# Les matériaux **métalliques,** une des **clés** de la 4<sup>e</sup> génération

Les matériaux métalliques vont jouer un rôle crucial dans le développement des systèmes nucléaires de quatrième génération. Qu'il s'agisse du gainage des combustibles, de la fabrication des cuves ou d'autres éléments de structure de réacteurs fonctionnant au gaz, à haute température et/ou dans un spectre rapide, des innovations sont nécessaires.



Préparation de la machine de traction statique destinée à effectuer des essais de traction ou de compression de matériaux irradiés destinée à équiper une cellule d'essais mécaniques (vue depuis zone arrière) du Laboratoire d'étude des combustibles irradiés au CEA/Saclay dans le cadre du projet Peleci (Projet d'équipement du Laboratoire d'étude des combustibles irradiés) qui a vu la mise en service en 2005 d'une nouvelle ligne d'enceintes blindées.

**D** futur, de nombreuses études sont conduites sur le développement de nouveaux matériaux qui allient à la fois une bonne résistance mécanique à chaud, une bonne résistance à l'**irradiation** en **spectre rapide** et qui apportent toutes les garanties nécessaires de sûreté et de sécurité pour le réacteur (tableau p. 75 et Mémo E, *Les grandes familles de matériaux nucléaires*, p. 76).

### Des ODS pour les structures les plus chaudes et les plus irradiées

Parmi les solutions envisageables pour le **gainage combustible**, en particulier, les matériaux métalliques sont ceux pour lesquels il existe le plus grand retour d'expérience. Les **alliages de zirconium** sont actuellement utilisés dans les **réacteurs à eau sous pression (REP)** et les **aciers austénitiques** dans les **réacteurs à neutrons rapides (RNR)**. Ces matériaux présentent toutefois certains inconvénients: les premiers ne peuvent pas être utilisés au-delà de 400 °C alors que l'utilisation des seconds ne peut pas être envisagée pour de très fortes **doses** du fait de leur **gonflement** sous irradiation (figure 1).

Il existe une autre grande classe d'aciers dont le comportement sous irradiation est bien connu: les **aciers ferritiques-martensitiques**. Ils offrent de nombreux atouts pour le gainage des éléments combustibles. En effet, comme le montre aussi la figure 1, ils présentent une excellente stabilité dimensionnelle sous irradiation, une bonne résistance à la corrosion dans différents environnements et lorsqu'ils sont renforcés par une dispersion d'oxydes **nanométriques**, leur résistance mécanique se trouve considérablement améliorée, même à très haute température (1000 - 1100 °C). Ce type de matériaux est couramment appelé ODS (*Oxide Dispersion Strengthened materials*).

Une des propriétés limitant actuellement l'utilisation des aciers ferritiques-martensitiques de type Fe-9/18Cr (alliages composés majoritairement de fer, avec entre 9 et 18 % de chrome (Cr) et quelques pour-cent d'éléments d'addition) est leur résistance au **fluage**. Pour contenir ce phénomène et obtenir des matériaux à très hautes performances, les chercheurs et les industriels



Évolution dimensionnelle en fonction de la dose observée sur les structures métalliques de gainage d'assemblage combustible utilisées dans le cœur du réacteur à neutrons rapides Phénix. Les aciers austénitiques de type 316Ti ont été très largement utilisés dans le passé comme matériaux de gaines et de tubes hexagonaux (TH). S'agissant du gainage, ils ont été remplacés par une variante austénitique, le 15/15Ti un peu plus résistante au gonflement et pour les TH par l'EM10, un acier martensitique à 9 % de Cr (d'après J.-L. Séran).





