



Fermer le cycle avec des réacteurs de 4^e génération

À côté de l'utilisation optimale des matières fissiles, les systèmes nucléaires de quatrième génération devront traiter leurs propres déchets et offrir des parades efficaces à la prolifération. Les chercheurs travaillent sur toute une série de procédés qui répondront aux options qu'il reste à prendre en matière de réacteurs, de combustibles et d'objectifs de traitement/recyclage. Ils explorent à la fois les voies hydrométallurgiques, qui permettent déjà de fermer le cycle du combustible des réacteurs de deuxième et troisième générations, et la voie pyrochimique, qui autoriserait le traitement *in situ* des matières.

Télémanipulation d'une aiguille de combustible irradié dans le caisson réception de la Chaîne blindée procédé (CBP) de l'ensemble Atalante, au centre CEA de Marcoule, où ont été réalisées depuis 2004 toute une série d'expérimentations concluant la démonstration de la faisabilité technique de la séparation poussée. L'installation a traité 15 kg de combustibles irradiés pour démontrer successivement la séparation de l'uranium et du plutonium, puis des lanthanides et des actinides mineurs et enfin de l'américium et du curium, avec des taux de récupération dépassant les 99,9 %.



P. Stroppa/CEA

Pour constituer une source d'approvisionnement durable en énergie, les **systèmes nucléaires** du futur doivent satisfaire à divers critères : rester compétitifs au plan économique, assurer la disponibilité de ressources sur le long terme, présenter une sûreté encore accrue, garantir un impact sur l'environnement minimal et maîtriser les risques de **prolifération**. L'enjeu de durabilité est essentiellement lié aux options retenues pour le **cycle** du **combustible** et la gestion des

matières. Une idée-force s'est imposée pour mieux valoriser les ressources en **uranium**, réduire la **radio-toxicité** à long terme des déchets, dénaturer et détruire les matières potentiellement détournables à des fins autres que la production d'énergie : recycler les **actinides** dans des réacteurs aptes à en tirer le meilleur parti, les **réacteurs à neutrons rapides (RNR)**.

Une telle stratégie, initiée avec le **traitement** et la réutilisation du **plutonium** dans les combustibles **MOX** et qui s'est poursuivie avec l'étude d'options plus avancées dans le cadre de la **loi du 30 décembre 1991** (**séparation** poussée et **transmutation** des **actinides mineurs [AM]**), s'est trouvée confirmée par la **loi du 28 juin 2006** : le **recyclage** y apparaît comme un élément incontournable du développement du nucléaire. Ce principe posé, beaucoup d'options restent envisageables : quels actinides recycler (l'uranium, le plutonium, tous) ? Comment les recycler (gestion groupée de tous les actinides dans un concept de recyclage **homogène**, ou bien de façon séparée, sur des supports et même dans des strates ou des machines dédiées) ? Dans quels types de RNR ? Et dans quel combustible ?

C'est tout l'objet des recherches à mener, avec l'objectif d'évaluer à l'aune des divers critères les principales voies envisageables. La loi de 2006 a fixé de nouveaux rendez-

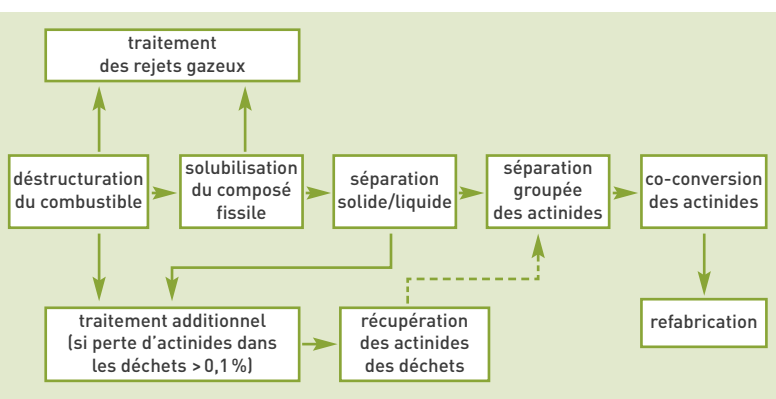


Figure 1. Schéma général de traitement du combustible de quatrième génération.

vous à la recherche : 2012 pour la sélection des meilleures options, 2020 pour la mise en service d'un prototype de 4^e génération, ce qui implique de disposer en amont des installations du cycle pour l'alimenter.

Une trentaine de procédés de traitement

L'objectif de recycler, à moindre coût, l'intégralité des actinides du combustible usé nécessite des procédés de traitement efficaces, à rendements de récupération élevés (> 99,9 %) et compatibles avec les procédés de conditionnement des déchets ultimes et de refabrication du combustible.

Le choix d'un procédé de traitement dépend étroitement de celui du combustible, choix qui reste ouvert. Néanmoins, en fonction de l'expérience acquise des procédés actuels et des concepts de combustibles envisagés, un schéma général a été établi (figure 1). Une trentaine de procédés ont été identifiés pour les différentes opérations à mettre en œuvre.

