



Quel combustible pour les RNR-Na?

Le combustible d'un réacteur rapide au sodium de quatrième génération devra répondre à des spécifications nouvelles en matière de densité et de propriétés thermiques, avec des implications inédites pour le cœur, les assemblages et les aiguilles combustibles. Dans les deux ans à venir, les chercheurs auront à définir les combustibles susceptibles de répondre au cahier des charges des réacteurs de nouvelle génération appartenant à cette filière.

Cellule 1 du Lefca (Laboratoires d'études et de fabrications expérimentales de combustibles nucléaires avancés) où sont fabriqués les combustibles expérimentaux pour les futurs RNR-Na. Vue de la boîte à gants permettant des mélanges et broyages spécifiques de poudres d'actinides.



P. Dumas/CEA

Le concept de **réacteur à neutrons rapides (RNR)** nécessite une densité en matière **fissile** élevée (voir *Les futurs réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium*, p. 24). Parmi les différentes options de matériaux **combustibles** (tableau), le choix des premiers concepteurs s'est porté logiquement vers un combustible à très forte densité en **atomes lourds** :

le combustible métallique. Ainsi, les premières réalisations de RNR refroidis par un métal liquide (du **sodium** Na ou un **eutectique** sodium/potassium NaK), aux États-Unis puis en Grande-Bretagne, brûlaient un combustible de type **alliage** métallique. Il faut citer en particulier le réacteur américain EBR I (*Experimental Breeder Reactor I*), dont la première divergence a eu lieu en 1951, et qui fut, en outre, le premier **réacteur nucléaire** au monde à produire 0,2 MWe ! Cependant, ces premiers combustibles, bien loin d'être optimisés, avaient des performances extrêmement modestes (**taux de combustion massique** de quelques **GW·j/t**) à cause principalement d'un **gonflement** sous **irradiation** excessif.

Dès le milieu des années 50, sous l'impulsion de Georges Vendryes, le "père spirituel" du **surgénérateur**, le CEA a entrepris un programme de R&D basé sur des combustibles au **plutonium** (Pu) pour la réalisation d'un premier RNR français. Un travail important a été consacré à l'étude des alliages métalliques d'**uranium** (U) et de plutonium, avec ajout d'un élément tiers destiné à stabiliser la **structure cubique** de l'uranium. Les études sur le triptyque – propriétés physiques, R&D des procédés de fabrication, comportement en réacteur – ont progressé pour converger vers l'alliage ternaire uranium-plutonium-molybdène (U-Pu-Mo). Malheureusement, à l'instar de ce que les Américains avaient de leur côté observé, ces alliages combustibles,



C. Morgan/INL

Le réacteur à neutrons rapides américain EBR I (*Experimental Breeder Reactor I*), le premier au monde à produire de l'électricité, utilisait un combustible de type alliage métallique. Situé dans l'Idaho (nord-ouest des États-Unis), ce réacteur a fonctionné de 1951 à 1964. En 1953, des expériences ont démontré que le phénomène de **surgénération** était possible. Le réacteur prototype est exposé au premier plan.

matériaux combustibles	oxyde (U,Pu)O ₂ *	carbure (U,Pu)C*	nitruure (U,Pu)N*	alliage métallique U-Pu-Zr*
densité théorique en atomes lourds	9,7	12,9	13,5	14,1
température de fusion (°C)	2 730	2 305	2 720**	1 070
conductivité thermique à 1 000 °C*** (W/m·K)	2,1	12,8	13,5	17,5
coefficient de dilatation thermique moyenne 20 → 1 000 °C*** (10 ⁻⁶ /K)	12,5	12,4	10	17
pays ayant un retour d'expérience du combustible à l'échelle d'un cœur de RNR	France, États-Unis, Grande-Bretagne, Allemagne, Russie, Japon	Inde, Russie	Russie****	États-Unis, Grande-Bretagne

* Pour 20 % de Pu. ** Décomposition partielle possible dès 1 750 °C. *** À 500 °C pour l'U-Pu-Zr. **** Uniquement de l'uranium enrichi.

Tableau. Les caractéristiques de différents matériaux combustibles.

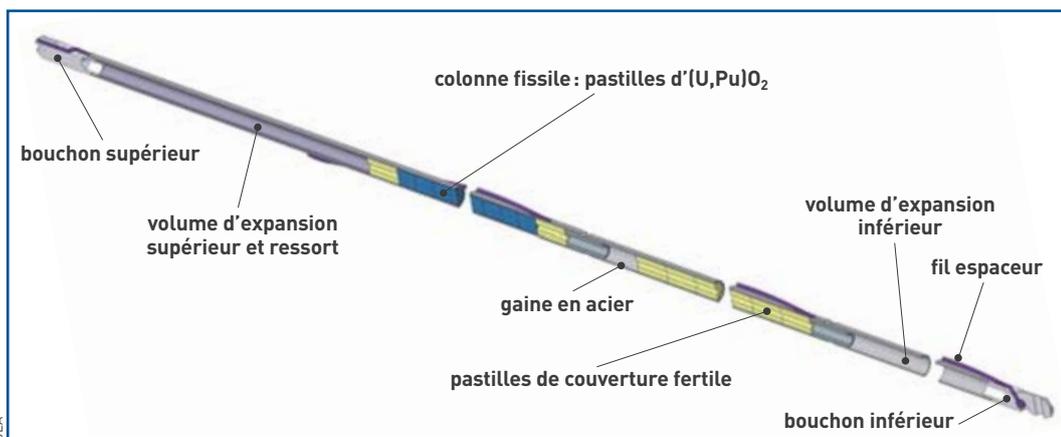


Figure 1. Éclaté d'une aiguille combustible d'un RNR-Na montrant ses principaux constituants.

testés dans les conditions de fonctionnement très sévères d'un RNR, gonflaient à cause de la croissance de bulles de gaz de fission, limitant fortement leur durée de vie en réacteur et obligeant à de fréquents retraits du combustible.

En conséquence, au début des années 60, la France, comme la plupart des autres pays impliqués dans le développement de la filière RNR de première génération, renonça au combustible métallique au profit des oxydes mixtes d'uranium et de plutonium au comportement beaucoup moins versatile⁽¹⁾. Bien que théoriquement moins performant, le combustible céramique (U,Pu)O₂ s'est rapidement révélé comme le matériau de référence de la filière, et son développement a été la pierre angulaire des programmes conduits pendant trois décennies au CEA.

Le retour d'expérience du combustible oxyde

Concernant la France, la plupart des résultats en conditions de fonctionnement nominal sur des aiguilles combustibles (figure 1) émanent des programmes expérimentaux et de surveillance réalisés dans le réacteur expérimental à neutrons rapides Rapsodie (1967-1983), implanté à Cadarache, et dans le prototype industriel

Phénix (1973-2009), installé sur le site CEA de Marcoule, délivrant une puissance de 250 MWe. De plus, de nombreux essais de comportement en situations incidentelles et accidentelles ont été menés dans un cadre international pendant plus de 25 ans dans les réacteurs expérimentaux dédiés aux études de sûreté, Cabri et Scarabée de Cadarache.

Le combustible oxyde des RNR-Na se distingue par une puissance spécifique en fonctionnement nominal très élevée (2 kW/cm³ pour Phénix⁽²⁾) qui, associée à la faible conductivité thermique de l'oxyde mixte, conduit à une température au centre des pastilles com-

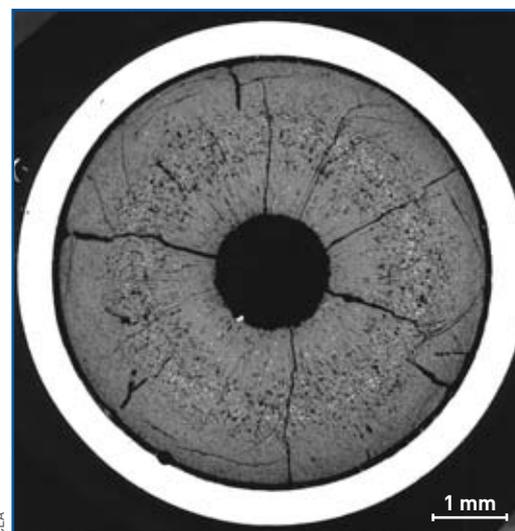


Figure 2. Coupe métallographique transversale d'une aiguille combustible Phénix montrant l'évolution importante de la microstructure du combustible oxyde mixte pendant l'irradiation (principales données d'irradiation – puissance linéique au plan de flux neutronique maximal [plan de la coupe] : 390 W/cm en début d'irradiation → 330 W/cm en fin d'irradiation, taux de combustion maximal : 13,3 %FIMA, température nominale de gaine : 650 °C, durée d'irradiation : 758 JEPP, endommagement de la gaine : 113,5 dpa). Cet examen a été réalisé au Laboratoire d'examen des combustibles actifs (Leca, CEA/Cadarache).

(1) À cette époque, la plupart des projets de réacteurs de puissance envisageaient déjà d'utiliser de l'oxyde d'uranium comme matériau combustible.

(2) La puissance spécifique maximale est de 1,3 kW/cm³ pour le réacteur de taille industrielle Superphénix. Par comparaison, elle n'est que de 0,4 kW/cm³ pour un réacteur à eau sous pression REP du parc EDF.

bustibles excédant couramment les 2000 °C. De fait, la microstructure initiale des pastilles céramiques **fritées** subit une évolution remarquable (figure 2). Il se produit une “restructuration” du combustible dans sa partie centrale, qui est provoquée par une migration vers le centre de la porosité de fabrication et par la “guérison” des fissures, avec la formation concomitante de **grains** colonnaires et d’une cavité centrale. Cette restructuration s’accompagne d’une redistribution notable de la concentration en plutonium, se traduisant par une augmentation significative en zone centrale (figure 3).

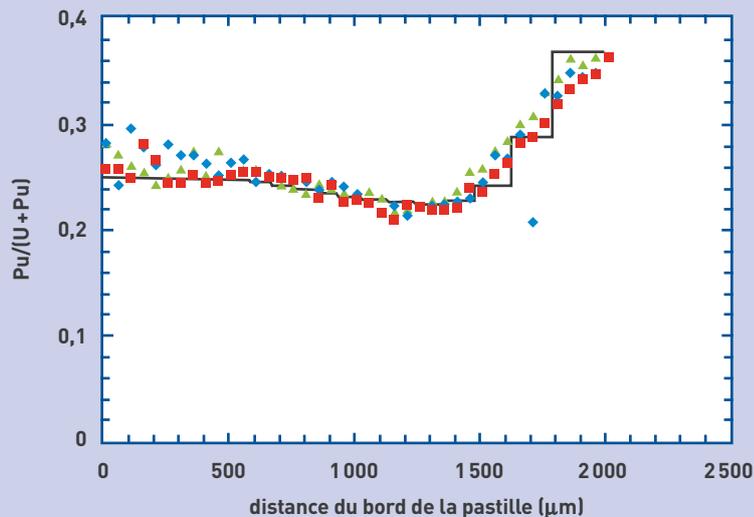


Figure 3. Mesure par **microsonde de Castaing** de la redistribution radiale du plutonium d’une aiguille ayant subi une restructuration [principales données d’irradiation – puissance linéique au plan de la coupe: 370 W/cm en début d’irradiation → 270 W/cm en fin d’irradiation, taux de combustion maximal: 15,8 %FIMA, température nominale de gaine: 630 °C, durée d’irradiation: 983 JEPP, endommagement de la gaine: 117,5 dpa]. Cet examen a été réalisé au Laboratoire d’examen des combustibles actifs (Leca, CEA/Cadarache).