#### Figure 2.

Contrainte à rupture en fonction du temps et de la température pour deux ODS et un acier martensitique conventionnel. Ces courbes ont été obtenues par ORNL avec notamment le MA957 fourni par le CEA dans le cadre d'une collaboration INERI (avec l'aimable autorisation de D. T. Hoelzer d'ORNL). ont réussi à renforcer des matrices métalliques par une fine dispersion d'oxydes très stables en température. Pour illustrer ce point, la figure 2 compare les propriétés de fluage de deux ODS, l'acier 12YWT (Fe-13Cr 3W Ti Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) et l'acier MA957 (Fe-14Cr 0,3Mo Ti Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), à celles d'un acier Fe-9Cr W Mo V Nb conventionnel. La représentation de type Larson Miller choisie pour cette comparaison permet de calculer un paramètre dit LMP intégrant les paramètres temps et température, et de connaître la contrainte à rupture. Ce schéma montre clairement l'intérêt des ODS par rapport à une nuance conventionnelle. Il apparaît, par exemple, qu'après 17000 heures de fluage à 600 °C (ce qui équivaut à un LMP de 26391), la contrainte à rupture des ODS se situe entre 300 et 350 MPa contre 150 MPa pour une nuance conventionnelle. Dans les ODS, les fins oxydes bloquent le mouvement des dislocations à la base de la déformation du matériau.

C'est dans les années 70 que sont apparus les premiers ODS commerciaux dont les nuances étaient des bases nickel ou fer. Les techniques conventionnelles d'élaboration des métaux utilisant 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, soit ils réagissent avec le creuset du four et ne sont plus présents après la coulée, soit ils coalescent<sup>(1)</sup> dans le bain liquide et forment des oxydes trop massifs pour provoquer un effet de renfort. Il est donc nécessaire de passer par une synthèse par voie mécanique issue de la métallurgie des poudres, appelée couramment *mécanosynthèse*.

### Vers la nano-précipitation contrôlée pour la maîtrise du fluage à haute température

La figure 3 présente le schéma de production des ODS base fer. À des poudres métalliques élémentaires ou préalliées de quelques dizaines de micromètres de diamètre est mélangée une fine poudre d'oxydes d'yttrium dont la taille peut varier de la dizaine de nanomètres à la dizaine de micromètres et dont le volume représente environ 1 % du volume total de matière. Ces poudres sont ensuite co-broyées grâce à une succession de chocs mécaniques à l'intérieur d'une enceinte remplie de billes ou de boulets. Lors de cette étape délicate, qui conditionne largement la qualité finale du matériau, les poudres sont tour à tour écrouies (2), soudées, refracturées, resoudées... Les oxydes peuvent être amorphisés et finissent, après des broyages de plusieurs dizaines d'heures, par être comme dissous dans la poudre métallique. La poudre broyée est ensuite récupérée pour être placée dans un conteneur en acier doux avant de réaliser un filage<sup>(3)</sup> à chaud ou une compression isostatique à chaud. Cette opération permet de consolider la matière, c'est-à-dire d'obtenir, grâce à la pression et à la température mises en jeu, un matériau dense, sans porosité et dont la densité est équivalente à celle d'un matériau élaboré par fusion.

Lors de la consolidation du matériau, les oxydes dissous peuvent reprécipiter de façon fine et homogène dans la matrice. Selon à la fois les paramètres de consolidation, la qualité du broyage et la composition chimique des poudres, une partie de cette précipitation sera complètement nanométrique.

La figure 4, obtenue par diffusion des neutrons aux petits angles<sup>(4)</sup> sur l'alliage 12YWT (Fe-12Cr3WTiY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>),

(1) Coalescence: phénomène par lequel deux objets ou substances identiques, mais dispersées (par exemple deux gouttes) ont tendance à se réunir.

(2) Écrouissage: déformation plastique d'un métal à une température inférieure à sa température de recristallisation. Cette opération engendre une augmentation des caractéristiques de résistance et une diminution

des caractéristiques de ductilité.

(3) Filage: méthode de mise en forme des métaux rendus ductiles par forgeage à chaud à travers une filière.



Schéma de principe de l'élaboration d'un alliage ODS.





