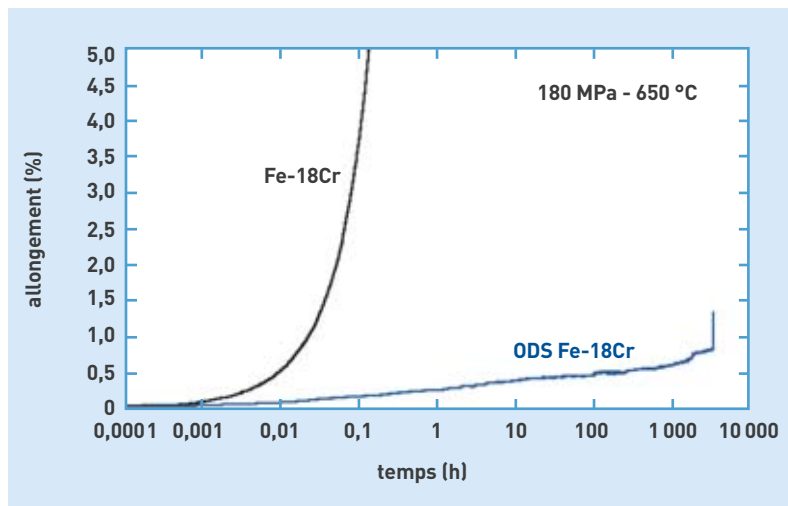


Figure 5. Courbe de fluage d'un alliage ferritique non nanorenforcé comparée à celle d'un matériau ODS Fe-18Cr (base fer avec 18 % de chrome) nanorenforcé.

Des propriétés mécaniques spécifiques

Les nuances ODS **ferritiques** ou **martensitiques** sont dotées d'une résistance au fluage thermique remarquable pour cette classe de matériaux (figure 5). Néanmoins, la présence des nanorenforts et l'élaboration par mécanosynthèse puis par filage conduisent à des microstructures et à des propriétés mécaniques très spécifiques. Par exemple, les nuances ODS ne présentent pratiquement pas de fluage tertiaire⁽⁵⁾, ce qui implique des modifications profondes dans la façon de dimensionner les tubes de gainage par rapport aux approches précédemment retenues pour les aciers austénitiques des réacteurs Phénix et Superphénix. Les matériaux ODS choisis pour le gainage sont à matrice de structure cubique centrée. Ils possèdent, comme tous les matériaux ferritiques ou martensitiques, une *température de transition*

(5) Fluage tertiaire : cette phase de fluage se produit pendant une période de temps qui précède la rupture et qui voit la vitesse de déformation augmenter avec le temps.



L'étape de laminage à froid des tubes en alliage ODS vise à mettre en forme l'ébauche filée pour obtenir des tubes fins à la géométrie choisie.

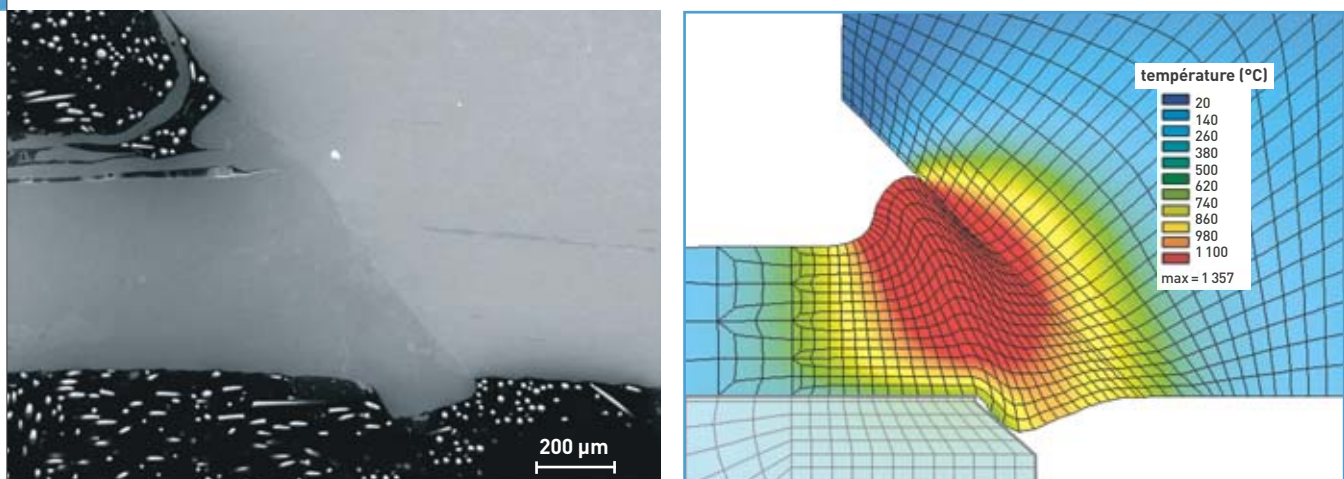


Figure 6. À gauche, image par microscopie électronique à balayage en électrons secondaires d'une soudure gaine-bouchon par soudage résistance. À droite, exemple de résultat du couplage électrothermomécanique.