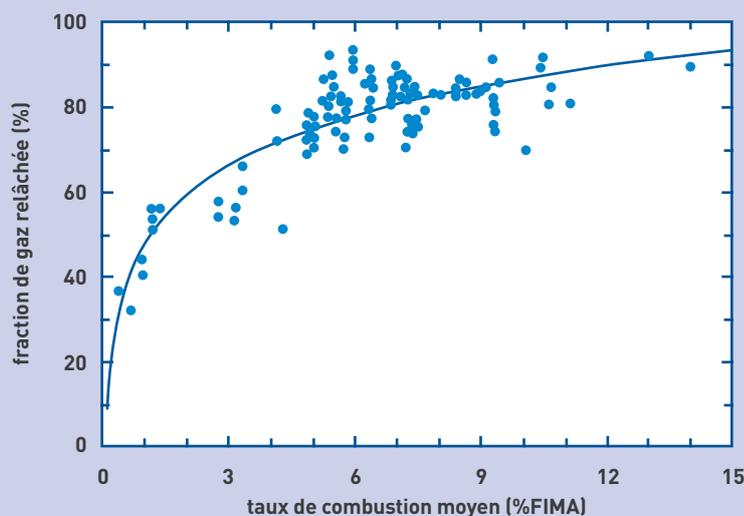


Figure 4. Évolution du taux de relâchement des produits de fission gazeux (volume relâché dans les volumes libres de l’aiguille/volume produit par fission) en fonction du taux de combustion moyen (avec prise en compte du facteur axial de flux neutronique) pour des aiguilles irradiées dans Phénix. La dispersion des valeurs autour de 6 %FIMA provient de la présence ou de l’absence d’une déformation diamétrale de la gaine par gonflement. Une déformation de la gaine a pour effet de ré-ouvrir le jeu entre le combustible et la gaine et, par conséquent, d’exacerber la thermique de l’oxyde et donc le relâchement des produits de fission gazeux.

Une majorité des **produits de fission** gazeux est relâchée dans le volume libre de l’aiguille combustible. Le taux de relâchement peut atteindre 90 % de la production (figure 4). Seule la zone externe des pastilles en retient une partie. À l’opposé du combustible des **réacteurs à eau sous pression (REP)**, ceci ne constitue pas un problème en soi, car cet état de fait est pris en compte dès le dimensionnement de l’aiguille. À de plus forts taux de combustion (> 8 %FIMA), les produits de fission volatils (césium Cs, iode I, tellure Te) ou métalliques (molybdène Mo) sont partiellement relâchés hors du combustible et finissent par constituer un joint oxyde-gaine entre la périphérie de la pastille et l’intérieur de la gaine en acier inoxydable.

Conjointement, à partir d’un taux de combustion de l’ordre de 5 à 6 %FIMA, une corrosion interne de la gaine, dont la profondeur peut être importante, se produit dans le tiers supérieur de la colonne fissile (figure 5). Les conditions d’apparition de cette corrosion sont connues. Il s’agit de l’accumulation en certains points de la gaine de tellure métallique, produit de fission volatil, par suite de la décomposition du tellurure de césium, en raison de l’augmentation du potentiel d’oxygène⁽³⁾ du combustible. Ce phénomène de corrosion interne est considéré comme l’un des facteurs limitants pour l’atteinte de taux de combustion élevés. Des remèdes tels que l’utilisation de getters⁽⁴⁾ dans l’oxyde ou le recours à un revêtement protecteur de la paroi interne de la gaine peuvent différer la corrosion.

L’autre inconvénient majeur de l’oxyde réside en sa non-compatibilité chimique avec le sodium. Néanmoins, de nombreuses études hors réacteur ainsi que le retour d’expérience de ruptures naturelles dans les

(3) Potentiel d’oxygène: pression d’oxygène, à température donnée, en équilibre avec un composé oxyde solide ou liquide et représentant son pouvoir oxydant, c’est-à-dire sa capacité de faire perdre des **électrons** à un **atome** ou à un **ion**.

(4) Getters: “pièges” à oxygène auxquels il est possible d’avoir recours afin de limiter l’augmentation du potentiel d’oxygène du combustible irradié. Constitués de métaux ou de céramiques réfractaires très réducteurs, ces tampons à oxygène prennent la forme de disques frittés et sont en général placés en extrémité haute de la colonne fissile, là où le risque de corrosion de la gaine est le plus élevé.

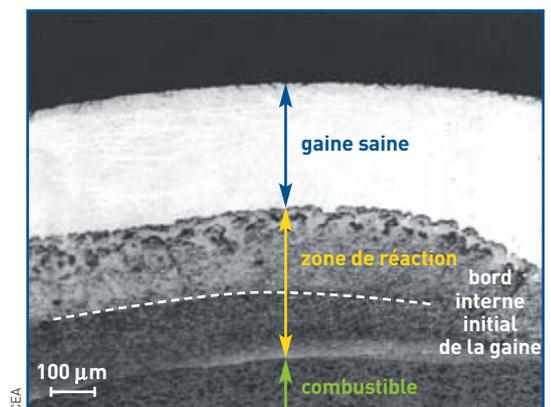
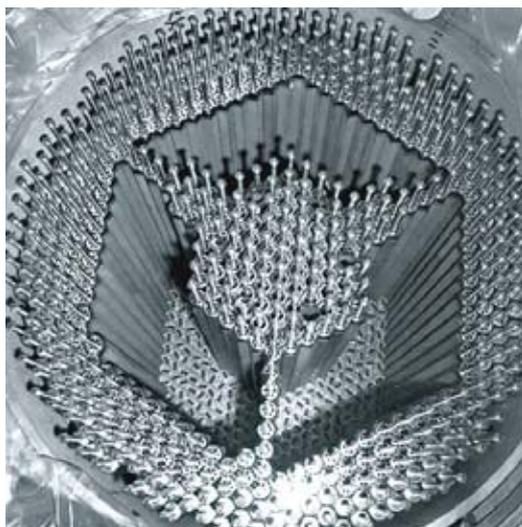


Figure 5. Micrographie optique montrant une corrosion interne de la gaine d’une aiguille Phénix très irradiée. La profondeur de corrosion est dans ce cas très importante (~ 200 µm, soit 40 % de l’épaisseur initiale de la gaine) et affecte la quasi-totalité de la paroi interne à ce niveau (principales données d’irradiation - taux de combustion maximal: 16,3 %FIMA, température nominale de gaine: 640 °C, durée d’irradiation: 1122 JEPP, endommagement de la gaine: 152 dpa). Cet examen a été réalisé au Laboratoire d’examen des combustibles actifs (Leca, CEA/Cadarache).



Arrangement des assemblages combustibles du cœur du réacteur Rapsodie. Implanté à Cadarache, ce réacteur expérimental de la filière des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium a fonctionné de 1967 à 1983. De nombreux programmes expérimentaux ont été réalisés dans ce réacteur pour développer la filière.

réacteurs Rapsodie et Phénix ont permis de cerner les conditions thermiques, physico-chimiques et mécaniques d'évolution du défaut initial en rupture de gaine ouverte, et ainsi de proposer à l'exploitant une gestion adéquate des assemblages défaillants.

Le retour d'expérience des combustibles carbure, nitrure et métallique

Si l'oxyde mixte a prouvé son comportement satisfaisant jusqu'à des taux de combustion très élevés (15 à 20 %FIMA) ainsi que pour les différentes étapes du cycle (fabrication, entreposage et retraitement), il ne présente pas que des avantages. Ses principaux inconvénients, qui sont une faible densité en atomes lourds et une mauvaise compatibilité avec le sodium, ont conduit les divers organismes de R&D, et le CEA en particu-

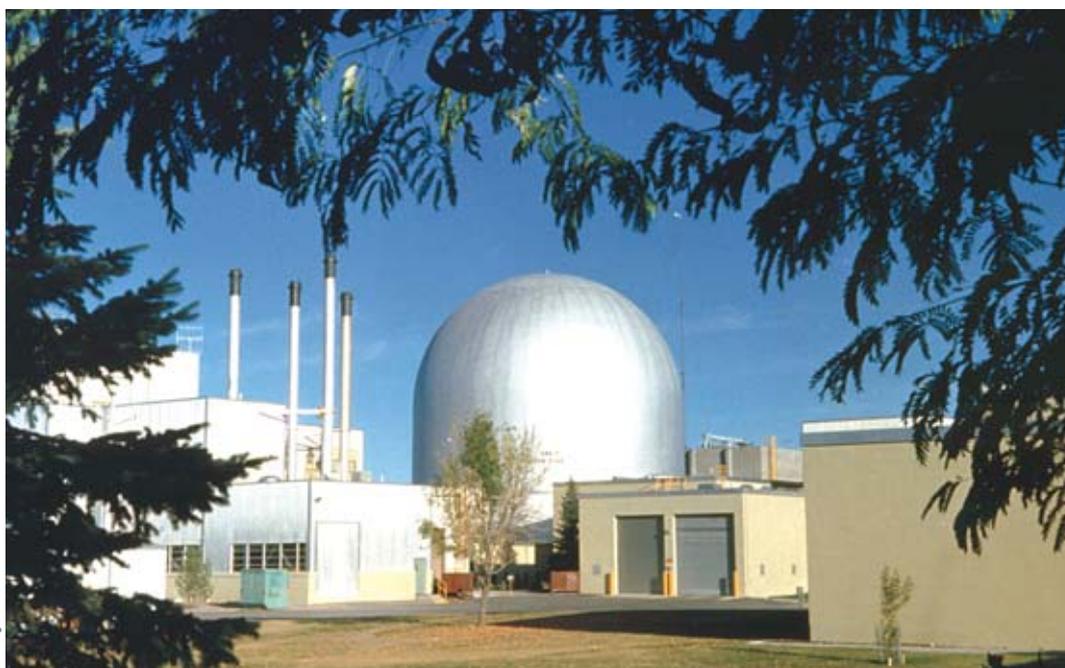
lier, à s'intéresser à des combustibles potentiellement plus intéressants que l'oxyde : les céramiques **carbure** et **nitrure**, et les **alliages métalliques** (tableau).

Ces trois matériaux combustibles offrent les avantages d'une densité plus forte, permettant un **gain de régénération interne** plus élevé (allongement de cycle et production accrue de Pu), et d'une compatibilité totale avec le sodium, évitant ainsi des arrêts inopportuns du réacteur pour décharger un assemblage à rupture de gaine.

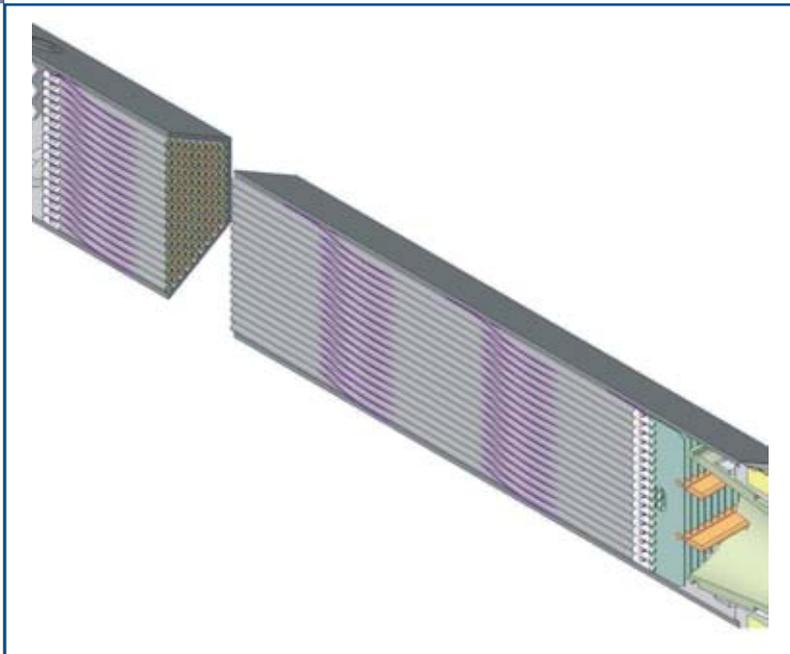
Les combustibles céramiques carbure et nitrure présentent aussi l'intérêt d'une conductivité thermique meilleure que celle de l'oxyde, autorisant des températures de fonctionnement plus basses et une marge par rapport à la fusion fortement accrue. Cependant, ces combustibles dits "froids" manifestent un gonflement 2 à 3 fois supérieur à celui de l'oxyde. En outre, le relâchement des produits de fission gazeux, quoique restant inférieur à celui de l'oxyde, peut tout de même devenir significatif (> 50 %) pour des taux de combustion importants (10 %FIMA). La vitesse élevée de gonflement, associée à une viscoplasticité⁽⁵⁾ moindre de ces combustibles (facteur 10 par rapport à l'oxyde), engendre une interaction mécanique forte entre le combustible et la gaine, une fois le jeu de fabrication rattrapé. L'expérience acquise indique qu'il est impératif de réduire à la fabrication leur densité de remplissage⁽⁶⁾ (qui doit être inférieure à 75 % de la densité théorique) pour espérer viser, sans trop de risque de rupture de gaine, les mêmes taux de combustion que l'oxyde. De plus, comparativement à l'expérience accumulée sur l'oxyde, le carbure, et plus encore le nitrure, laissent aujourd'hui beaucoup de questions

(5) Viscoplasticité : réaction à la **contrainte** du combustible se comportant comme s'il était composé d'un solide plastique et d'un fluide visqueux qui ne s'écoule qu'à partir d'un seuil, l'écoulement dépendant de paramètres comme la température, la densité de fission, la charge ou le gradient d'application de la charge.