#### Figure 4.

Distribution normalisée du rayon des *nano-clusters* (agrégation des atomes d'un métal en nanoparticules) dans l'acier 12YWT (Fe-12Cr3WTiY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) obtenue par diffusion des neutrons aux petits angles (DNPA) au Laboratoire Léon Brillouin à Saclay, d'après Marie-Hélène Mathon *et al.* En médaillon, le spectre brut d'intensité diffusée en 2D obtenu sur le détecteur de la DNPA.

montre une distribution en taille inférieure à 10 nm des amas nanométriques (nano-clusters) qui pourraient être formés lors de la consolidation. Ces observations ont été confirmées par des mesures faites à l'aide de sondes atomiques tomographiques<sup>(5)</sup> ou par microscopie électronique en transmission (figure 5). La cristallographie et la composition chimique des nanooxydes formés lors de la consolidation peuvent être très différentes de celles des oxydes initiaux. Avec un rayon moyen proche de 1 nm et une très grande stabilité thermique, les phases oxydes coalescent à des températures supérieures à 1 000 °C, ces renforts constituant des obstacles très efficaces à la déformation du matériau. Il est à noter que d'autres cristaux d'oxydes beaucoup plus massifs se retrouvent aussi dans le matériau après consolidation. Ces oxydes, qui peuvent être microniques, ne semblent jouer aucun rôle particulier pour la résistance au fluage.

Suivant la filière de réacteurs considérée et les contraintes subies, les ODS base fer peuvent être envisagés à des températures nominales de fonctionnement de réacteur dépassant 1000 °C pour un ODS à structure ferritique. Cet avantage, couplé à une excellente résistance au gonflement, fait que les ODS constituent actuellement l'une des meilleures pistes possibles pour augmenter de façon très significative les performances de l'élément combustible d'un **RNR-Na**.

La température de fusion des ODS base fer est légèrement supérieure à 1 400 °C et ceux-ci ne peuvent donc se substituer à des métaux réfractaires ou à des céramiques. L'utilisation des ODS en tant que gaine de combustible pour des filières telles que celles des **RNR-G** ne peut s'envisager que si la température en conditions

(4) Diffusion des neutrons aux petits angles (DNPA): technique d'exploration de la matière condensée fondée sur la diffusion des rayons X et des neutrons sous des angles pouvant descendre jusqu'à 0,005°. Elle permet d'étudier des hétérogénéités dont les dimensions vont de quelques angströms à quelques milliards d'angströms.

(5) Sonde atomique tomographique: technique permettant, par exemple, de remonter à la répartition spatiale des divers atomes constitutifs d'un alliage en arrachant un à un les ions d'une pointe métallique taillée dans cet alliage, en les accélérant dans un champ électrique et en mesurant leur temps de vol jusqu'à un détecteur.

accidentelles peut être limitée à environ 1500 °C pendant quelques heures.

Les matériaux renforcés par dispersions d'oxydes peuvent présenter quelques inconvénients qu'il importe de bien appréhender. Du fait de leur technique d'élaboration, ils présentent une **anisotropie** de microstructure marquée qui se traduit par une anisotropie de propriétés mécaniques. Par exemple, dans le cas de tube de gainage, les **grains** seront allongés dans le sens de l'axe du tube, induisant une baisse de la résistance mécanique dans les sens radial et tangent. Ces sens correspondent aux modes de sollicitation majeurs en service. Il s'agit alors de bien maîtriser la gamme de fabrication industrielle afin de minimiser cette caractéristique.

Ils sont très difficiles à souder. Pour conserver leurs propriétés mécaniques après soudage, il faut préserver la taille et la répartition des nanorenforts d'oxydes. Seuls quelques procédés de soudage (friction inertielle, soudage-diffusion...) sont capables de répondre à cette contrainte.

Les nuances à faible concentration en Cr (inférieure à 12 %) présentant une structure martensitique offrent un potentiel d'utilisation en température limité et peuvent poser des problèmes de compatibilité physicochimique avec l'environnement extérieur (sodium) ou intérieur (combustible) de la gaine **fissile**.

Quant aux nuances ferritiques à fort Cr évoquées plus haut, il faut vérifier que leur irradiation neutronique à des températures supérieures à 400 °C n'entraîne pas une fragilisation rédhibitoire.