ductile fragile qu'il convient d'évaluer. Pour les aciers conventionnels, et notamment les nuances martensitiques, cette température est suffisamment basse, avant et après irradiation, pour ne pas être préoccupante en condition de fonctionnement. Dans le cas des nuances ODS, suivant la gamme de fabrication retenue, la température de transition ductile fragile peut varier très notablement, et ce point est particulièrement critique pour ces matériaux. La qualification des ODS en tant que matériau de gainage nécessite d'effectuer des essais mécaniques spécifiques sur tubes. Ceux-ci sont en cours de développement au CEA.

La soudabilité des tubes en ODS

Les contraintes liées à la soudabilité bouchon-gaine sont importantes. Le bouchon est une pièce métallique pleine en acier, destinée à assurer l'étanchéité de l'aiguille combustible et à en permettre la préhension. Il convient de qualifier un procédé opératoire qui sera utilisable en boîte à gants – en raison de la manipulation du combustible – et garantira, avant et après irradiation, l'étanchéité de l'aiguille, tout en supportant les sollicitations mécaniques appliquées. Pendant l'opération de soudage, il est, par conséquent, essentiel d'altérer au minimum la microstructure initiale du métal de base ODS, en évitant une modification ou une agglomération des « dispersoïdes » nanométriques, une évolution de la microstructure (taille et forme des grains) et une ségrégation des éléments à l'interface. Les techniques de soudage en phase solide sont donc privilégiées. Elles doivent être robustes vis-à-vis d'un changement de géométrie ou de matériau (autres nuances ODS). De plus, il faut que les soudures soient facilement contrôlables par des examens non destructifs.

Différents procédés de soudage en phase solide ont été évalués sur l'acier ODS PM 2000 élaboré par le groupe Plansee : le soudage par diffusion par compression uniaxiale (SDU), le soudage par Spark Plasma Sintering (SPS), le soudage par friction malaxage (*Friction Stir Welding*) et le soudage résistance. Ce dernier a été utilisé dans les années 80 par les équipes belges de Dour Metal pour souder les

aiguilles des deux assemblages combustibles ODS irradiés dans Phénix, et récemment par JAEA pour souder des aiguilles en alliage Fe-9Cr ODS (base fer avec 9 % de chrome), actuellement en cours d'irradiation dans le réacteur à neutrons rapides BOR-60 (Dimitrovgrad, Russie). Le soudage résistance est considéré comme le procédé de référence mais le SDU pourrait être une alternative intéressante, alors que le soudage SPS semble beaucoup plus difficile à mettre en œuvre. La figure 6 présente un exemple de réalisation par soudage résistance dans une configuration gaine-bouchon.

Un déploiement progressif

La qualification d'un nouveau gainage exige de considérer l'ensemble des étapes de la fabrication et de la vie du matériau, et de s'assurer qu'aucun point n'est réhibitoire. Par exemple, le comportement du matériau sous irradiation devra être évalué, de même que le comportement du gainage après son passage en réacteur lors du lavage des assemblages et au cours du traitement du combustible. La qualification de ces nouvelles nuances ne pourra être réalisée qu'à moyen terme. Les assemblages combustibles qui seront nécessaires au démarrage et au fonctionnement des premiers cœurs du futur réacteur ASTRID (*Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration*), prototype de la quatrième génération, seront en aciers austénitiques 15-15Ti, avec notamment la nuance la plus évoluée dite AIM. Elle pourra être utilisée pour des doses qu'il reste à définir mais qui permettront de valider de nombreux concepts pour les réacteurs du futur. Le déploiement du gainage en alliages ODS à hautes performances se fera plus tard, de façon progressive, en fonction de l'état d'avancement de la qualification des assemblages. L'objectif est d'introduire, dès que possible, un assemblage avec un gainage ODS dans le prototype ASTRID, dans le premier cœur par exemple.

➤ Yann de Carlan

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