Matériau composite, à base de fibres de carbure de silicium tressées, en cours de réalisation au CEA pour fabriquer de nouvelles gaines de combustibles.

DES MATÉRIAUX FAITS POUR DURER !

© P. Stroppa/CEA

LES MATÉRIAUX À L'ÉPREUVE DU NUCLÉAIRE

VIEILLISSEMENT SOUS SURVEILLANCE

DES NERFS D'ACIER POUR LES CENTRALES DU FUTUR

Fortes températures, irradiations, contraintes mécaniques, environnements corrosifs : les matériaux des centrales nucléaires sont soumis à des conditions extrêmes. Ainsi, la garantie de la sûreté, de la durée de vie et des performances des réacteurs actuels, tout comme la conception et la qualification de matériaux adaptés aux contraintes spécifiques des systèmes nucléaires du futur, constituent les principaux enjeux du CEA-DEN dans le domaine des matériaux du nucléaire. Pour cela, les chercheurs s'appuient sur un solide retour d'expériences, des compétences et des installations uniques au monde.

Dossier réalisé par Vahé ter Minassian

LES MATÉRIAUX À L'ÉPREUVE DU NUCLÉAIRE

Les matériaux ? Ils jouent un rôle essentiel dans le domaine du nucléaire. D'eux dépendent, en effet, la sûreté des centrales, leur durée de vie et même leurs performances ! À Saclay, les chercheurs de la direction de l'Énergie nucléaire (CEA-DEN) étudient, développent et qualifient une grande diversité de matériaux (alliages métalliques, matériaux composites, oxydes…) utilisés dans les réacteurs actuels et futurs, grâce à des équipements uniques au monde.

Gaines enfermant le combustible, structures internes les maintenant en place et cuve du réacteur n'ont aucun secret pour les équipes du CEA-DEN dont la tâche va bien au-delà d'un classique travail de développement industriel. En effet, explique Pascal Yvon, chef du DMN[1] du CEA-DEN : *« un cœur de réacteur n'est pas une installation comme les autres. En son sein, les pièces ne subissent pas seulement des sollicitations mécaniques, thermiques et chimiques comme dans une unité industrielle conventionnelle ; elles sont également irradiées par les neutrons qu'émet le combustible lors de la réaction de fission. Et ces neutrons agissent sur les matériaux en modifiant leur composition et leur structure interne. Ils sont ainsi susceptibles de conduire à des déformations des composants du cœur ou de les rendre moins résistants aux chocs et à la corrosion. En tous les cas, ils peuvent profondément changer leurs propriétés ! »*

Prévoir le comportement des alliages

D'où l'objectif ambitieux du CEA-DEN d'élaborer une science à même de prévoir le comportement des alliages métalliques soumis à un tel environnement. Et cela, sur des durées pouvant aller jusqu'à plusieurs dizaines d'années concernant les aciers des cuves (un composant

DES PLATEFORMES EXPÉRIMENTALES ET DES LABORATOIRES CHAUDS UNIQUES AU MONDE

Le CEA-DEN dispose d'un ensemble d'installations de recherche constamment renouvelées pour les maintenir au meilleur niveau expérimental.
Dans le domaine de l'étude du comportement des matériaux, la plateforme JANNuS[1] permet d'irradier des matériaux par des flux de particules chargées produites par ses accélérateurs. Le dommage balistique et la création d'hélium et d'hydrogène y sont ainsi reproduits simultanément. De même, le laboratoire chaud LECI[2] reçoit directement des échantillons de structures métalliques irradiées[3] en provenance des réacteurs industriels ou de recherche (comme le réacteur Osiris) pour les tester et les expertiser. Et ce, grâce à des **cellules chaudes**• dont les dernières ont été mises en service en 2005.
Dans le cadre des études sur les réacteurs de 4e génération, particulièrement le projet de démonstrateur technologique Astrid, deux installations dédiées, CORRONa et CORRONa[2,4] permettent de réaliser des essais d'exposition de matériaux à du sodium liquide, aux températures, vitesses de fluide et chimie du sodium représentatives et strictement contrôlées.