(6) La densité de remplissage d'une aiguille combustible est égale au rapport de la section de la pastille combustible sur la section interne de la gaine que multiplie la densité du combustible, exprimée en % de sa densité théorique.



Le réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium EBR II (*Experimental Breeder Reactor II*) a succédé à EBR I en 1964. De nombreux combustibles autres que l'oxyde (carbures et alliages métalliques) et matériaux de structures (gaines et tubes hexagonaux) y ont été testés.



CEA

Figure 6. Éclaté de la partie centrale d'un assemblage combustible standard Phénix montrant le "faisceau" des 217 aiguilles, chacune étant équipée de son fil espaceur.

sans réponses sur leur réel potentiel comme combustible pour le **RNR-Na** du futur (voir l'encadré *Les six concepts sélectionnés par le Forum GEN IV*, p.6).

Concernant le combustible métallique, après les tentatives initiales décevantes évoquées précédemment, les Américains de l'*Argonne National Laboratory (ANL)* ont poursuivi une R&D significative jusqu'au début des années 90. De nombreuses études d'alliages combustibles stabilisés, réalisées grâce au réacteur expérimental EBR II, leur ont permis d'obtenir *in fine*, avec des alliages de type U-Pu-10Zr (10 % de zirconium), des performances comparables à celles du combustible oxyde en terme de taux de combustion. De plus, cette expérimentation sur le combustible métallique n'est pas restée marginale. Elle repose sur une base conséquente d'environ 150 000 aiguilles irradiées dans EBR II. Bien entendu, ce combustible présente aussi quelques inconvénients, dont les principaux sont le

risque de réaction chimique avec la gaine (formation potentielle d'un eutectique), qui pénalise la température maximale admissible pour le **caloporteur** en fonctionnement nominal (de l'ordre de -40 °C par rapport aux combustibles céramiques), et un cycle par procédé électrochimique jugé par les Américains non **proliférant** et intégré sur site, mais dont la démonstration à l'échelle industrielle (**recyclage** du Pu et des **actinides mineurs**, gestion des déchets) reste à faire...

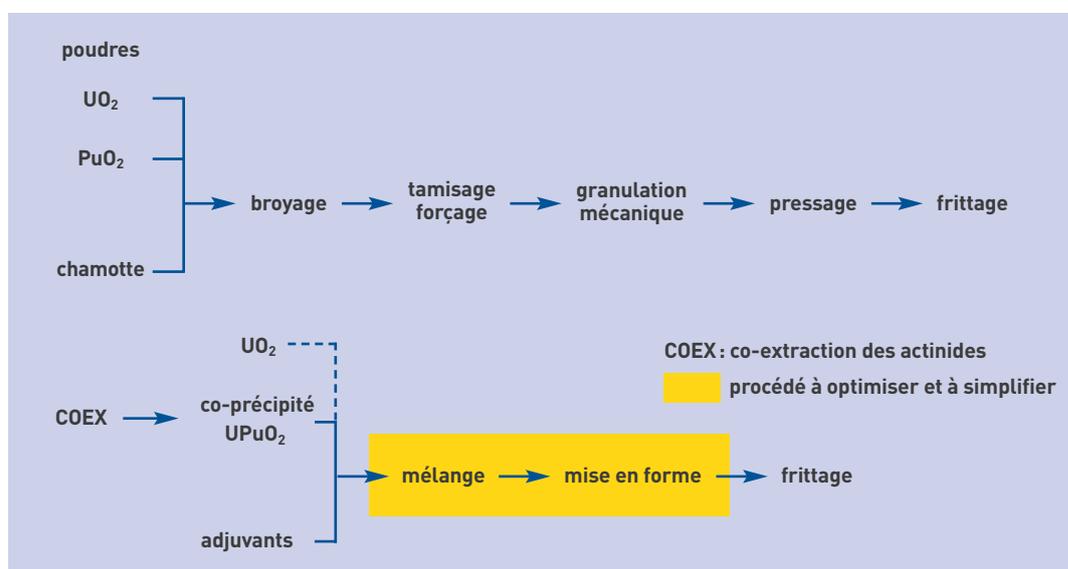
Définir le combustible

Le respect du cahier des charges du RNR-Na de quatrième génération aura de fortes implications sur la conception du cœur, des assemblages et des éléments combustibles. Les diverses voies d'amélioration du cœur étant loin d'être complémentaires, il s'agit de trouver, parmi de possibles solutions, le meilleur compromis (voir *Les futurs réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium*, p.24).

L'économie des ressources et la non-prolifération des matières nucléaires passent par une conversion de l'uranium en plutonium au sein même du combustible. Cela ne peut se faire qu'avec une proportion d'uranium 238 **fertile** suffisante pour compenser la fission du plutonium initialement introduit⁽⁷⁾. De fait, ce type de cœur à gain de régénération interne légèrement positif sera forcément moins performant que les cœurs des RNR-Na de première génération, mais cette baisse de puissance spécifique est absolument indispensable pour être en adéquation avec la volonté de réduire le **coefficient de vide sodium** par une augmentation du rapport entre le volume du combustible et celui du sodium.

Pour limiter la **perte de charge** d'un tel cœur, les concepteurs s'orientent vers un cœur comportant des assemblages combustibles "à faisceau" comprenant moins d'aiguilles mais de plus grand diamètre que celles utilisées dans des assemblages de type Phénix. Chacune d'elles est équipée d'un fil espaceur de faible diamètre (figure 6). Bien entendu, le comportement thermomécanique en irradiation d'un tel assemblage devra être **modélisé** pour évaluer son aptitude à répondre au critère de durée de vie. De plus, il faudra s'assurer de son comportement en situations hors nominal et

Figure 7. En haut, les étapes du procédé COCA de fabrication classique des pastilles d'oxyde mixte pour les RNR-Na. En bas, une alternative innovante mettant en œuvre une poudre d'(U,Pu)O₂ obtenue par co-précipitation. La mise au point de ce procédé, qui pourrait faciliter l'utilisation de combustibles contenant des actinides mineurs, est en cours au Département d'études des combustibles (CEA/DEN/DEC).

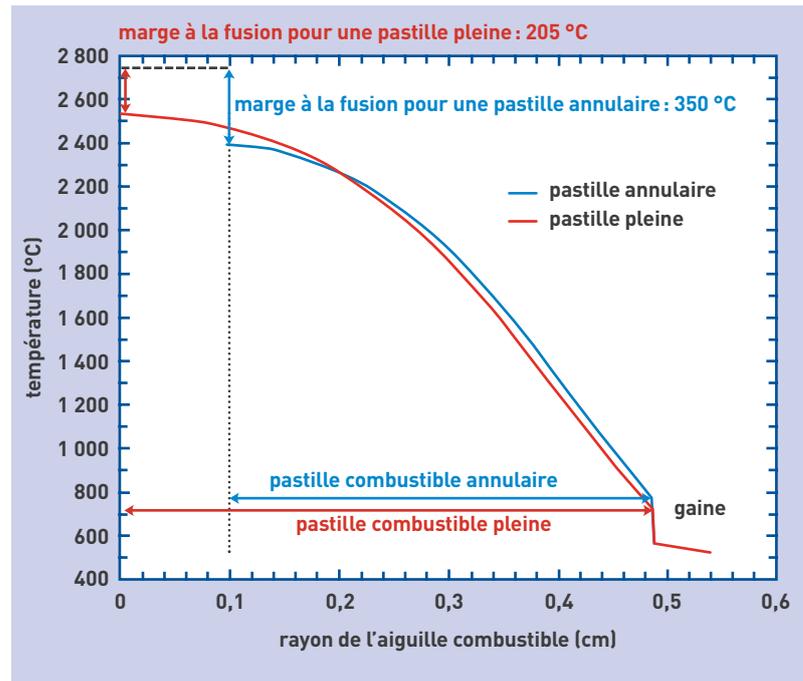


en particulier vis-à-vis du risque de bouchage des canaux de refroidissement en cas de déformations excessives des aiguilles et de leurs fils.

Concernant le combustible lui-même, l'option de matériau retenue préférentiellement reste l'oxyde, du moins pour les premiers cœurs. Le retour d'expérience a démontré que l'oxyde, et à un moindre degré le métal, sont les seuls matériaux combustibles permettant de pouvoir garantir aujourd'hui de forts taux de combustion.

L'incorporation dans le combustible d'actinides mineurs en dilution dans tous les assemblages (**transmutation par voie homogène**) nécessite de repenser le procédé de fabrication de ce combustible. Le procédé COCA⁽⁸⁾ de co-broyage de poudres de dioxyde d'uranium UO₂ et de dioxyde de plutonium PuO₂, utilisé antérieurement pour la fabrication des combustibles de la filière RNR-Na, pourrait être remplacé par un procédé innovant faisant appel à des poudres issues de la **coprécipitation** d'un mélange d'uranium-plutonium-actinides mineurs provenant des **combustibles usés** (figure 7). Ce procédé permettrait de limiter la manipulation des poudres contenant les actinides mineurs et de diminuer la contamination de l'atelier de fabrication. Ces études n'en sont aujourd'hui qu'à leur phase de R&D. Un programme d'irradiation sera sans doute nécessaire pour valider les options les plus prometteuses. Malgré tout, du fait du fonctionnement à très haute température du combustible oxyde d'un RNR-Na, ce qui aura pour effet de masquer rapidement des différences initiales de microstructures, les chercheurs s'attendent, *a priori*, à peu d'impact sur le comportement en irradiation de ce nouveau combustible par rapport au retour d'expérience du procédé COCA.

L'utilisation d'aiguilles de gros diamètre pour accroître la fraction volumique de combustible dans le cœur et réduire la perte de charge – les concepteurs visent aujourd'hui un diamètre de pastille combustible de l'ordre de 10 mm⁽⁹⁾ – se fera de préférence avec un combustible de géométrie annulaire, afin de respecter une marge suffisante par rapport à la fusion du combustible, en particulier en début de vie quand le jeu entre la pastille et la gaine est encore largement ouvert (figure 8). L'emploi de ce type de pastille combustible dans des irradiations expérimentales Phénix n'avait pas fait apparaître de comportement significativement différent de celui du combustible standard initialement plein⁽¹⁰⁾ (figure 9). Malgré tout, il sera indispensable de vérifier le comportement sur le long terme d'un tel élément combustible. À titre d'exemple, la conjugaison d'une thermique élevée du combustible et d'un volume de combustible plus important que celui d'une



aiguille de type Phénix peut laisser pressentir un risque potentiel de corrosion interne renforcé à fort taux de combustion pour l'aiguille de gros diamètre.