Dans l'attente du choix d'un combustible de référence, les études portent principalement sur les étapes essentielles du traitement, notamment la déstructuration des combustibles par courants pulsés, la séparation groupée des actinides par extraction liquide/liquide ainsi que la co-conversion des actinides par précipitation oxalique ou par voie sol-gel. Ces études concernent aussi sur les potentialités des procédés innovants pour le recyclage des actinides, comme les procédés pyrochimiques. Les procédés présentés ci-après illustrent quelques-unes des axes des recherches conduites dans l'installation Atalante⁽¹⁾.

Déstructuration des éléments combustibles par courants pulsés

Le procédé de déstructuration des éléments combustibles par courants pulsés se fonde sur le fait que des solides exposés à des énergies de quelques kJ, produites à partir d'impulsions de haute tension de l'ordre de 200 à 500 kV et des courants de décharge de 10 à 20 kA, subissent localement, en quelques microsecondes, des transferts de densité d'énergie de 10 à 100 J/cm. Cet apport d'énergie provoque des élévations locales de température pouvant atteindre 10 000 K et des pressions de l'ordre de 10¹⁰ Pa qui vont fragmenter instantanément le solide et le réduire à l'état de débris plus ou moins fins.

De premiers essais de déstructuration de matériaux constitutifs d'un combustible de RNR-G (une plaque de carbure de silicium [SiC] avec des alvéoles remplies de SiC simulant le composé fissile) ont donné des résultats encourageants (figure 2). Ils permettent d'envisager l'application de ce procédé pour accéder au composé fissile des combustibles de type plaque sans dissoudre l'ensemble composé fissile-matrice inerte. Il est prévu de poursuivre cette étude sur des objets plus représentatifs : combustible plaque fermée et particules enrobées dispersées dans une matrice inerte.

Extraction groupée de l'ensemble des actinides

La dissolution nitrique des oxydes et des carbures d'actinides étant acquise (retour d'expérience des années 60-70) et la technologie de l'extraction liquide/liquide étant bien adaptée au nucléaire, le concept de l'extraction groupée des actinides, Ganex (pour Group Actinide Extraction) a été conçu par le CEA sur ce prin-

cipe. Le procédé (figure 3) comprend une étape de séparation préliminaire de l'uranium suivie d'une extraction groupée des transuraniens et de l'uranium résiduel du raffinat. Pour cette séparation, deux voies sont examinées : l'aménagement du procédé existant pour la séparation poussée des AM et la recherche de nouvelles molécules extractantes⁽²⁾.

Le procédé Diamex-Sanex⁽³⁾ développé pour la séparation de l'américium (Am) et du curium (Cm) d'une solution de raffinat d'un premier cycle d'extraction peut être adapté à l'extraction groupée des actinides, uranium (U), plutonium (Pu) et neptunium (Np) compris. Des études sont en cours pour l'acquisition de données de partage des actinides U, Pu et Np entre l'acide nitrique et l'extractant diamide seul ou en mélange avec l'acide dialkylphosphorique. La préséparation partielle de l'uranium en tête, réalisable selon un schéma mettant en œuvre des extractants monoamide, permet d'ajuster les flux d'uranium aux bonnes teneurs lors des étapes suivantes de co-conversion ou de fabrication. La démonstration scientifique de ce procédé en deux cycles est prévue en 2007-2008 dans Atalante, sur solution réelle.

La recherche de molécules extractantes plus performantes (sélectivité, capacité d'extraction, robustesse) et la synthèse de molécules pouvant contenir ou supporter différents sites de coordination⁽⁴⁾ (extractants polytopiques) pour la coextraction d'actinides portés à des degrés d'oxydation différents (par exemple mélan-



Figure 2. Schéma de principe de déstructuration par courants pulsés émis par un générateur de Marx sous une tension de 200 à 500 kV et avec une intensité de 10 à 20 kA (a), et vue d'une structure alvéolaire SiC remplie de SiC (combustible dispersé) avant traitement par courants pulsés (b) et après 30 impulsions (c).

(1) Atalante : ensemble de laboratoires du centre CEA de Marcoule équipés de chaînes de cellules blindées, et dédiés aux études sur le traitement des combustibles usés et le conditionnement des déchets de haute activité.

(2) Extractant : molécule dont les caractéristiques la rendent capable d'extraire un corps donné dans une solution. Un extractant polytopique possède plusieurs sites capables de se fixer à ce corps.

(3) Diamex (DIAMide EXtraction) : procédé chimique de séparation des produits de fission de l'ensemble constitué par les lanthanides et les actinides mineurs. Sanex (Séparation des Actinides par EXtraction ou Selective Actinides EXtraction) : procédé de séparation des lanthanides et des actinides.

(4) Site de coordination : sites des liaisons qu'un ion établit avec des atomes donneurs d'électrons. En hydrométallurgie, un ligand est une molécule ou un ion présent dans une solution aqueuse et susceptible de se lier à un ion métallique par des liaisons de coordination.