Tous ces points seront plus particulièrement examinés dans le cadre de l'important programme de R&D du CEA. En effet, la maîtrise de tous les paramètres de fabrication et d'assemblage est essentielle pour contrôler la microstructure finale du matériau dont dépendent les mécanismes de vieillissement hors et sous irradiation. En 2007, plusieurs nouvelles nuances d'ODS sont produites en collaboration avec les sociétés Aubert & Duval et Plansee. Ces nuances seront irradiées dans Phénix (irradiation Matrix 2) pour l'étude de leurs évolutions microstructurales et de leurs comportements mécaniques dans la gamme de température 400 – 550 °C. Un certain nombre de programmes de R&D sont en cours de préparation dans le cadre européen (7° PCRD) et à l'échelle nationale (projets de l'ANR). Une large collaboration internationale est également lancée sur les ODS avec notamment les équipes japonaises et américaines pour relever le défi de la qualification des alliages ODS en tant que solutions pour le gainage combustible des RNR.



Figure 5. Image en microscopie électronique en transmission à haute résolution d'une particule d'Y2Ti<sub>2</sub>07 dans un ODS Fe-9Cr W (d'après Klimiankou *et al.*).



Lots d'échantillons de matériaux pour les systèmes nucléaires du futur préparés pour le programme d'irradiations expérimentales Matrix dans le réacteur Phénix.



### Les aciers ferritiques-martensitiques au chrome : des matériaux aux multiples applications

Les aciers ferritiques-martensitiques (F/M en abrégé), contenant 9 à 12 % en masse de chrome sont des matériaux aux multiples atouts (Mémo E, *Les grandes familles de matériaux nucléaire*, p. 76). Il s'agit d'aciers inoxydables, à résistance mécanique élevée, alliant un coefficient de dilatation thermique faible à une forte conductibilité thermique. Par ailleurs, leur résistance au fluage à haute température a été améliorée au cours de nombreuses années de recherche, par exemple par ajout d'éléments tels que le niobium (Nb) et le vanadium (V) qui forment une fine précipitation de carbures, et par addition de molybdène (Mo) et de tungstène (W) en solution solide qui induisent un durcissement.

Ces aciers, comme par exemple les nuances industrielles T91 (9Cr 1MoVNb), T92 (9Cr 0,5 Mo 2W VNb) ou T122 (12 Cr 0,5Mo 2WVNbCu), sont envisagés comme matériaux des circuits primaire et secondaire du futur RNR-Na ainsi que pour les tubes de générateurs de vapeur en remplacement des aciers inoxydables austé-



nitiques utilisés pour Phénix et Superphénix. Cela permettrait d'améliorer la compétitivité économique du RNR-Na, car le coût de fabrication des aciers F/M est nettement inférieur à celui des aciers austénitiques. De plus, du fait de leurs excellentes caractéristiques de conductibilité et de dilatation thermiques,

il devient possible de raccourcir les tuyauteries, ce qui aboutit à une réduction importante du volume d'acier nécessaire.

Les aciers F/M possèdent également une excellente résistance à certains effets induits par l'irradiation neutronique. La figure 1 a montré que leur stabilité dimensionnelle, donc leur résistance au gonflement et au fluage sous irradiation, était remarquable. De plus, pour des températures supérieures à 400 °C, les propriétés mécaniques des aciers F/M à 9 % Cr, en particulier leur ténacité et leur température de transition fragile-ductile, sont très peu affectées par l'irradiation. C'est pour ces raisons que, faisant suite à l'actuelle référence EM10, l'acier T92 est proposé comme matériau pour le tube hexagonal de l'assemblage combustible du RNR-Na. Rappelons que pour le gainage des éléments combustible, la résistance mécanique à chaud du T92 étant insuffisante, c'est l'acier F/M renforcé par dispersion d'oxyde (ODS) qui est proposé.