Le cahier des charges du cœur d'un RNR-Na de quatrième génération engendre donc un certain nombre de répercussions sur la définition du "combustible" au sens large du terme. Des recommandations pour le cœur, les assemblages et les aiguilles combustibles, ainsi que le type de combustible et son procédé de fabrication sont attendues à l'échéance 2009. Les interactions mécanique et chimique avec les matériaux de structure, gaine et tube hexagonal, n'ont été que très peu évoquées. Les matériaux susceptibles de répondre au cahier des charges du cœur du futur RNR-Na sont présentés au chapitre III.

> Michel Pelletier

Direction de l'énergie nucléaire
CEA Centre de Cadarache

Figure 8. Résultat d'un calcul réalisé avec le logiciel **Germinal 1.4**, qui modélise le comportement en irradiation de l'aiguille combustible oxyde mixte d'un RNR-Na. Pour une aiguille de gros diamètre (diamètre de la pastille = 9,5 mm), comparaison des profils radiaux de température entre des combustibles à pastille pleine et à pastille annulaire pour des conditions de fonctionnement similaires. Un gain significatif peut être obtenu en début de vie sur la marge à la fusion du combustible pour le concept annulaire par rapport à la pastille pleine.

(7) L'enrichissement moyen du cœur, envisagé aujourd'hui, se situe autour de 15 % en Pu. Les **captures neutroniques** sur le ²³⁸U produisent, à l'issue de **décroissances β** successives, du ²³⁹Pu.

(8) Procédé COCA: procédé de fabrication de combustible **MOX**, mis au point par COGema (aujourd'hui **Areva NC**) à Cadarache, dans lequel la totalité des poudres d'UO₂ et de PuO₂ sont broyées, ce qui donne au mélange une très bonne homogénéité.

(9) Par comparaison, les diamètres des pastilles combustibles sont respectivement de 5,42 mm pour le réacteur Phénix, 6,94 mm pour l'ancien projet européen **EFR**, 7,14 mm pour le combustible Superphénix et 8,19 mm pour un crayon standard d'un REP EDF.

(10) Il faut rappeler que des pastilles combustibles initialement pleines se restructurent sous l'effet de la forte thermique de l'oxyde et de ce fait deviennent, plus ou moins rapidement et sur une partie de la colonne fissile, des pastilles annulaires!

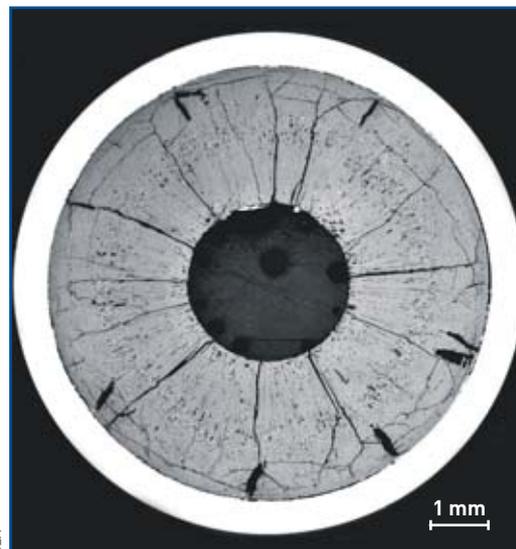


Figure 9. Coupe métallographique transversale d'une aiguille à combustible annulaire de géométrie Superphénix irradiée dans Phénix montrant que l'évolution de la microstructure du combustible est similaire à un combustible initialement plein (principales données d'irradiation – puissance linéique au niveau de la coupe: 555 W/cm en début d'irradiation → 585 W/cm en fin d'irradiation, taux de combustion maximal: 9 %FIMA, température nominale de gaine: 620 °C, durée d'irradiation: 487 JEPP, endommagement de la gaine: 73,5 dpa). Cet examen a été réalisé au Laboratoire d'examen des combustibles actifs (Leca, CEA/Cadarache).

Les éléments d'un système nucléaire

Un **système nucléaire** est formé par un **réacteur nucléaire** et le **cycle du combustible** associé. Il est optimisé globalement dans sa mise en œuvre industrielle, de la matière première au déchet. Dans un tel système dont il est le pivot, le réacteur est rendu apte à **recycler** le combustible afin de valoriser les matières **fissiles** (**uranium**, **plutonium**), voire **fertiles** (**uranium**, **thorium**) et à minimiser, par **transmutation**, la production de déchets à **vie longue** en **incinérant** en grande partie ses propres déchets, en l'occurrence les **actinides mineurs (AM)**. Certains systèmes peuvent aussi inclure des unités de **traitement** en ligne.

Le réacteur proprement dit, quelle que soit la **filière** à laquelle il appartient (Mémo B, *Filières, générations et spec-*

tissent les neutrons par *diffusions élastiques*. Il doit être peu **capturant** afin de ne pas les "gaspiller" et suffisamment dense pour assurer un ralentissement efficace. Les réacteurs à **spectre thermique** (Mémo B) en ont besoin, contrairement aux réacteurs à **spectre rapide** (qui doivent en revanche compenser la faible probabilité de fissions induites par les **neutrons rapides** par une forte augmentation du nombre des dits neutrons, afin de ralentir les neutrons après la fission dont ils sont issus). Ils sont ainsi amenés à la vitesse optimale pour assurer à leur tour de nouvelles fissions. Un exemple de modérateur est le graphite, utilisé dès la première "pile" atomique, en 1942 en association avec un fluide **caloporteur** gazeux.

Le fluide caloporteur évacue du cœur l'énergie thermique dégagée par les fissions et transporte les calories vers les systèmes qui mettront cette énergie sous une forme utilisable, en général l'électricité. Le caloporteur est soit l'eau⁽¹⁾ dans les "réacteurs à eau" (celle-ci y joue également le rôle de modérateur), soit un métal liquide (sodium ou plomb), soit un gaz (historiquement le gaz carbonique, puis l'hélium, dans les **réacteurs à caloporteur gaz (RCG)** ou encore des **sels fondus**). Dans ce dernier cas, combustible et caloporteur forment un fluide unique, qui offre la possibilité de pouvoir **retirer** en continu les matières nucléaires puisque les actinides y seraient dissous.

Le choix d'une filière à des répercussions majeures sur le choix des matériaux (Mémo E, *Les grandes familles de matériaux nucléaires*, p. 76). Ainsi, le cœur des réacteurs à neutrons rapides ne doit pas comporter d'éléments modérateurs des neutrons (eau, graphite) et leur caloporteur doit être transparent à ces mêmes neutrons.

Des dispositifs de contrôle (d'une part des **barres de commande**, **barres de contrôle** ou **barres de pilotage** et d'arrêt constituée de matériaux absorbeurs de neutrons [bore, cadmium...], et d'autre part des "**poisons**" **neutroniques**) permet-

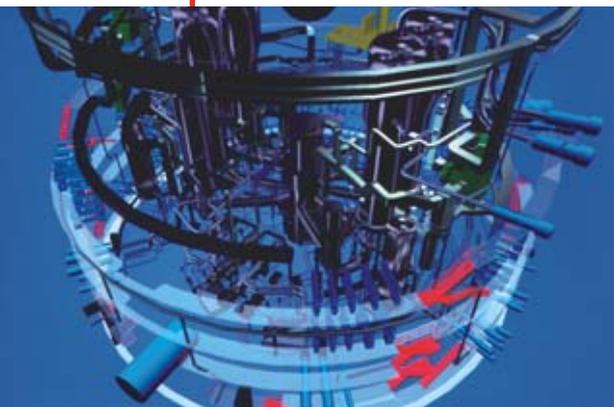
tent de réguler la population des neutrons et, par là même, en influant sur sa **réactivité**, de maintenir la puissance du réacteur au niveau désiré, voire d'arrêter la réaction en chaîne. Les barres, ensemble de tiges solidaires mobiles (appelées **grappes**) sont introduites plus ou moins profondément dans le cœur. Les poisons sont, pour leur part, ajustables en concentration dans le circuit de refroidissement.

Un **circuit primaire** fermé et étanche contient le cœur et véhicule (au moyen de **circulateurs**, pompes ou compresseurs) le caloporteur qui transfère sa chaleur à un **circuit secondaire** via un **échangeur de chaleur** qui peut être un **générateur de vapeur** (c'est le cas aussi bien dans un réacteur à eau sous pression que dans le circuit secondaire d'un **réacteur à neutrons rapides** comme Phénix). La **cuve**, récipient contenant le cœur d'un réacteur baigné par son fluide caloporteur, constitue, lorsqu'elle existe, la partie centrale de ce circuit primaire.

Le circuit secondaire sort de "l'îlot nucléaire" pour faire fonctionner via une turbine un turboalternateur ou alimenter un réseau de chaleur. Dans les réacteurs à **eau lourde**⁽¹⁾ et dans certains réacteurs à gaz, la chaleur est transmise du gaz à l'eau dans des échangeurs de chaleur classiques.

Un **circuit tertiaire** évacue la chaleur inutilisée via un **condenseur** vers une source froide (eau d'un fleuve ou de la mer) ou air dans une tour de refroidissement ou encore un autre dispositif thermique (par exemple pour la production d'hydrogène).

D'autres éléments n'interviennent que dans une filière donnée, comme le **pressuriseur des réacteurs à eau sous pression (REP)** où la pressurisation maintient l'eau à l'état liquide en l'empêchant de bouillir. L'ébullition est en revanche mise à profit dans les **réacteurs à eau bouillante (REB)**, l'autre filière de **réacteurs à eau légère (REL)**, où l'eau du circuit primaire entre en ébullition et entraîne directement la turbine.



Areva NP

Image virtuelle en 3D des composants et circuits d'un réacteur de type REP.

tres neutroniques, p. 14) comprend les mêmes éléments principaux (du moins dans le domaine de la **fission**, les réacteurs à **fusion** mettant en jeu des processus nucléaires totalement différents). Le **cœur**, région où sont entretenues les **réactions en chaîne**, reçoit le **combustible** qui contient les matières fissiles énergétiques (**noyaux lourds**) ainsi que des matières fertiles qui, sous l'action des **neutrons**, se transformeront partiellement en matières fissiles. Le combustible peut prendre différentes formes (**pastilles**, boulets, particules) et les **éléments combustibles** peuvent être rassemblés en **crayons**, en **aiguilles** ou en plaques, eux-mêmes réunis en **assemblages**, ce qui est notamment le cas dans les réacteurs à eau.

Le **modérateur** joue, lorsqu'il est nécessaire, un rôle essentiel. C'est un matériau formé de **noyaux légers** qui ralenti-

(1) L'*eau lourde*, dans laquelle le **deutérium** tient la place de l'**hydrogène** de l'eau ordinaire, a été la première forme de modérateur utilisée pour les concepts de réacteurs qui imposent de très faibles absorptions des neutrons. L'*eau légère* s'est imposée pour les réacteurs opérationnels de deuxième génération. Dans l'avenir, l'*eau supercritique*, dont les propriétés thermodynamiques et de transport changent lors du passage du point critique (température de 374 °C pour une pression supérieure à 22 MPa (221 bars, soit environ 200 fois la pression atmosphérique) pourrait être mise en œuvre afin d'améliorer le **rendement de Carnot** du réacteur (Mémo C, *Cycles thermodynamiques et conversion d'énergie*, p. 23).

Filières, générations et spectres neutroniques

Les filières de réacteurs nucléaires correspondent aux nombreuses combinaisons de trois éléments fondamentaux : un **caloporteur**, un **modérateur** (lorsque nécessaire) et un **combustible**, presque toujours l'**uranium**, éventuellement mélangé à du **plutonium** (voir Mémo A, *Les éléments d'un système nucléaire*, p. 10).