Manipulation en téléopération dans les cellules chaudes de la ligne M du LECI.

• **Cellules chaudes :** enceintes conçues pour manipuler les matériaux irradiés en toute sûreté, grâce à des bras robotisés et à la protection de parois en plomb et de hublots en verre de plomb de 70 à 80 cm d'épaisseur.

Notes :

1. *Mise en service en 2009 au DMN sur le centre de Saclay et au Centre de spectrométrie nucléaire et de spectrométrie de masse UMR (CEA/CNRS/Université Paris-Sud).*

2. *En service depuis 1959 sur le centre de Saclay.*

3. *Les gaines des crayons passent d'abord au Laboratoire Atalante du CEA à Marcoule pour être séparées du combustible.*

4. *Conçues par le CEA en 2011 puis 2013.*

Éprouvettes servant à l'évaluation du comportement mécanique d'un tube en acier.

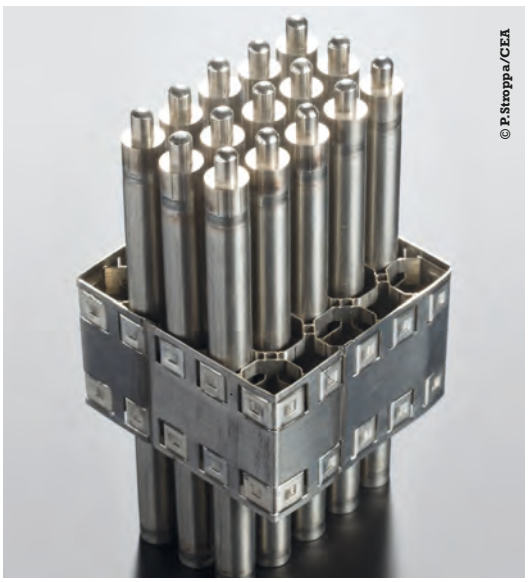
impossible à remplacer une fois installé). Mener à bien ce projet dont dépendent la sûreté et l'exploitation des centrales nécessite de procéder par étapes. Cela suppose, dans un premier temps, d'acquérir une bonne connaissance des caractéristiques des matériaux employés en termes de microstructure, de résistance, de **ductilité**• et de corrosion. Il s'agit ensuite d'identifier les modifications qu'induisent les neutrons sur ces aciers, alliages de zirconium et autres composites, grâce à des tests réalisés sur de grands outils expérimentaux qui simulent leur vieillissement sous irradiation. En effet, les neutrons changent la composition chimique (transmutation ou création d'hélium et d'hydrogène par réactions nucléaires) ou, par « effet balistique », éjectent certains atomes de leurs emplacements, créant un brassage important d'atomes. Enfin, il faut également pouvoir modéliser l'ensemble de ces phénomènes, de l'échelle atomique jusqu'à l'évaluation de leurs effets sur une installation.

Au cœur des réacteurs actuels…

Deux missions orientent l'action du CEA-DEN en la matière. La première se manifeste par un soutien au parc de réacteurs actuels à la demande d'industriels, par exemple dans le cadre de l'élaboration des dossiers réglementaires qu'EDF doit constituer auprès de l'ASN[2] tous les dix ans pour prolonger la durée de fonctionnement des centrales. Il peut s'agir de réaliser des études sur le vieillissement des aciers des cuves en partie courante ou sur des endroits particuliers (soudures, zones affectées thermiquement…) ; ou de rassembler des données afin d'aboutir à une meilleure planification de certaines opérations de maintenance particulièrement lourdes à mettre en œuvre, comme le changement à intervalles réguliers des vis de cloisonnement du cœur. *« Autre exemple, en ce qui concerne les gaines de combustible, première* **barrière de confinement**• *d'un réacteur, l'objectif est d'augmenter leur durée d'utilisation en fonctionnement normal et d'améliorer leur sûreté dans l'éventualité d'une situation accidentelle, notamment en cas de perte de réfrigérant faisant suite à une rupture du circuit primaire du réacteur »*, explique Pascal Yvon.