Les aciers F/M à 9 % Cr sont aussi les matériaux actuellement envisagés pour la fabrication des cuves des réacteurs à **caloporteur** gaz à haute température. Contrairement aux circuits du réacteur au sodium, il s'agit là de fabriquer des composants ayant de très fortes épaisseurs (jusqu'à environ 200 mm). Or, il n'existe à ce jour qu'une expérience très limitée en ce qui concerne la fabrication de plaques épaisses d'acier à 9 % Cr. Il sera indispensable d'évaluer, en fonction de l'épaisseur et des traitements thermomécaniques, le degré d'hétérogénéité de la microstructure et la distribution dans l'épaisseur des propriétés mécaniques, tout particulièrement de fluage. Un autre axe de R&D très important pour la fabrication de la cuve concerne le procédé d'assemblage. En effet, si le procédé de soudage TIG<sup>(6)</sup>, pour l'instant incontournable dans l'optique d'un développement industriel, donne des résultats satisfaisants lors du soudage de tôles d'épaisseurs intermédiaires (quelques centimètres), un phénomène de microfissuration à chaud a été mis en évidence pour des produits épais. Un programme de recherche est en cours afin de comprendre les mécanismes en jeu. Il a permis non seulement de montrer qu'il est important de limiter les teneurs en éléments fragilisants tels que le phosphore et le soufre, mais aussi, grâce à des outils de calcul thermodynamique, d'optimiser la composition chimique du métal d'apport en vue d'une meilleure résistance à la fissuration à chaud.

Compte tenu des durées de fonctionnement extrêmement longues prévues pour les réacteurs de quatrième génération (60 ans), il importe de s'interroger sur l'évolution en service des propriétés des matériaux de structure, et en particulier du matériau de cuve, lors du vieillissement thermique de très longue durée sous faible irradiation neutronique. À ce jour et même s'il faut être prudent quant aux extrapolations pour des temps de vieillissement très longs, les données issues de la littérature ouverte ou obtenues au CEA indiquent une grande stabilité des aciers à 9 % Cr sous vieillissement thermique. En effet, pour des températures inférieures à 450 °C (domaine de fonctionnement de la cuve), un phénomène de démixtion <sup>(7)</sup> de type " $\alpha/\alpha$ " est susceptible de se produire, conduisant à l'apparition de précipités de phase  $\alpha$ ' de taille nanométrique dans la matrice ferritique (phase  $\alpha$ ). Or, la fraction volumique de cette phase précipitée étant faible, cela n'induit qu'un léger durcissement du matériau sans affecter sa ténacité.

### Des alliages de nickel pour les réacteurs à gaz à très haute température

Les réacteurs de type RTHT ou RNR-G fonctionneront avec un caloporteur hélium circulant entre 850 °C et 950 °C dans le circuit primaire. Le choix des matériaux de ce circuit et de l'échangeur intermédiaire primaire/secondaire s'est porté sur la famille des alliages de nickel renforcés par des éléments en solution solide et par des carbures. Deux nuances industrielles sont actuellement en cours d'évaluation : l'alliage 617 (Ni-Cr-Co-Mo) et l'alliage 230 (Ni-Cr-W). Ces matériaux sont déjà largement utilisés dans l'industrie chimique, mais il faut les qualifier pour une application de type réacteur nucléaire, ce qui nécessite en particulier d'obtenir des données garantissant des durées de vie très longues (de 20 ans pour l'échangeur à 60 ans pour le circuit primaire). Les études en cours portent principalement sur les domaines de la stabilité thermique, de la tenue à la corrosion (à Saclay) et de la tenue au fluage (à Grenoble). À ces températures en effet, les carbures

(6) TIG: (*Tungsten Inert Gas*) procédé de soudage à l'arc à électrode réfractaire sous atmosphère inerte, utilisé lorsque l'on doit obtenir une très haute qualité de soudage (appareils à pression).

(7) démixtion: phénomène de micro-séparation de phases de compositions différentes dans un alliage lorsqu'un composé en solution du mélange a dépassé sa limite de solubilité.

Figure 6. Précipitation de carbures M<sub>23</sub>C<sub>6</sub> aux joints de grains – Alliage 617 vieilli 1 000 h à 850 °C (d'après L. Guetaz).