De très nombreuses formules ont été expérimentées depuis les débuts de l'ère nucléaire industrielle dans les années 1950, et seulement un petit nombre d'entre elles ont été sélectionnées pour les différentes générations de réacteurs opérationnels électrogènes.

On appelle ainsi **filière** une voie possible de réalisation de réacteurs nucléaires capables de fonctionner dans des conditions de sécurité et de rentabilité satisfaisantes, définie essentiellement par la nature du combustible, l'énergie des **neutrons** impliqués dans la **réaction en chaîne**, la nature du modérateur et celle du caloporteur.

Elle mérite ce nom dans la mesure où elle est à l'origine d'une série de réacteurs présentant une continuité technologique. Se rattachent plus ou moins directement à telle ou telle filière les réacteurs de recherche et d'essais, rarement construits en série.

Ces filières sont classées en deux grandes familles, selon le **spectre neutronique** choisi : **thermique** ou **rapide** (une plage recouvrant en partie les deux domaines est possible



M. Brigauf / EDF Médiathèque

Les quatre tranches REP de la centrale EDF d'Avoine, près de Chinon, appartiennent à la deuxième génération de réacteurs nucléaires.

pour des réacteurs de recherche), suivant qu'on laisse les neutrons qui s'échappent directement lors de la **fission** conserver leur vitesse de quelque 20 000 km à la seconde ou qu'on les ralentit afin de les mettre en équilibre thermique (les **thermaliser**) avec la matière dans laquelle ils diffusent. Le spectre neutronique, distribution en énergie de la population des neutrons présents dans le **cœur** d'un réacteur, est ainsi le **spectre thermique** dans la quasi-totalité des réacteurs en service dans le monde, notamment en France, dans les 58 **REP (réacteurs à eau sous pression)** du parc **EDF**. Dans ces réacteurs fonctionnant à l'**uranium enrichi** et éventuellement au **plutonium**, la chaleur

est transférée du cœur à des **échangeurs de chaleur** par de l'eau maintenue sous une pression élevée dans le **circuit primaire**.

Avec les REB (réacteurs à eau bouillante) dans lesquels l'ébullition de l'eau se fait directement dans le cœur, les REP constituent la grande famille des **réacteurs à eau légère (REL)** dans lesquels l'eau ordinaire joue à la fois le rôle de caloporteur et de modérateur.

La mise en œuvre du **spectre rapide** est, actuellement, limitée à un petit nombre de réacteurs à vocation essentiellement expérimentale, comme Phénix en France, Monju et Joyo au Japon ou BOR-60 en Russie. Dans ces **RNR (réacteurs à neutrons rapides)** sans

modérateur, la majorité des **fissions** sont produites par des neutrons présentant des énergies du même ordre de grandeur que celle qu'ils possèdent lors de leur production par fission. Quelques réacteurs de ce type ont été réalisés avec une vocation de production industrielle (Superphénix en France, BN 600 en Russie) ou étudiés dans cette optique (principalement **EFR** au niveau européen dans les années 80-90, BN 800 en Russie, CEFR en Chine et PFBR en Inde).

Les réacteurs électrogènes sont regroupés en quatre générations. La **première génération** comprend les réacteurs, développés dans les années 50/70, qui ont permis le décollage de la production électronucléaire dans les différents pays développés, en particulier de la filière **UNGG (Uranium Naturel Graphite Gaz)** modérés au graphite et refroidis au gaz carbonique en France, de la filière **Magnox** au Royaume-Uni et, aux États-Unis, le premier réacteur terrestre⁽¹⁾ à eau sous pression (**PWR**, Pressurized Water Reactor) construit à Shippingport.

Bien que comparable par certains côtés à des réacteurs de première génération, la filière soviétique **RBMK** (celle des réacteurs de Tchernobyl) est classée dans la seconde génération du fait en particulier de sa période de mise en service. Les RBMK, modérés au graphite et refroidis à l'eau ordinaire bouillante dans des tubes de force, ont été définitivement disqualifiés par l'accident de Tchernobyl en 1986.

(1) Aux États-Unis comme en France, les premiers réacteurs à eau sous pression ont été des réacteurs destinés à la propulsion navale (sous-marins).

La **deuxième génération** est celle des réacteurs, actuellement en service, entrés en fonctionnement entre les années 70 à 90. Exclusivement à vocation électrogène, la plupart (87 % du parc mondial) sont des réacteurs à eau, à l'exception notable des **AGR** (Advanced Gas Reactor) britanniques. Leur combustible standard est formé de **pastilles frittées d'oxyde d'uranium enrichi** aux environs de 4 % en uranium 235, empilées dans des tubes étanches (**crayons**) qui, réunis en faisceaux, forment des **assemblages**. Les PWR (REP en français) dominent le marché, représentant 3 réacteurs nucléaires sur 5 dans le monde. En font partie les différents "paliers" de réacteurs REP réalisés en France pour EDF par Framatome (aujourd'hui **Areva NP**). Les réacteurs russes de la série **VVER** 1000 sont comparables aux REP occidentaux. Bien que moins nombreux que les REP, les **BWR** (Boiling Water Reactor) ou **REB** (réacteurs à eau bouillante) se trouvent notamment aux États-Unis, au Japon ou en Allemagne. Enfin les réacteurs à uranium naturel de type **Candu**, de conception canadienne, et leurs équivalents indiens se maintiennent activement. Ce sont également des réacteurs à eau sous pression, mais utilisant l'**eau lourde** (D₂O) comme modérateur et caloporteur d'où le nom **PHWR** (Pressurised Heavy Water Reactor) donné à cette filière. La **troisième génération** correspond à des installations qui commencent à être mises en chantier en vue d'une mise en service à partir de 2010 environ. Elle comprend en particulier l'**EPR** franco-allemand conçu par Areva NP (Framatome et Siemens à l'origine),

qui propose également un réacteur à eau bouillante, le SWR 1000 et qui s'est récemment rapproché du Japonais Mitsubishi Heavy Industries. Elle comporte aussi les AP1000 et AP600 de Westinghouse, société dont Toshiba a pris le contrôle, l'ESBWR et l'ABWR II de General Electric, qui s'associe à Hitachi, les ACR canadiens et l'AES 92 russe, ainsi que des projets de petits réacteurs intégrés. Les projets de **réacteurs à haute température** modulaires du type GT-MHR (projet international) ou PBMR (du Sud-Africain Eskom) appartiennent à la troisième mais peuvent préfigurer des réacteurs de **quatrième génération**.

La quatrième génération en cours d'étude, attendue vers 2040 sur un plan industriel, pourrait théoriquement faire appel à l'un ou l'autre des six concepts retenus par le **Forum international Génération IV** (voir l'encadré de *Les enjeux d'une production durable d'énergie*, p. 6). En dehors de l'utilisation électrogène, les réacteurs de cette génération pourraient être aptes à la **cogénération** d'électricité et de chaleur, voire présenter pour certains d'entre eux une vocation exclusivement calogène, en vue d'obtenir, soit une chaleur "basse température" (vers 200 °C) pour le chauffage urbain, soit une chaleur "moyenne température" (entre 500 et 800 °C) pour des applications industrielles dont le dessalement d'eau de mer n'est qu'une possibilité parmi d'autres, soit encore une chaleur "haute – voire très haute – température" (entre 1000 et 1200 °C), pour des applications spécifiques comme la production d'**hydrogène**, la gazéification de la **biomasse** ou le craquage d'**hydrocarbures**.

Cycles thermodynamiques et conversion d'énergie

Pour convertir à grande échelle de la chaleur en électricité, il faut mettre en œuvre un **cycle thermodynamique**. Le rendement η de la conversion est toujours inférieur au **rendement de Carnot** :

$$\eta = 1 - \frac{T_f}{T_c}$$

où T_c est la température de la source chaude et T_f la température de la source froide.

D'une manière générale, on distingue en matière de conversion d'énergie le **cycle direct**, dans lequel le fluide issu de la source chaude actionne directement le dispositif utilisateur (turbo-alternateur par exemple) et, par opposition, le **cycle indirect** où le circuit caloporteur est distinct de celui qui effectue la conversion proprement dite de l'énergie. Le **cycle indirect combiné** peut ajouter à ce schéma une turbine à gaz et, par l'intermédiaire d'un générateur de vapeur, une turbine à vapeur.

Tout système construit autour d'un réacteur nucléaire est une machine thermique mettant en œuvre ces principes de la thermodynamique. Comme les centrales thermiques classiques brûlant des combustibles fossiles (charbon, fioul), les centrales nucléaires utilisent la chaleur provenant d'une "chaudière", en l'occurrence délivrée par les **éléments combustibles** où se déroulent les **fissions**. Cette chaleur est transformée en énergie électrique

en faisant subir à un fluide (de l'eau dans la plupart des réacteurs actuellement en service) un **cycle thermodynamique indirect**, dit de **Rankine** (ou de **Hirn-Rankine**), qui consiste en une vaporisation de l'eau à pression constante au niveau de la source chaude, une détente de la vapeur dans une turbine, une condensation de la vapeur sortant à basse pression de la turbine, et une compression de l'eau condensée afin de ramener cette eau à la pression initiale. Dans ce schéma, le circuit d'eau qui circule dans le cœur (**circuit primaire**, voir Mémo A : **Les éléments d'un système nucléaire**) est distinct de celui qui effectue la conversion proprement dite de l'énergie. Avec une température maximale de vapeur de quelque 280 °C et une pression de 7 MPa, le rendement énergétique net (ratio de la puissance électrique produite sur la puissance thermique dégagée par le cœur du réacteur) est de l'ordre d'un tiers pour un réacteur à eau sous pression de 2^e génération. Celui-ci peut passer à 36-38 % pour un REP de 3^e génération comme l'**EPR**, en augmentant la température, car l'équation de Carnot montre bien l'intérêt de produire de la chaleur à haute température pour obtenir un rendement élevé. De fait, augmenter la température en sortie de cœur d'une centaine de degrés permet un gain en rendement de plusieurs points.

Les propriétés thermodynamiques d'un gaz caloporteur comme l'hélium permettent d'aller plus loin, et de viser une température d'au moins 850 °C en sortie de cœur. Pour en profiter pleinement, il est théoriquement préférable d'utiliser un cycle direct de conversion d'énergie, le **cycle de Joule-Brayton**, où le fluide sortant du réacteur (ou de tout autre "chaudière") est envoyé directement dans la turbine qui entraîne l'alternateur, comme c'est le cas dans les centrales électrogènes au gaz naturel et à **cycle combiné** ou encore dans un réacteur d'avion. Avec ce cycle, il est même possible de porter le rendement de production d'électricité de 51,5 % à 56 % en faisant passer T1 de 850 °C à 1 000 °C.

En effet, depuis un demi-siècle, l'utilisation du gaz naturel comme combustible a conduit au développement spectaculaire des turbines à gaz (TAG) qui peuvent fonctionner à des très hautes températures, supérieures au millier de °C. C'est ce type de conversion d'énergie qui constitue, pour les réacteurs nucléaires du futur, une alternative séduisante aux turbines à vapeur.

Les cycles thermodynamiques des TAG sont très largement utilisés, qu'il s'agisse des systèmes de propulsion ou des grandes centrales électrogènes à combustible fossile. Ces cycles, nommés **cycles de Brayton** (figure), consistent simplement à aspirer et comprimer de l'air pour l'injecter dans une chambre de combustion (1→2), brûler le mélange air-combustible dans la chambre de combustion (2→3), détendre les gaz brûlés dans une turbine (3→4). À la sortie de la turbine, les gaz brûlés sont relâchés dans l'atmosphère (c'est la source froide), ce cycle est donc qualifié d'**ouvert**. Si la source chaude est un réacteur nucléaire, il devient très difficile de fonctionner en cycle ouvert avec de l'air (ne serait-ce que parce qu'il faut respecter le principe des trois barrières de confinement entre le combustible nucléaire et l'environnement). Pour *fermer* le cycle, il suffit d'ajouter un échangeur en sortie de turbine, pour refroidir le gaz (via un échangeur vers la source froide) avant de le ré-injecter dans le compresseur. La nature du gaz n'est alors plus imposée par la combustion.