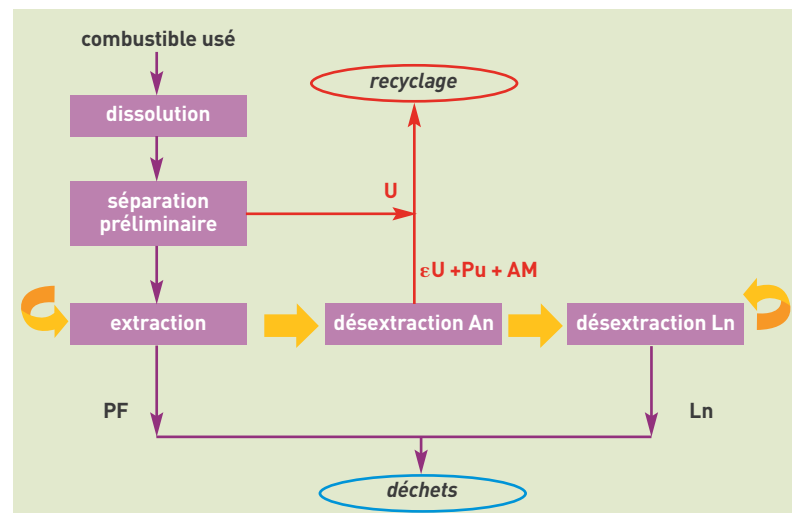


Figure 3. Schéma de principe du procédé Ganex étudié par le CEA pour l'extraction groupée des actinides (PF = produits de fission ; An = actinides ; Ln = lanthanides).

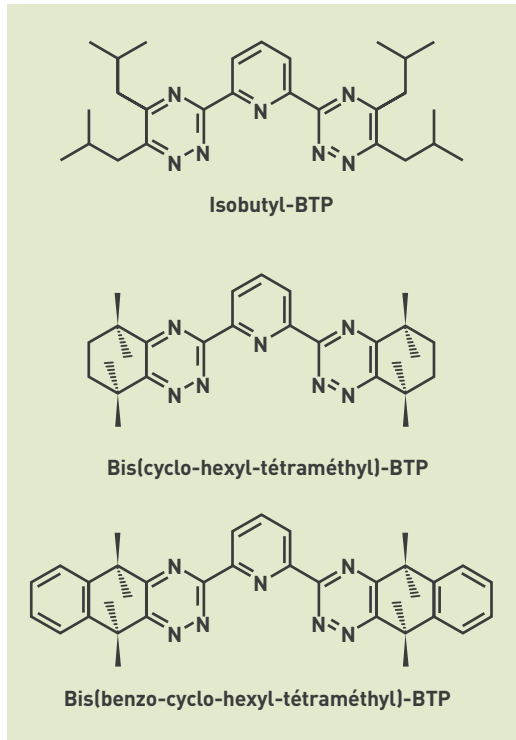
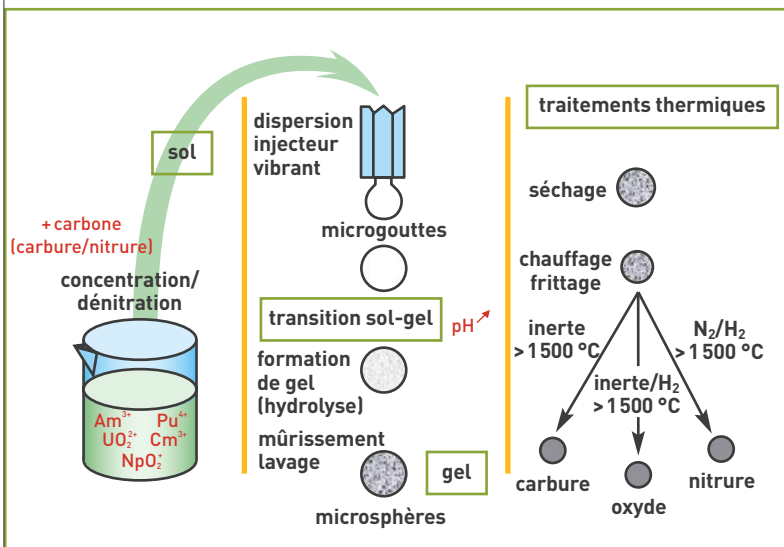


Figure 4. Architecture des molécules de la famille BisTriazinesPyridines testées pour la séparation en un cycle des actinides.

ges An[IV] – An[III] et An[VI] – An[III]) a été lancée sur la base du développement des molécules de la famille BisTriazinesPyridines (BTP). Ces molécules ont été testées dans le cadre de la démonstration technique des procédés de séparation poussée de l'américium et du curium des effluents de haute activité du cycle **Purex** et ont présenté la propriété d'extraire les actinides d'un effluent de forte acidité avec un excellent pouvoir de séparation vis-à-vis des **lanthanides**. Les premiers tests ayant montré une sensibilité importante à la radiolyse (décomposition sous l'effet des rayonnements) et à l'hydrolyse (décomposition chimique par l'eau), de nouvelles molécules plus résistantes ont été synthétisées : la Bis(cyclo-tétraméthyl)-BTP et la Bis(benzo-cyclo-tétraméthyl)-BTP par greffage de motifs triazines en position alpha (figure 4). Avec elles, les performances d'extraction et de séparation des actinides restent excellentes et leur tenue à la radiolyse est nettement améliorée. En contrepartie, une

Figure 5. Schéma de principe du procédé de co-conversion des actinides par gélification interne.



dégradation des cinétiques d'extraction et de dés-extraction a été observée; les études se poursuivent pour y remédier.