74 CLEFS CEA - N° 55 - ÉTÉ 2007





Maquette TBM Eurofer/cuivre (avant compression isostatique à chaud) représentative d'une partie de couverture tritigène d'un réacteur de fusion.

présents dans le matériau coalescent, et de nouveaux carbures précipitent près des joints de grains, entraînant une baisse de ductilité des matériaux (figure 6). S'agissant de la corrosion, la présence d'impuretés dans l'hélium entraîne des risques d'oxydation et de carburation/décarburation des matériaux. Enfin, l'extrapolation des données de fluage obtenues sur des essais de quelques milliers d'heures pour la prédiction du comportement à 100 000 h suppose de connaître parfaitement les mécanismes de déformation mis en jeu, ainsi que les évolutions de microstructure liées aux chargements thermique et mécanique.

### Des synergies entre matériaux pour réacteurs à fission et à fusion

Par rapport aux réacteurs de fission, les réacteurs de fusion seront soumis à une contrainte neutronique beaucoup plus importante. La réaction de fusion deutérium-tritium produit en effet un neutron très rapide de 14 MeV, lequel induit des transmutations dans la matière avec, en particulier, la production d'hélium (10 appm/dpa)<sup>(8)</sup> et d'hydrogène (40 appm/dpa). Par ailleurs, le flux neutronique induira jusqu'à 30 dpa par an dans les matériaux de structure. Il en résulte une possible fragilisation du matériau suite à une augmentation de la température de transition de l'état ductile<sup>(9)</sup> vers l'état fragile, lequel ne peut s'envisager pour un matériau de structure. Le développement de matériaux adéquats est donc un verrou technologique essentiel pour la conception des réacteurs de fusion électrogènes. Pour le prochain projet, Iter, les fluences neutroniques restent très limitées (< 3 dpa), ce qui autorise l'utilisation d'aciers austénitiques "classiques". En revanche, les étapes suivantes nécessiteront un matériau capable de résister aux contraintes d'irradiation très élevées évoquées plus haut. Les développements en cours

(8) appm: atomic part per million: partie atomique par million.
(9) état ductile: état d'un matériau subissant des déformations plastiques en résistant à la propagation des défauts induits par sa déformation, par opposition à son état fragile qui précède la rupture.

reposent sur les recherches réalisées pour les réacteurs de fission de génération IV, sur la base d'aciers ferritiques-martensitiques à basse **activation** renforcés ou non par des dispersions d'oxydes (ODS). Après une phase de mise au point à l'échelle du laboratoire, le programme européen pour la fusion contrôlée a déjà conduit à la fabrication industrielle d'un tel acier (non ODS) baptisé Eurofer et qui fait l'objet de nombreux travaux de caractérisation (tels que la détermination des propriétés mécaniques), d'établissement de bases de données pour la codification ainsi que d'études de soudabilité et de tenue à l'irradiation.

En parallèle, plusieurs laboratoires étudient la faisabilité d'une nuance ODS de l'Eurofer: il s'agit d'incorporer des oxydes d' $Y_2O_3$  de taille nanométrique qui permettront d'améliorer les performances et ainsi d'augmenter de 100 °C la température maximale admissible. Plusieurs versions ODS de l'Eurofer ont été élaborées dans différents laboratoires européens dont le CEA, qui a choisi la voie de la mécanosynthèse suivie d'une compaction isostatique à chaud, matériau dont la figure 7 montre la microstructure. Les matériaux obtenus à ce jour présentent tous des valeurs de résilience en forte baisse par rapport à l'Eurofer non renforcé. Des études sont en cours pour comprendre l'origine de cette perte de résilience et optimiser le procédé d'élaboration.

L'Eurofer sera testé dans Iter et surtout dans la source **IFMIF** (*International Fusion Materials Irradiation Facility*) qui devrait produire des flux suffisamment importants de neutrons à spectre énergétique de type "fusion" de façon à étudier, de manière accélérée, le vieillissement de tels aciers: un accord entre l'Europe et le Japon, parallèle à celui conclu pour le projet Iter lui-même, inclut la conception d'une telle installation: une équipe de projet se met à l'œuvre dès à présent à Rokkasho-mura (Japon). Cet effort s'accompagne d'un développement de modélisation *ab initio* multi-échelle du comportement de la matière sous irradiation. Ce programme matériaux est sur le chemin critique du réacteur de démonstration DEMO, dont l'objectif sera de prouver la capacité à réaliser un réacteur de fusion électrogène.