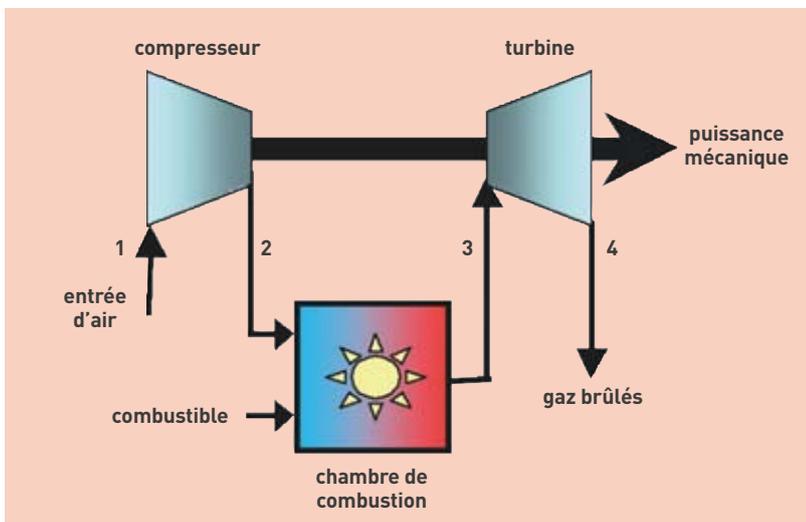


Figure. Cycle de Brayton utilisé pour une turbine à gaz à cycle ouvert.

Qu'est-ce que la modélisation multi-physique et multi-échelle ?

La modélisation **multi-physique** et **multi-échelle** est une approche de R&D relativement récente née de la nécessité de prendre en compte, dans la **modélisation** d'un système dont on cherche à prédire le comportement, tous les phénomènes, dans la pratique couplés entre eux, agissant sur (ou présents dans) ce système. C'est la forme la plus complète de modélisation d'un enchaînement de phénomènes divers et d'ordres de grandeur très différents puisqu'il en intègre toute la connaissance, théorique comme empirique, et ce à différentes échelles, dans des briques élémentaires qu'il s'agit d'assembler.

Sur le plan physique, elle prend en compte les couplages entre phénomènes élémentaires de nature différente. Dans le domaine de la physique des réacteurs, on couple par exemple la mécanique des structures, la **neutronique** et la **thermohydraulique**.

Ce type de modélisation vise aussi à donner une description des phénomènes à différentes échelles. Dans le domaine de la physique des matériaux, il s'agira par exemple de déduire les propriétés macroscopiques d'un matériau polycristallin à partir de sa description à l'échelle la plus microscopique (l'**atome**),

via des niveaux de description emboîtés (la dynamique moléculaire, la dynamique des **dislocations**). Tout le problème est de lier ces différents niveaux de description en utilisant la bonne information pour passer d'une échelle à l'autre sans discontinuité, de manipuler de façon modulaire ces lois de comportement valables à diverses échelles (figure).

C'est donc un calcul numérique composite, selon l'échelle spatiale considérée, qui fait "tourner" le modèle d'ensemble. D'autant plus composite que les chercheurs sont amenés à "enchaîner" des modèles *déterministes* et des modèles *probabilistes*, soit parce qu'ils n'ont pas la connaissance exhaustive des mécanismes élémentaires en jeu, soit parce que la résolution numérique des équations déterministes du système serait difficile ou trop lourde. D'où le recours à des méthodes comme celle de **Monte Carlo**, en particulier.

Enfin, le multi-échelle raccorde, par des techniques de superposition, des modèles numériques à des échelles différentes. Cela permet, pour conserver l'exemple des matériaux, d'effectuer des "zooms" sur des zones particulièrement sensibles aux **contraintes** comme des

fissures, des soudures ou des supports. La modélisation multi-physique et multi-échelle pose donc de façon aiguë le problème de la compatibilité et de la cohérence des **codes** de calcul qui constituent les briques élémentaires de la description. Mais les résultats sont à la hauteur de la difficulté : dans le domaine des matériaux métalliques, notamment, il est maintenant possible de mener une démarche de prévision des propriétés macroscopiques en partant des "premiers principes" de la physique atomique et de la dynamique moléculaire (voir note (1) p. 79) (méthode *ab initio*) en passant par la description physique des microstructures. Dans le nucléaire, l'étude des matériaux soumis à l'irradiation illustre bien cette approche, puisqu'il est enfin devenu possible de lancer un pont entre la connaissance des défauts à l'échelle macroscopique et la modélisation des phénomènes de création des **défauts ponctuels** à l'échelle atomique.

Si la physique constitue évidemment le premier niveau de ce type de modélisation, les deux autres sont mathématique et numérique, dans la mesure où il s'agit de raccorder entre eux des résultats de mesures ou de calculs valables à des échelles différentes, puis de mettre en œuvre les **algorithmes** élaborés. La modélisation multi-physique et multi-échelle n'est donc rendue possible que par la conjonction de deux progrès parallèles : celui de la connaissance des phénomènes élémentaires et celui de la puissance de calcul informatique.

Le CEA est l'un des rares organismes dans le monde à pouvoir développer une telle modélisation multi-physique et multi-échelle dans ses différents secteurs de recherche et de développement en concentrant un vaste ensemble d'outils de modélisation, d'expérimentation et de calcul lui permettant à la fois de démontrer la validité des théories, la pertinence des technologies et de faire progresser les études de composants, tant dans le domaine nucléaire (où s'effectuent d'ailleurs des couplages entre codes partiels CEA et EDF) que, par exemple, dans celui des nouvelles technologies de l'énergie.

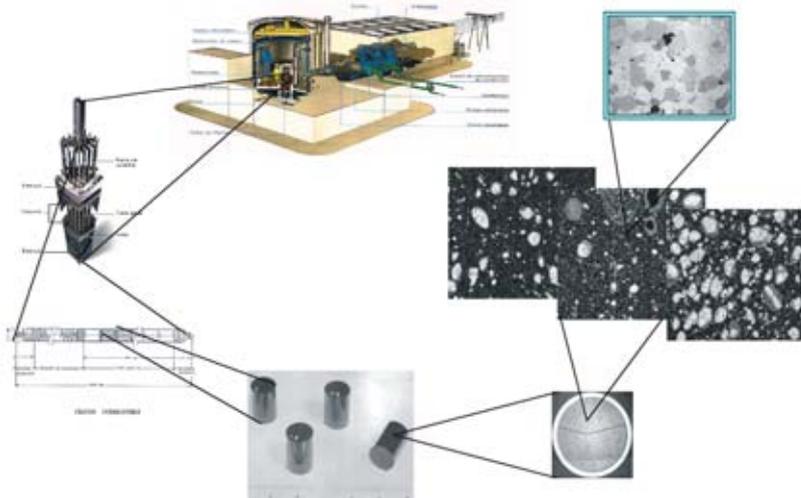


Figure. L'amélioration de la fiabilité et de la rentabilité du combustible nucléaire nécessite une modélisation fine dudit **combustible** (ici du **MOX**). Les caractéristiques microstructurales (porosité, taille et répartition des **amas**, taille de **grain**...) ont un impact direct sur le comportement du **crayon** combustible sous irradiation, et donc sur la maniabilité du réacteur ainsi que sur la durée de vie de ce crayon.

Les grandes familles de matériaux nucléaires

Les conditions spécifiques imputables aux rayonnements régnant dans les réacteurs nucléaires imposent d'avoir recours à des matériaux présentant des propriétés particulières qui peuvent être classés en deux grandes catégories : les **matériaux de gainage et de structure** d'une part, et les **matériaux combustibles** d'autre part. Pour les uns comme pour les autres, les six concepts de systèmes de quatrième génération retenus par le **Forum international GEN IV** exigent le plus souvent de privilégier des formules innovantes (tableau p.71). Les propriétés de résistance à la température, à la pression, à la fatigue, à la chaleur, à la corrosion, souvent sous contrainte, que doivent présenter d'une manière générale les matériaux impliqués dans tout *process* industriel doivent, dans le domaine nucléaire, être pour l'essentiel maintenues malgré les effets de l'irradiation, imputables en particulier au flux de **neutrons**. L'irradiation accélère ou amplifie en effet des phénomènes comme le **fluage** (**fluage d'irradiation**) ou en crée d'autres comme le **gonflement** ou la **croissance**, qui désigne une déformation **anisotrope** obtenue sous flux de neutrons en l'absence de toute autre sollicitation. Les matériaux de structure sont notamment soumis au phénomène d'**activation** par bombardement par les neutrons ou d'autres particules (**photons, électrons**). Ceux qui entrent dans la structure des combustibles (les **assemblages**, les **gainés** ou autres **plaques**) sont en outre soumis à d'autres contraintes. Enfin, le **combustible** lui-même est un matériau prenant par exemple, dans les **réacteurs à eau légère** actuels, la forme de **céramiques d'uranium** et/ou de **plutonium frittées** sous forme de pastilles.

L'**irradiation** neutronique peut provoquer une modification importante des propriétés des matériaux. Dans les métaux et leurs alliages, mais aussi dans d'autres matériaux solides comme les céramiques⁽¹⁾, ces changements sont liés à l'évolution des **défauts ponctuels** que cette irradiation produit et aux **atomes** étran-

gers produits par les réactions nucléaires et qui se substituent à l'un des atomes du réseau **cristallin**. La nature et le nombre de ces défauts dépendent à la fois du flux de neutrons et de leur énergie, mais ceux qui provoquent des évolutions structurales notables sont, dans les **réacteurs à neutrons thermiques** comme dans les **réacteurs à neutrons rapides**, les neutrons rapides.

Un cristal présente toujours des défauts, et l'irradiation peut en créer de nouveaux. Les défauts ponctuels sont de deux types : les **lacunes** (un atome est chassé de son emplacement dans le cristal), et les **interstitiels** (un atome excédentaire se place en sur-nombre entre les plans du réseau cristallin).

Les **dislocations**, qui délimitent une région où l'empilement du cristal est perturbé par un glissement localisé affectant un plan atomique, constituent pour leur part des **sources** et des **puits** pour les défauts ponctuels. Les lacunes peuvent se grouper sous forme d'**amas lacunaires**, de **boucles** ou de **cavités**, les interstitiels sous celle d'**amas d'interstitiels** ou de **boucles de dislocation**. Par ailleurs, les atomes de cuivre, de manganèse et de nickel d'un alliage d'acier de cuve, par exemple, tendent à se rassembler en **amas (clusters)** en durcissant l'acier. Enfin, les **joints de grain** sont des défauts qui délimitent deux cristaux d'orientation différente et des facteurs de fragilisation potentiels. De nombreuses propriétés du métal y sont modifiées.

Les dommages causés à ces matériaux s'expriment en **dpa** (déplacements par atome), n dpa signifiant que tous les atomes du matériau ont été déplacés n fois en moyenne pendant l'irradiation.

Les structures cristallines

Les matériaux **métalliques** ont une structure cristalline : ils sont constitués de la répétition périodique dans l'espace d'une cellule élémentaire appelée **maille** et constituée d'**atomes** dont le nombre et la position sont précisément déterminés. La répétition de ces structures leur confère des propriétés particulières. Trois de ces structures définissant la position des atomes sont importantes :

- la **structure cubique centrée** (celle à l'ambiante du fer, du chrome, du vanadium). Les matériaux présentent généralement une transition en température de comportement ductile/fragile.