Co-conversion des actinides

La co-conversion des actinides est une étape clé entre le traitement et la fabrication du combustible. Deux procédés sont en cours de développement afin de produire un composé solide d'actinides à l'entrée de la chaîne de fabrication pratiquement à la préforme recherchée : ce sont le procédé sol-gel par gélification interne pour la formation de noyaux sphériques d'actinides (concept particules enrobées) et la co-précipitation oxalique pour la formation de solution solide d'actinides (concept pastilles ou bâtonnets).

La voie sol-gel

Le procédé de gélification interne (figure 5) met en œuvre une hydrolyse des actinides, initiée au sein de la goutte de "sol" par décomposition thermique d'un précurseur d'ammoniac : l'hexaméthylènetétramine, solubilisé dans le sol. Ainsi, d'une part la co-condensation d'actinides est favorisée, même à différents degrés d'oxydation, et d'autre part, le mûrissement des billes de gel peut être réalisé dans des bains ammoniacs plus dilués.

Ce procédé, qui s'applique aussi bien aux états d'oxydation⁽⁵⁾ stables des actinides qu'aux états réduits, a été développé à partir d'essais en présence de Ce(III) et d'U(IV) puis testé dans le cadre d'une co-conversion U-Pu dans un rapport 85-15 selon deux modes : gélification d'un mélange U(VI)-Pu(IV) et gélification d'un mélange U(IV)-Pu(III).

Dans le cadre de la refabrication du combustible, le premier mode correspondrait à une co-conversion U(VI)-Pu(IV)-Np(V,VI)-Am(III)-Cm(III) présentant l'avantage de considérer des états d'oxydation initiaux stables en milieu nitrique mais laissant entrevoir une limitation prévisible pour l'hydrolyse complète des AM, en particulier le Np.

Le second mode correspondrait à une co-conversion U(IV)-Pu(III)-Np(IV)-Am(III)-Cm(III), en milieu réducteur⁽⁶⁾, avec des optimisations nécessaires au niveau des conditions de mise en œuvre pour gélifier simultanément et de manière homogène les actinides (IV) et (III), ce qui a été très peu étudié jusqu'ici.

Des essais de formation de gouttelettes d'hydroxydes⁽⁷⁾ d'uranium et de plutonium sitôt leur injection dans un support chauffé et de microsphères de gel d'hydroxydes U(VI)-Pu(IV) et U(IV)-Pu(III) ont été réalisés (figure 6). Ces essais se poursuivent par l'étude des conditions de traitement thermique de ces microsphères en vue de l'obtention de noyaux d'oxydes d'actinides mécaniquement résistants. Les travaux ont permis de cerner un domaine de conditions optimales pour les deux **actinides majeurs**. Les tests visant à étudier le comportement des AM (Np[V,VI] et Am[III]) sont en cours.

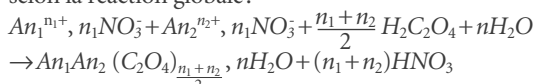
(5) État (ou nombre ou degré) d'oxydation : chiffre représentant le nombre d'électrons qu'il faut ajouter ou soustraire à un atome libre ou dans un composé pour le rendre neutre. Sa diminution correspond à une réduction, son augmentation à une oxydation.

(6) Réduction : réaction inverse de l'oxydation au cours de laquelle un atome ou un ion gagne des électrons (cédés par un réducteur) et aboutit à l'état réduit.

(7) Hydroxyde : anion HO.

La voie oxalique

Les cations métalliques aux degrés d'oxydation III et IV interagissent avec les anions oxalates pour former des complexes⁽⁸⁾ peu solubles en solution nitrique. L'application de cette propriété, déjà utilisée industriellement pour la conversion du nitrate de plutonium en oxyde, a été envisagée d'abord pour les opérations de co-conversion U-Pu puis récemment pour la co-conversion groupée des actinides U-Pu-Np-Am-Cm, selon la réaction globale :



Les conditions de précipitation (concentration, acidité, hydrodynamique...) en *batch*⁽⁹⁾ et en continu et de traitement thermique sous atmosphère contrôlée ont été définies pour divers actinides, d'abord séparément (U, Pu...) puis en mélange (U-Pu, Pu-Np, Pu-Am et U-Pu-Np) dans différentes proportions afin d'obtenir des rendements de précipitation > 99 %.

Les résultats (illustrés figure 7) sont encourageants : les rendements de précipitation sont excellents et l'analyse structurale des solides formés indique bien la formation de solution solide d'actinides sans ségrégation entre actinides. Par exemple, des lots de plusieurs dizaines de grammes de (Pu, Am)O₂ à des teneurs en américium comprises entre 20 et 80 % ont été produits par cette technique pour les expériences Futurix (voir *Phénix, un outil unique dans le domaine du combustible*, p.98).