…Et de ceux de demain

Tournée vers l'avenir, la seconde mission du CEA-DEN est de mener les recherches sur les systèmes nucléaires de 4e génération. Ses efforts se concentrent sur deux filières de réacteurs, toutes deux dites à neutrons rapides (RNR) : une filière refroidie au sodium (RNR-Na) ; l'autre refroidie au gaz (RNR-G), dans une option à plus long terme. Or, les conditions régnant dans le cœur de ce type d'installations sont très différentes de celles des réacteurs à eau sous pression (REP) du parc actuel. Plus fortes températures, fluides de refroidissement aux propriétés chimiques distinctes, neutrons de différentes énergies. C'est, au bout du compte, à diverses problématiques que sont confrontés les scientifiques du DMN et du DPC[3], lesquels bénéficient de l'expérience acquise sur les RNR ayant déjà fonctionné dans le monde (près de 400 « années/réacteur », dont 100 en opérations industrielles). Les équipes travaillent, d'une part, à évaluer plus précisément la tenue et le vieillissement des matériaux de structure. Et ce, dans l'objectif de pouvoir justifier une durée de fonctionnement de 60 ans pour ces installations futures. D'autre part, elles s'efforcent de mettre au point de nouvelles gaines de combustible adaptées, en attendant de les tester sur le projet de démonstrateur technologique de RNR-Na Astrid, actuellement en phase d'étude et dont le CEA-DEN est maître d'ouvrage. Pour répondre à ces enjeux, il s'agit de qualifier les matériaux sur des plateformes expérimentales instrumentées dédiées et de développer une modélisation prédictive de leur comportement. Un travail de longue haleine mais une condition *sine qua non* de la réussite dans ces missions. ●



Portion d'assemblage combustible.

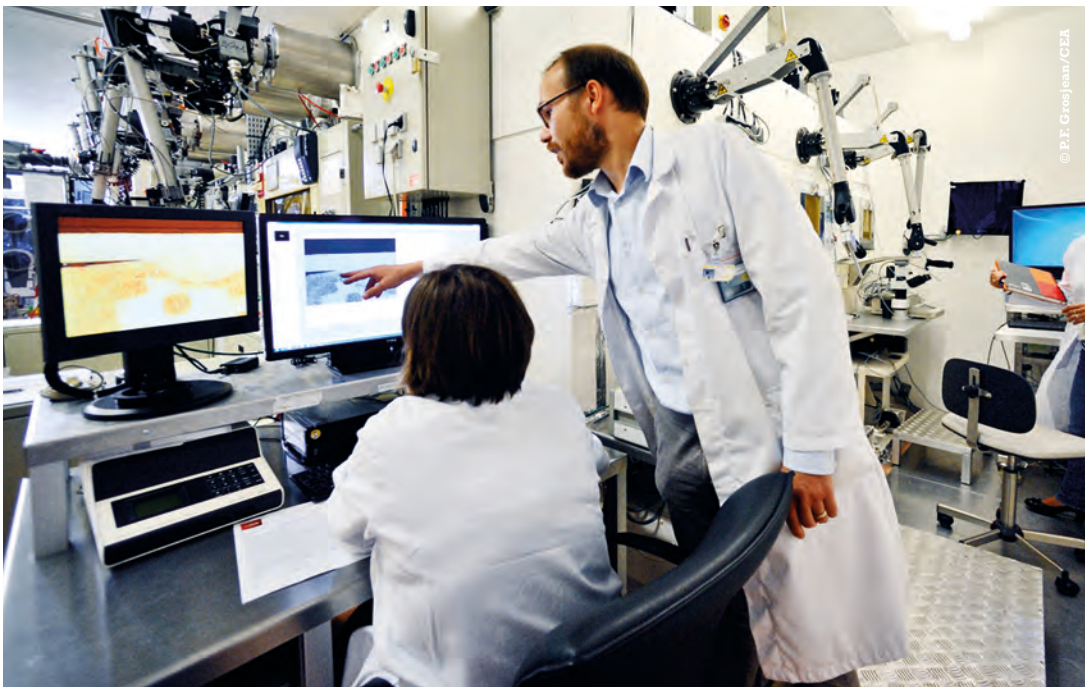
• **Ductilité :** capacité d'un matériau à se déformer plastiquement avant rupture.