- la **structure cubique à faces centrées** (nickel, aluminium, cuivre, fer haute température).

- la **structure hexagonale** (celle du zirconium ou du titane).

En fonction de la température et de la composition, le métal s'organisera en cristaux élémentaires, les **grains**, avec différentes microstructures, les **phases**. Leur arrangement a une influence importante sur les propriétés des métaux, en particulier des aciers. La **ferrite** du fer pur, à la **structure cubique centrée**, devient une **austénite**, structure **cubique à faces centrées** au-delà de 910 °C. La **martensite** est une structure particulière obtenue par une **trempe** qui la durcit suivie d'un **revenu** qui la rend moins fragile. La **bainite** est une structure intermédiaire entre la ferrite et la martensite également obtenue par trempe puis revenu. Parmi les métaux, les aciers inoxydables à forte teneur en chrome (plus de 13 %), dont la résistance à la corrosion et à l'oxydation est imputable à la formation d'une pellicule d'oxyde de chrome à leur surface, se taillent la part du lion. Si l'on considère que le critère d'inoxidabilité est la teneur en chrome qui doit être supérieure à 13 %, il existe trois catégories principales : les ferritiques, les austénitiques et les austéno-ferritiques.

Les familles d'aciers

Les **aciers ferritiques** à structure cristalline **cubique centrée** (F17 par exemple) ont une faible concentration de carbone (0,08 à 0,20 %) et une concentration élevée de chrome. Ne contenant en général pas de nickel, ce sont des alliages fer/chrome ou fer/chrome/molybdène dont la teneur en chrome varie de 10,5 à 28 % : ils ne manifestent pas un durcissement appréciable lors de la trempe et ne se durcissent que par écrouissage. Leur coefficient de dilatation est faible, ils sont très résistants à l'oxydation et adaptés aux températures élevées. Dans le nucléaire, l'**acier bainitique** 16MND5 à bas taux de carbone et faiblement allié (1,5 % de manganèse, 1 % de nickel et 0,5 % de molybdène) occupe une place centrale puisqu'il constitue le matériau de cuve des **REP** français, choisi pour ses qualités à une température de 290 °C et soumis à une **fluence** de $3 \cdot 10^{19}$ n · cm⁻² pour des neutrons d'énergie supérieure au **MeV**.

Les **aciers martensitiques**, qui présentent une structure cristalline **cubique centrée**, sont des aciers ferritiques avec moins de 13 % de chrome (9 à 12 % en général) et un maxi-

(1) Les céramiques seront employées seules ou incorporées à des composites pouvant être du type **CerCer** (céramique dans une matrice également céramique) ou **CerMet** (matériau céramique intégré dans une matrice métallique). S'agissant d'un combustible nucléaire, c'est un mélange intime de produits métalliques et de composés réfractaires, les éléments fissiles étant contenus dans une seule phase ou dans les deux.



Areva NP

Virole porte-tubulure de la cuve destinée au réacteur Flamanville 3 d'EDF, le premier EPR devant être construit sur le sol français.

mum de 0,15 % de carbone qui ont subi une *recuit* : ils deviennent martensitiques au saisissement dans l'air ou dans un liquide après un chauffage dans le domaine austénitique. Ils subissent ensuite un adoucissement par traitement thermique. Ils peuvent contenir du nickel, du molybdène ainsi que d'autres éléments d'addition. Ils sont magnétiques, très rigides et résistants mais peuvent être fragiles aux chocs, notamment à basse température. Ils sont largement utilisés dans l'industrie nucléaire (visserie, robinetterie...) du fait de leur bonne résistance à la corrosion associée à des caractéristiques mécaniques élevées.

Les **aciers austénitiques**, qui se caractérisent par une structure cristalline *cubique à faces centrées*, sont composés autour de 17 à 18 % de chrome, de 8 à 12 % de nickel (qui accroît la résistance à la corrosion : la grande majorité des aciers inoxydables est austénitique), de peu de carbone, éventuellement de molybdène, de titane ou niobium, et surtout de fer. Ils présentent une **ductilité** et une **tenacité** remarquables, un coefficient de dilatation thermique élevé et un coefficient de **conductivité thermique** plus faible que les aciers ferritiques/martensitiques. Parmi les principaux (sous la désignation américaine AISI⁽²⁾ 301 à 304, 308, 316, 316L, 316LN, 316, 316Ti, 316Cb, 318, 321, 330, 347), les 304 et 316 ont eu une importance particulière dans le nucléaire avant d'être abandonnés en raison de leur gonflement excessif sous irradiation. Des dérivés (le 304L des structures internes et des embouts d'assemblages combustibles REP ou le 316Ti des gaines, par exemple) constituent des matériaux de référence. Dans les réacteurs à neutrons rapides, ils entrent notamment (acier 316L[N]) dans la fabrication des **tubes hexagonaux** (typiques des réacteurs comme Phénix), et l'acier austénitique 15/15Ti a été optimisé pour les **aiguilles** de cette filière et a été la solution de

référence pour les gaines des réacteurs RNR à **neutrons rapides**.

Les **austéno-ferritiques** à 0, 8, 20, 32, voire 50 % de ferrite présentent une bonne résistance à la corrosion et une bonne aptitude au soudage, ce qui leur vaut d'être utilisés, moulés, pour les tuyauteries entre cuves et générateurs de vapeur.

Une classe d'alliages particulièrement importante dans le nucléaire est celle des **alliages de nickel**, qui ont une structure austénitique. L'alliage 600 (Inconel 600 d'INCO), alliage de nickel (72 %), de chrome (16 %) et de fer (8 %) de cobalt et de carbone utilisé dans les générateurs de vapeur (ainsi que le 620) et les traversées de couvercle de REP, résistant mal à la corrosion sous contrainte, a été remplacé par le 690, contenant plus de chrome (30 %). Pour certaines pièces, l'Inconel 706, l'Inconel 718 pour les grilles d'assemblages du combustible REP) et l'Inconel X750 avec ajout de titane et d'aluminium ont été choisis pour leur résistance au gonflement et leur très grande résistance mécanique. Pour les générateurs de vapeur de réacteurs à neutrons rapides comme Superphénix, l'alliage 800 (35 % de nickel, 20 % de chrome et un peu moins de 50 % de fer) a été sélectionné. Les alliages 617 (Ni-Cr-Co-Mo) et 230 (Ni-Cr-W) largement utilisés dans l'industrie chimique sont évalués pour les **RTHT** à gaz.

Les **aciers ferritiques-martensitiques** (aciers F/M) sont des aciers à structure *cubique centrée*. Ils regroupent en fait la famille des aciers martensitiques et celle des aciers ferritiques. Ils allient un coefficient de dilatation thermique faible à une forte **conductivité thermique**. Des aciers martensitiques ou ferritiques avec une teneur en chrome comprise entre 9 et 18% voient leur utilisation limitée par leur résistance au fluage plus faible que les austénitiques. Les aciers martensitiques Fe9/12Cr (contenant de 9 à 12 % en masse de chrome) peuvent cependant supporter des températures élevées et sont en cours d'optimisation pour le fluage. Par exemple, l'acier Fe9Cr1Mo au molybdène pourrait convenir pour le tube hexagonal des assemblages des **RNR-Na**. Sous la dénomination d'AFMA (Aciers Ferritiques-Martensitiques Avancés), ils sont particulièrement étudiés pour les réacteurs rapides à gaz.

Les **aciers ferritiques et martensitiques à dispersion d'oxyde** (ODS, pour *Oxide Dispersion Strengthened*) ont été développés afin d'allier la résistance au gonflement

des ferritiques avec une résistance au fluage à chaud au moins égale à celle des austénitiques. Ils constituent actuellement la solution de référence pour le gainage du combustible des futurs réacteurs au sodium.

Le **matériau de gainage** des réacteurs à eau ordinaire, qui a d'abord été de l'acier inoxydable, est maintenant un **alliage de zirconium** choisi pour sa "transparence" aux neutrons dont la structure cristalline est *hexagonale compacte* à basse température et *cubique centrée* à haute température. Les alliages zirconium-fer-chrome les plus utilisés sont les **Zircaloy** à l'étain (Zircaloy-4 dans les REP, Zircaloy-2 dans les REB et ZrNb au niobium dans les VVER) pour leur excellent comportement sous rayonnement et leur aptitude au fluage à chaud.

Après avoir abaissé la teneur en étain afin d'améliorer la tenue à la corrosion, un alliage zirconium-niobium (M5[®]) pour ce gainage est en cours de déploiement.

Parmi les matériaux nucléaires, le **graphite** mérite une mention particulière ; avec l'eau lourde, il est associé aux réacteurs qui doivent fonctionner à l'**uranium naturel**. Il est un **modérateur** intéressant car il absorbe peu les neutrons.

Pour le **RNR-G**, de nouvelles céramiques et de nouveaux alliages doivent être développés, à la frontière des hautes fluences. Les chercheurs espèrent beaucoup des matériaux réfractaires sans métal.

Dans les combustibles à particules, les oxydes d'uranium et de plutonium sont enveloppés par plusieurs couches de **pyrocarbures** et/ou de **carbure** de silicium isolant (**SiC**), éventuellement sous forme fibreuses (**SiCf**). On parle alors de particules revêtues (*Coated particles*, ou CP). Si les billes de UO₂ ou de **MOX** revêtues de SiC constituent la référence, le ZrC pourrait offrir une alternative.

Par ailleurs, les classiques pastilles **frittées** d'oxyde d'uranium (et d'oxyde de plutonium dans les MOX) pourraient laisser la place à des combustibles avancés avec ou sans additifs de chrome afin d'essayer de s'affranchir des problèmes posés par l'**interaction pastille gaine**, liée à la tendance au gonflement de la pastille de céramique combustible sous irradiation.

Les oxydes pourraient être remplacés par des **nitrides** (compatibles avec le procédé de traitement **Purex**) ou par des **carbures** sous forme, par exemple, d'alliage d'uranium plutonium avec 10 % de zirconium.

■ (2) Pour American Iron and Steel Institute.

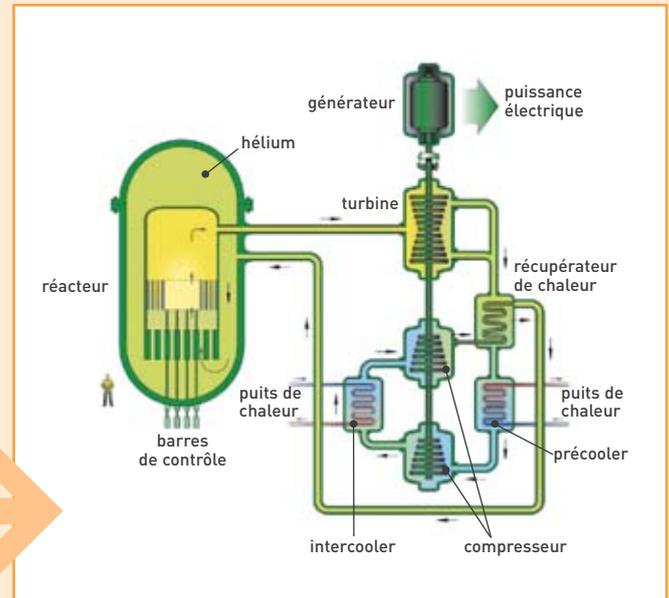
Les six concepts sélectionnés par le Forum GEN IV

Des six concepts de réacteurs sélectionnés par le **Forum international Génération IV** en fonction de leur capacité à répondre aux critères évoqués, trois, et à terme quatre, mettent en œuvre les **neutrons rapides**, les trois autres (à terme deux) les **neutrons thermiques**. Deux des six systèmes utilisent d'autre part le gaz comme **caloporteur** (ce sont donc des **RCG**, réacteurs à caloporteur gaz). Ces six concepts sont :