Pour ce qui concerne l'optimisation du procédé, l'implication de tous les actinides nécessite des acquisitions expérimentales ciblées. La modélisation du procédé basé sur un couplage entre le génie chimique (appareillage et hydrodynamique) et la chimie de précipitation, est une étape incontournable. Actuellement, grâce aux expérimentations dans Atalante, au retour d'expérience du fonctionnement des appareils industriels et aux progrès des modèles numériques, un premier modèle complet de la précipitation oxalique a été finalisé. Les perspectives d'études du développement du procédé de co-conversion oxalique concerneront prochainement la chimie de la co-précipitation groupée des actinides, le génie des procédés, l'adaptation des traitements thermiques pour l'obtention de composés oxyde, carbure ou nitrure, et l'obtention des données pour les démonstrations de sûreté en vue d'une mise en œuvre industrielle.

Procédés pyrométallurgiques

Les qualités généralement attribuées aux sels d'halogénures fondus (attaque et dissolution de composés généralement réfractaires à l'acide nitrique, haute résistance à la radiolyse et faible pouvoir de modulation des **neutrons** permettant de travailler à la fois sur des combustibles très irradiants et fortement **enrichis**), confèrent potentiellement aux procédés pyrochimiques un caractère de compacité de mise en œuvre, offrant ainsi une alternative intéressante aux procédés hydrométallurgiques. Comme pour ces derniers, l'enjeu réside dans

métal	coefficient de distribution massique	coefficient de séparation S (Pu/M)
Pu	197 ± 30	1
Am	144 ± 20	1,4 ± 0,4
Ce	0,14 ± 0,01	1307 ± 308
Sm	0,06 ± 0,1	3177 ± 760
Eu	< 0,013	> 15000
La	< 0,06	> 3000

la séparation et la récupération quantitative intégrales des actinides du bain du sel en amont de la refabrication. Le procédé offrant le plus fort potentiel pour réaliser cette opération est l'extraction réductrice chimique par un métal fondu. Un des systèmes binaires d'intérêt pour cette séparation est le système aluminium-fluorures : LiF-AlF₃/Al-Cu (forte sélectivité pour l'extraction des actinides vis-à-vis des **produits de fission**, solubilité élevée des actinides dans l'aluminium...).

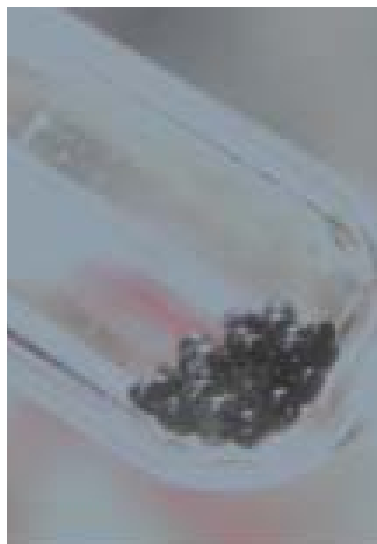
Des essais de séparation d'actinides ont été réalisés à 830 °C à partir d'un bain de sel LiF-AlF₃ (85/15) chargé en lanthanides (lanthane, cérium, samarium et europium) dans un rapport Pu/Ln de 3, par l'alliage métallique Al-Cu (78/22). Les coefficients de distribution (D massique) mesurés des différents éléments métalliques entre le sel et l'alliage métallique sont donnés dans le tableau ainsi que les facteurs de séparation actinides/lanthanides (SPu/M) obtenus après le contact et la mise en équilibre des phases (figure 8).

Ces résultats confirment l'excellente extraction des actinides du sel par l'aluminium et les potentialités de ce système binaire pour la séparation des actinides des lanthanides. Dans les conditions des essais, il suffirait pratiquement de deux ou trois contacts du sel avec l'aluminium pour atteindre des rendements d'extraction des actinides supérieurs à 99,9 %.

Pour finaliser la démonstration de la faisabilité de ce procédé, deux voies d'études sont menées en parallèle. La première concerne les essais d'extraction groupée des actinides à partir d'un sel riche en produits de fission. Pour cette démonstration, un contacteur *batch* sel fondu/métal liquide nucléarisé a été réalisé en vue de futurs essais dans Atalante. La seconde concerne les études hydrodynamiques de phases et le développement de contacteurs multi-étagés afin de disposer d'une technologie permettant d'une part le test en conditions réel-

Tableau. Premiers résultats des essais de séparation sélective des actinides mineurs des lanthanides d'un sel de fluorures par l'aluminium fondu. Le coefficient de distribution massique est la valeur du rapport entre la quantité d'un élément chimique par unité de masse de la phase solide et la concentration de l'élément en solution dans la phase liquide.

Figure 6. Co-conversion d'uranium et de plutonium dans un rapport 85/15 par gélification interne. Les deux vues illustrent l'obtention de microsphères d'oxyde mixte avant et après calcination à 900 °C sous argon et hydrogène.



(8) Complexation : formation, à partir des systèmes extractants et des espèces à extraire, d'un édifice (ou complexe) constitué par des ions et des molécules. Une molécule complexante est une espèce chimique capable de se lier à un ion métallique pour former un complexe.