Direction de l'énergie nucléaire CEA Centre de Saclay > Hélène Burlet

Direction de la recherche technologique CEA Centre de Grenoble

### > André Grosman

Direction des sciences de la matière CEA Centre de Cadarache



Figure 7. Eurofer ODS renforcé avec 1 %  $Y_2O_3$  (d'après C. Cayron).

Tableau. Matériaux envisagés pour application en cœur pour les six systèmes étudiés par le Forum GEN IV.

	VHTR (RTHT)	SFR (RNR-Na)	GFR (RNR-G)	SCWR (RESC)	LFR (RNR-Pb)	MSR (RSF)
combustible U, U-Pu	particules revêtues SiC, ZrC	MOX métal	carbure nitrure	UO <sub>2</sub> MOX	nitrure	fluorure (chlorure)
combustible TRU		MOX métal	carbure nitrure			fluorure (chlorure)
matériaux de cœur	graphite C/C,SiCf/Sic	AISI AFMA, ODS	SiC, TiC autres céramiques	alliages de Ni		graphite
matériaux de structure	AFMA	AFMA, ODS aciers aus- tenitiques	AFMA, ODS alliages de Ni	alliages de Ni		hastelloys

# MÉMO A

# Les éléments d'un système nucléaire

n 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*-



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, recoit 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 ralentissent 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<sup>[1]</sup> 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 retraiter 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) permettent 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**<sup>(1)</sup> 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.

(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).

# MÉMO B

# Filières, générations et spectres neutroniques

es 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



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 guelgue 20000 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

# MÉMO suite B

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<sup>(1)</sup> 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.

 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 WER 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 (D<sub>2</sub>O) 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 Il 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.

# MÉMO C

# 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  $\eta$  de la conversion est toujours inférieur au rendement de Carnot :

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

où  $T_{\rm c}$  est la température de la source chaude et  $T_{\rm f}$  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 eu 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<sup>e</sup> génération. Celui-ci peut passer à 36-38 % pour un REP de 3<sup>e</sup> génération comme l'EPR, en augmentant la température, car l'éguation 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.



### Figure.

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

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 1000 °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  $(1\rightarrow 2)$ , brûler le mélange air-combustible dans la chambre de combustion  $(2 \rightarrow 3)$ . détendre les gaz brûlés dans une turbine  $(3\rightarrow 4)$ . 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.

# MÉMO D

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

a 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 brigues 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



#### 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.

fissures, des soudures ou des supports. La modélisation multi-physique et multi-échelle pose donc de facon 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 multiéchelle 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 multiéchelle 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.

# MÉMO E

# Les grandes familles de matériaux nucléaires

es conditions spécifiques imputables aux ravonnements 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 fatique, 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 gaines ou autres plaques) sont en outre soumis à d'autres contraintes. Enfin, le combustible luimême 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<sup>(1)</sup>, ces changements sont liés à l'évolution des **défauts ponctuels** que cette irradiation produit et aux **atomes** étran-

(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. 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 surnombre 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'intersticiels 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'inoxydabilité 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  $\cdot$  cm<sup>-2</sup> 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-



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 un 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<sup>(2)</sup> 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 316Tie 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

# MÉMO suite

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 conductibilité 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 Strenghtened) 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 austénitigues. 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 WER) 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<sup>®</sup>) 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 pyrocarbones 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  $UO_2$ 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 nitrures (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<sup>[1]</sup>, PBMR<sup>[2]</sup> 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 CO<sub>2</sub> 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 **nitrure** et permettent le recyclage de l'ensemble des actinides.











#### sel de barres refroidissement de contrôle puissance sel générateur réacteur purifié electrique turbine écupérateur pompe de chaleur sel unité de retraitement combustible bouchon froid puits de pompe , chaleui réservoirs de secours échangeur de chaleur intercooler compresseur

## 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<sup>re</sup> 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 épithermiques. 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.