Le GFR

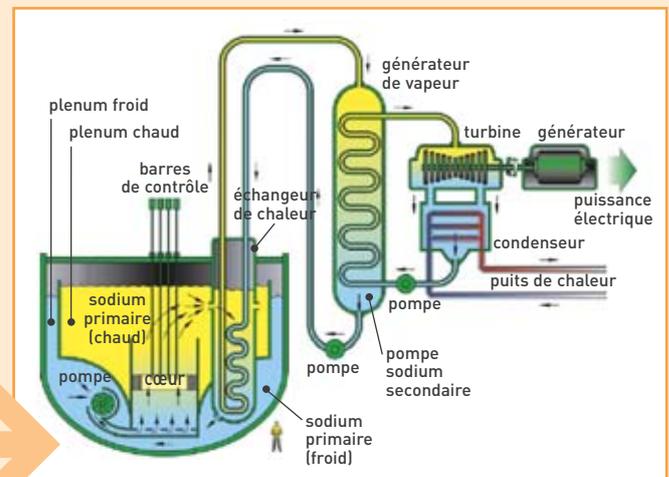
Le **GFR** (*Gas Fast Reactor*, en français **RNR-G**) est un **réacteur à haute température (RHT)** refroidi au gaz, généralement à l'hélium, à **neutrons rapides**, permettant le **recyclage homogène** ou **hétérogène** des **actinides** tout en conservant un gain de **régénération** supérieur à 1. Le concept de référence est un réacteur refroidi à l'hélium en **cycle direct** ou **indirect** avec un rendement élevé (48 %). L'évacuation de la **puissance résiduelle** en cas de dépressurisation est possible en **convection** naturelle quelques heures après l'accident. Le maintien d'une circulation forcée est nécessaire dans la première phase de l'accident. La **puissance volumique** dans le cœur est déterminée de façon à limiter la température du **combustible** à 1600 °C en **transitoire**. Le combustible, innovant, est conçu pour retenir les **produits de fission** (pour une température inférieure à la limite de 1600 °C) et éviter leur relâchement en situations accidentelles. Le recyclage du combustible usé est envisagé sur le site même du réacteur par un procédé soit **pyrochimique**, soit **hydrométallurgique**. Le GFR est un concept très performant en termes d'utilisation des ressources naturelles et de minimisation des déchets à **vie longue**. Il se situe dans la ligne technologique gaz, en complément des concepts à spectre thermique GT-MHR⁽¹⁾, PBMR⁽²⁾ et VHTR.

- (1) GT-MHR: Gas-Turbine Modular High Temperature Reactor.
 (2) PBMR: Pebble Bed Modular Reactor.



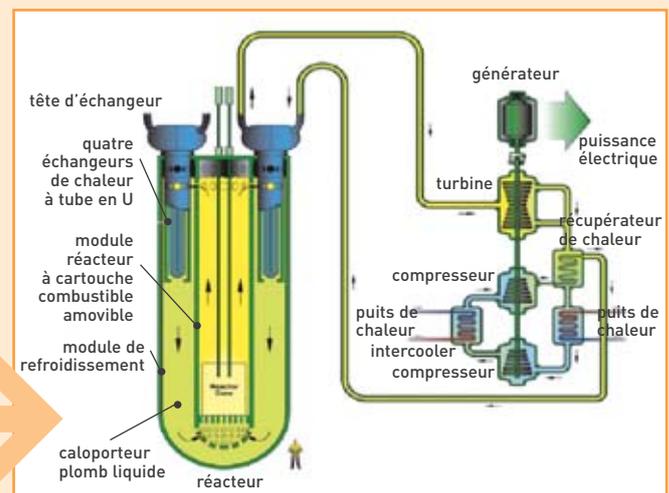
Le SFR

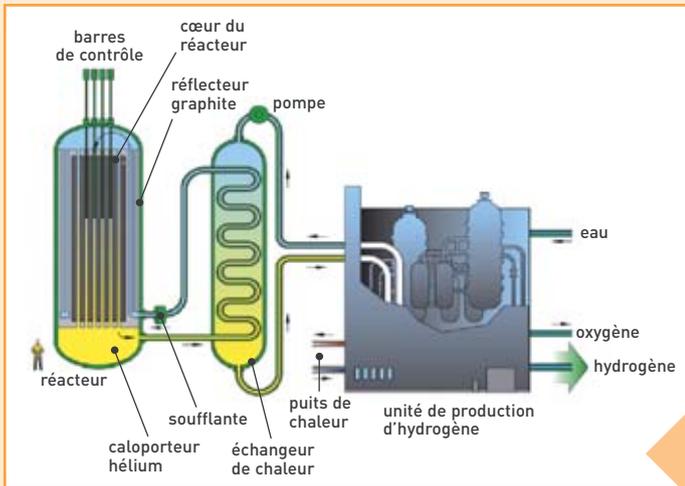
Le **SFR** (*Sodium Fast reactor*, en français **RNR-Na**) est un réacteur refroidi au **sodium** liquide, à neutrons rapides associé à un **cycle fermé** permettant le recyclage de l'ensemble des actinides et la régénération du plutonium. Du fait de la régénération de la matière fissile, ce type de réacteur peut fonctionner très longtemps sans intervention sur le **cœur**. Deux options principales sont envisagées : l'une qui, associée à un **retraitement** de combustible métallique, conduit à un réacteur de puissance unitaire intermédiaire de 150-500 MWe, l'autre, caractérisée par un retraitement **Purex** de combustible mixte d'oxydes (**MOX**), correspond à un réacteur de puissance unitaire élevée, entre 500 et 1 500 MWe. Le SFR présente de très bonnes propriétés d'utilisation des ressources naturelles et de gestion des actinides. Il a été évalué comme ayant de bonnes caractéristiques de sûreté. Plusieurs prototypes de SFR existent dans le monde, dont Joyo et Monju au Japon, BN600 en Russie et Phénix en France. Les principaux enjeux de recherche concernent le recyclage intégral des actinides (les combustibles comportant des actinides sont **radioactifs**, donc délicats à fabriquer), l'inspection en service (le sodium n'est pas transparent), la sûreté (des approches de sûreté **passive** sont à l'étude) et la réduction du coût d'investissement. Le remplacement de l'eau par du CO₂ **supercritique** comme fluide de travail dans le système de conversion est également à l'étude.



Le LFR

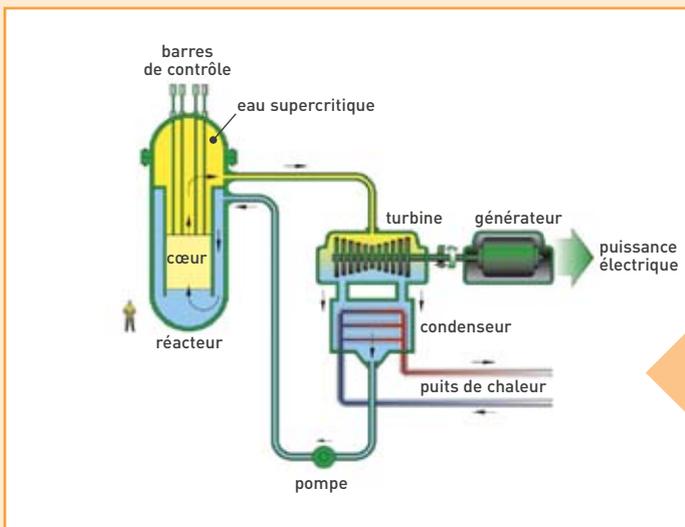
Le **LFR** (*Lead Fast Reactor*, en français **RNR-Pb**) est un réacteur refroidi au plomb (ou alliage au plomb-plomb-bismuth), à neutrons rapides associé à un cycle fermé du combustible permettant une utilisation optimale de l'**uranium**. Plusieurs systèmes de référence ont été sélectionnés. Les puissances unitaires vont de 50-100 MWe, pour les concepts dits *battery* jusqu'à 1 200 MWe, incluant les concepts modulaires de 300-400 MWe. Ces concepts ont une gestion du combustible à longue durée (10 à 30 ans). Les combustibles peuvent être soit métalliques, soit de type **nitruure** et permettent le recyclage de l'ensemble des actinides.





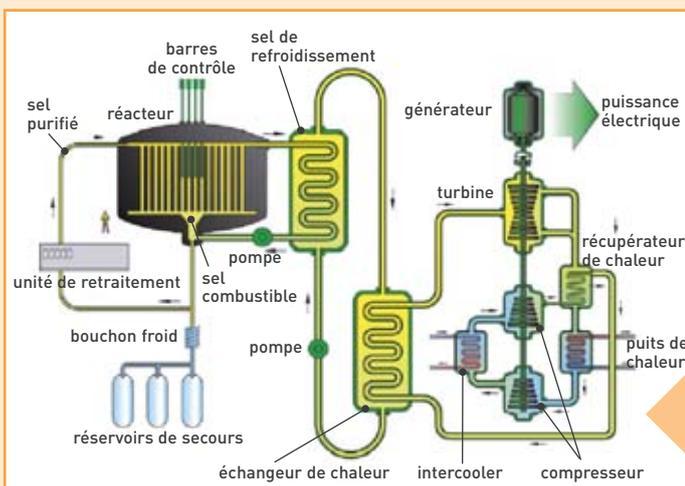
Le VHTR

Le **VHTR** (*Very High Temperature Reactor*, en français **RTHT**) est un **réacteur à très haute température** à **neutrons thermiques** refroidi au gaz hélium et initialement prévu pour fonctionner avec un **cycle** de combustible **ouvert**. Ses points forts sont l'économie et surtout la sûreté. Son aptitude au développement durable est similaire à celle d'un réacteur de troisième génération, en raison de l'utilisation d'un cycle ouvert. Il est dédié à la production d'**hydrogène**, même s'il doit aussi permettre la production d'électricité (seule ou en **cogénération**). La particularité du VHTR est son fonctionnement à très haute température (>1000 °C) pour fournir la chaleur nécessaire à des procédés de décomposition de l'eau par cycle **thermochimique** (iode/soufre) ou **électrolyse** à haute température. Le système de référence a une puissance unitaire de 600 MWth et utilise l'hélium comme caloporteur. Le cœur est constitué de blocs prismatiques ou de boulets.



Le SCWR

Le **SCWR** (*Supercritical Water Reactor*, en français **RESC**) est un réacteur refroidi à l'eau supercritique à neutrons thermiques dans une 1^{re} étape (**cycle** du combustible **ouvert**) et à neutrons rapides dans sa configuration aboutie (cycle fermé pour un recyclage de l'ensemble des **actinides**). Deux cycles de combustible correspondent à ces deux versions. Les deux options ont un point de fonctionnement en eau supercritique identique : pression de 25 MPa et température de sortie du cœur de 550 °C permettant un rendement thermodynamique de 44 %. La puissance unitaire du système de référence est de 1700 MWe. Le SCWR a été évalué comme ayant un potentiel élevé de compétitivité économique.



Le MSR

Le **MSR** (*Molten Salt Reactor*, en français **RSF**) est un réacteur à sels fondus (cœur liquide et cycle fermé par traitement continu par **pyrochimie**), à neutrons thermiques et plus précisément **épi-thermiques**. Son originalité est la mise en œuvre d'une solution de **sels fondus** servant à la fois de combustible (liquide) et de caloporteur. La régénération de la matière fissile est possible avec un cycle uranium-**thorium** optionnel. Le MSR intègre dans sa conception un recyclage en ligne du combustible et offre ainsi l'opportunité de regrouper sur le même site un réacteur producteur d'électricité et son usine de retraitement. Le sel retenu pour le concept de référence (puissance unitaire de 1000 MWe) est un fluorure de sodium, de zirconium et d'actinides. La **modération** de spectre est obtenue dans le cœur par la présence de blocs de graphite traversés par le sel combustible. Le MSR comprend un circuit intermédiaire en sels fluorures et un circuit tertiaire à eau ou hélium pour la production d'électricité.