(9) *Batch* : en matière de synthèse chimique, procédé fonctionnant par lots, par opposition à un traitement en continu.

les de schémas de séparation des actinides d'un bain de sel de dissolution de combustibles usés et, d'autre part, sa transposition dans des appareils à l'échelle industrielle.

Progressivité et flexibilité

Les stratégies de cycles des systèmes de quatrième génération restent à ce stade très ouvertes (**recyclage homogène** ou **hétérogène** de tout ou partie des actinides), comme d'ailleurs les options de conception des réacteurs ou des éléments combustibles. L'ensemble doit bien évidemment être étudié en cohérence. Pour le cycle, il faut en outre intégrer deux éléments et, tout d'abord, une notion de *progressivité*. Si ce que certains dénomment la "renaissance" de l'option nucléaire se confirme, avec un déploiement rapide de capacités dans diverses régions du monde, il paraît indiqué de tirer parti le plus tôt possible des potentialités de recyclage que peuvent offrir les "meilleures technologies disponibles" en déployant sans trop attendre les procédés de type COEX™. Ceux-ci recyclent intégralement et conjointement les actinides majeurs et répondent ainsi déjà aux critères d'économie des ressources et de résistance accrue à la prolifération. Les options plus avancées pourront être déployées ensuite, dans une démarche progressive allant – pourquoi pas? – jusqu'au **multirecyclage** intégral des actinides. Cette option, la plus aboutie à divers égards, est aussi la plus complexe: elle impose de repenser profondément les opérations de recyclage afin de chercher à maintenir la compétitivité économique du cycle du combustible. S'impose ensuite une notion de *flexibilité*: le parc de réacteurs dans le monde sera probablement dans le futur très diversifié, comme le seront les besoins en combustibles. Il ne s'agit donc peut-être pas seulement pour la R&D de s'attacher à définir un concept de cycle optimal et unique, mais peut-être aussi de mettre au point des procédés suffisamment robustes et flexibles pour s'adapter à des objets combustibles et à des stratégies de recyclage diverses.

Le CEA est aujourd'hui un acteur essentiel des recherches pour l'étude et le développement de ces nouvelles options de cycle pour les réacteurs de quatrième génération. Dans les laboratoires d'Atalante notamment, forts des acquis importants de ces quinze dernières années de recherches sur des procédés de recyclage avancés et des remarquables potentialités de l'installation, les chercheurs s'attacheront à étudier différents concepts, pour différents combustibles et au service de diverses stratégies de gestion, et ce, depuis les études conceptuelles jusqu'aux grandes expérimentations démonstratives.

> **Bernard Boullis*** et **Michaël Lecomte****
 Direction de l'énergie nucléaire
 CEA Centres de Saclay* et de Marcoule**



Figure 8.
 a) Vue du sel avant contact (couleur bleue caractéristique du Pu(III)).
 b) Du sel après contact (couleur marron caractéristique des lanthanides), après extraction des actinides.



Figure 7. Essais de co-conversion d'actinides à différents degrés d'oxydation réalisés dans Atalante.



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-

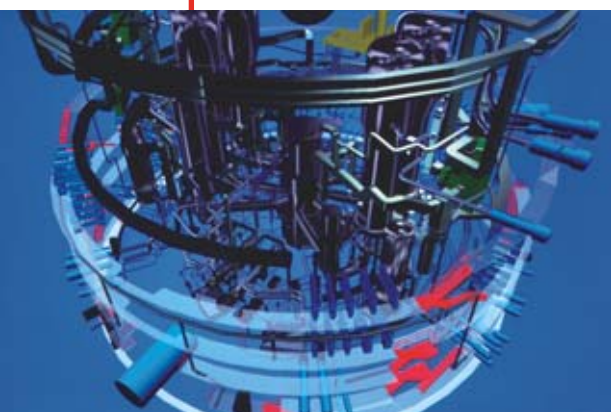
tent de réguler la population des neutrons et, par là même, en influant sur sa **réactivité**, de maintenir la puissance du réacteur au niveau désiré, voire d'arrêter la réaction en chaîne. Les barres, ensemble de tiges solidaires mobiles (appelées **grappes**) sont introduites plus ou moins profondément 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 T_1 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.

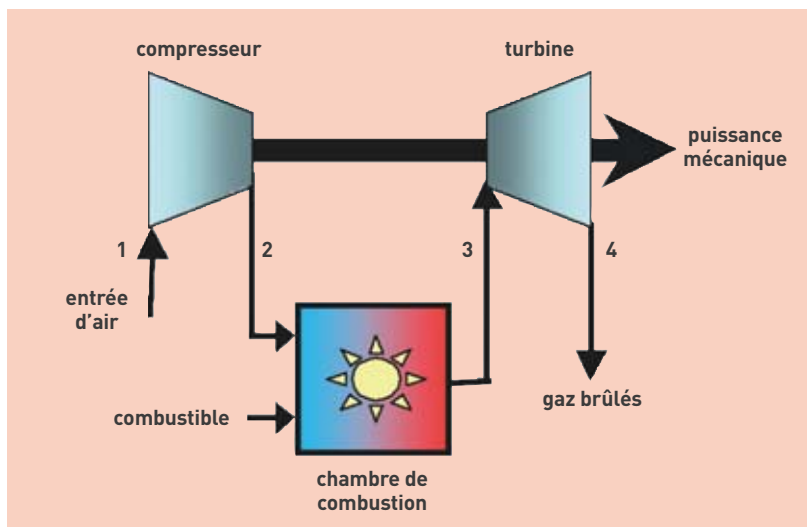


Figure. Cycle de Brayton utilisé pour une turbine à gaz à cycle ouvert.

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.

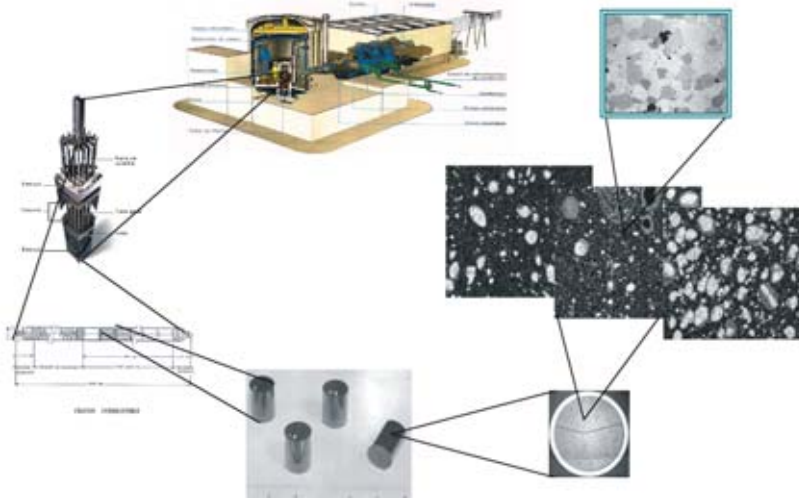


Figure.

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 **gaines** 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 $3 \cdot 10^{19} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$ 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 un *recuit* : ils deviennent martensitiques au saïssissement 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 **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.

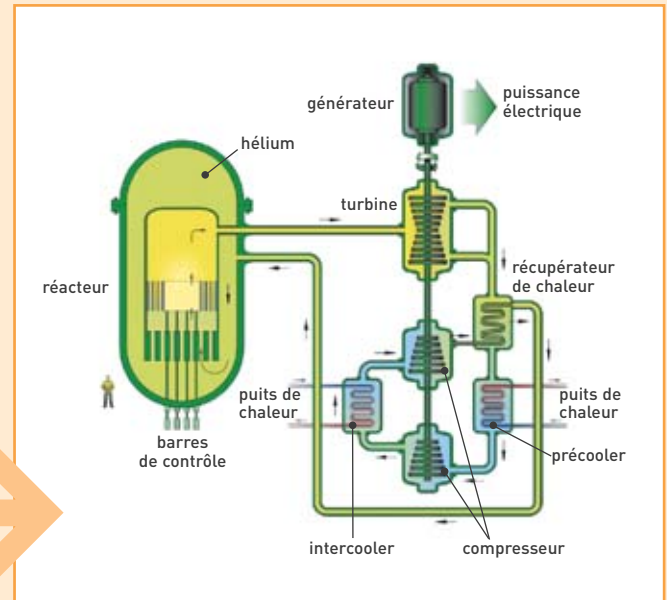
Les six concepts sélectionnés par le Forum GEN IV

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

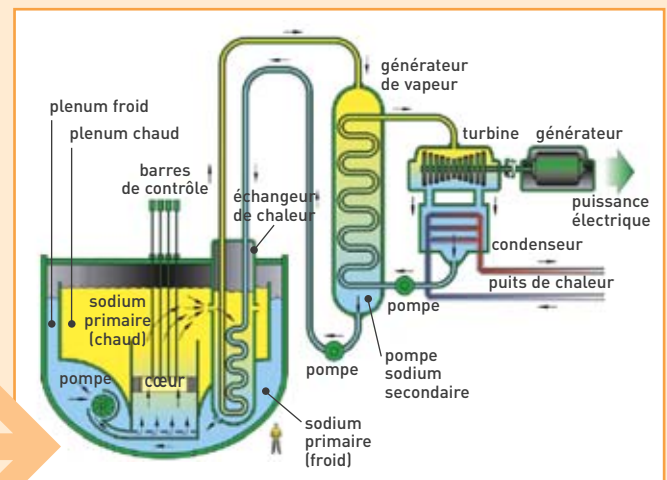
Le **GFR** (*Gas Fast Reactor*, en français **RNR-G**) est un **réacteur à haute température (RHT)** refroidi au gaz, généralement à l'hélium, à **neutrons rapides**, permettant le **recyclage homogène** ou **hétérogène** des **actinides** tout en conservant un gain de **régénération** supérieur à 1. 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⁽¹⁾, PBMR⁽²⁾ et VHTR.

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



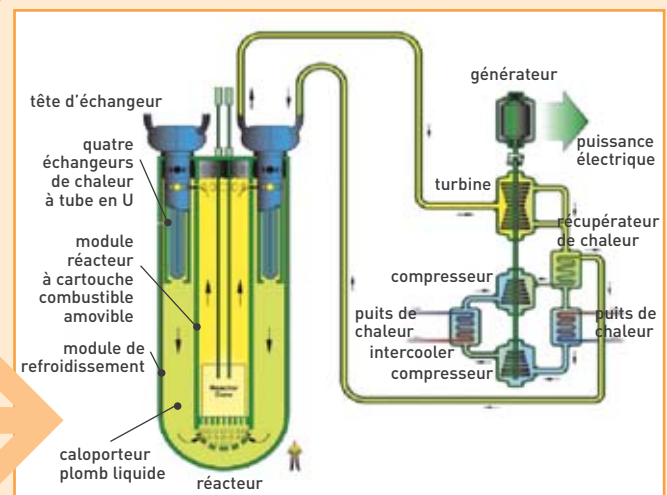
Le SFR

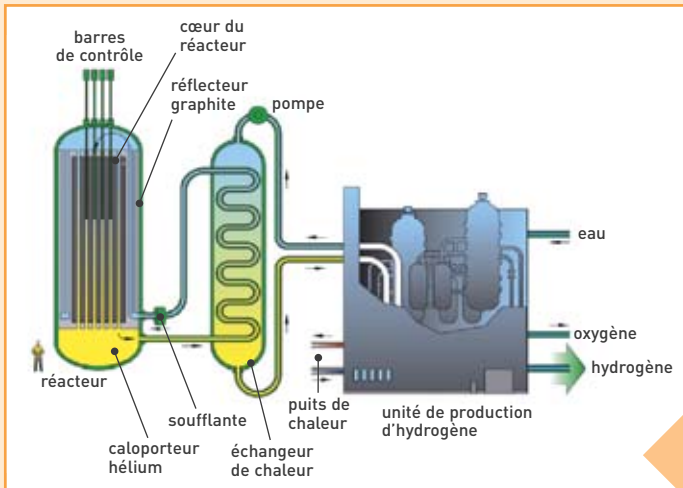
Le **SFR** (*Sodium Fast reactor*, en français **RNR-Na**) est un réacteur refroidi au **sodium** liquide, à neutrons rapides associé à un **cycle fermé** permettant le recyclage de l'ensemble des actinides et la régénération du plutonium. Du fait de la régénération de la matière fissile, ce type de 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

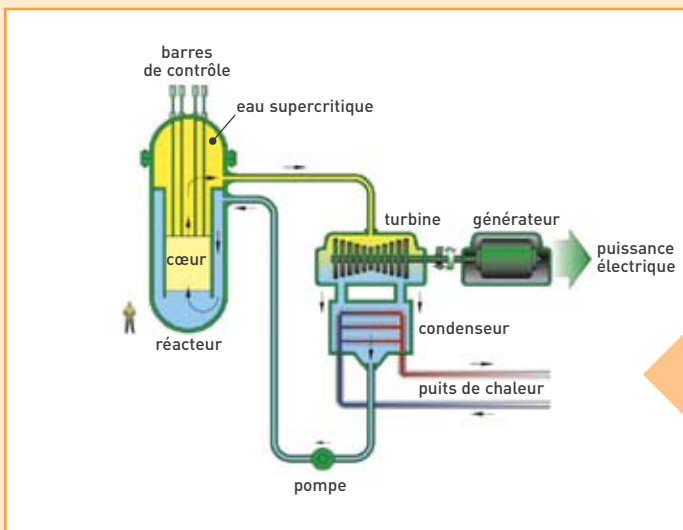
Le **LFR** (*Lead Fast Reactor*, en français **RNR-Pb**) est un réacteur refroidi au plomb (ou alliage au plomb plomb-bismuth), à neutrons rapides associé à un cycle fermé du combustible permettant une utilisation optimale de l'**uranium**. Plusieurs systèmes de référence ont été sélectionnés. Les puissances 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.





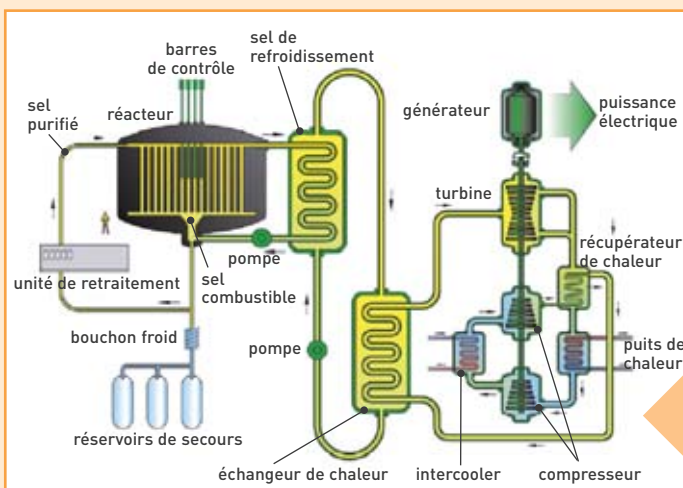
Le VHTR

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 **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.