• **Barrière de confinement :** la radioactivité d'un réacteur nucléaire est confinée par trois barrières physiques : la gaine du combustible, l'enveloppe du circuit primaire (circuit de refroidissement primaire et cuve) et l'enceinte de confinement (bâtiment en béton entourant tous les éléments du réacteur).

Notes :

1. *Département des Matériaux pour le nucléaire.*
2. *Autorité de sûreté nucléaire.*
3. *Département de Physico-chimie.*

Analyses métallographiques de matériaux irradiés en ligne Isidore du LECI.



VIEILLISSEMENT SOUS SURVEILLANCE

S'assurer du bon vieillissement des matériaux composant les parties inamovibles des réacteurs et améliorer la sûreté et la performance des autres, comme les gaines de combustible : tel est l'objectif des recherches du CEA-DEN dans le domaine des centrales de seconde génération qui composent le parc actuel d'EDF.

« Le cœur d'une installation nucléaire est un ensemble hétérogène d'équipements dont chacun constitue un sujet d'études pour les spécialistes des matériaux » rappelle Benoît Tanguy, chef de projet au DMN[1] du CEA-DEN. On y trouve, d'abord, les gaines, ces longs tubes fermés en leurs extrémités où sont insérées les pastilles de combustible. *« Elles sont faites en alliage de* ***zirconium*** • *»*. Puis viennent les « structures internes », ces pièces métalliques, cloisons, renforts et autres vis qui servent à les maintenir. *« Ceux-là sont en* ***acier inoxydable austénitique*** • *»*. Enfin, il y a la cuve du réacteur, de 330 à 450 tonnes selon le palier : *« elle est élaborée dans un* ***acier ferritique faiblement allié*** • *mais est protégée de la corrosion sur sa face interne par un revêtement en acier inoxydable austénitique »*. De ces trois constituants du cœur, seuls les assemblages combustibles sont régulièrement changés par EDF, lorsque le combustible usé est retiré pour être remplacé par du neuf. Structures internes et cuves, installées dès la construction du bâtiment sont elles, excepté le cas de quelques vis, conçues pour rester à demeure. Certaines sont en place dans les premiers REP 900 MWe depuis 37 ans !

Accélérer le vieillissement des matériaux pour mieux le modéliser

Mais sont-elles en état de supporter une éventuelle prolongation de la durée d'exploitation des centrales ? L'une des missions du DMN est d'apporter les éléments scientifiques permettant de répondre à cette question. Tous les dix ans, chaque réacteur fait l'objet du dépôt d'un dossier auprès de l'ASN pour justifier qu'il pourra fonctionner la décennie suivante. *« Le CEA intervient alors pour donner aux exploitants les éléments techniques nécessaires concernant la cuve et les internes »*. Le principe est d'acquérir des données matériaux sur le vieillissement de ces pièces, par exemple par des irradiations expérimentales permettant d'évaluer leurs propriétés au bout de cinquante ans. À la demande d'EDF, les équipes ont commencé à rassembler des données pour l'échéance suivante : celle des soixante

• **Zirconium :** métal très transparent aux neutrons thermiques avec une bonne résistance à l'oxydation en présence d'eau.

• **Acier inoxydable austénitique :** famille d'acier contenant du chrome 18 % (élément qui améliore la résistance à la corrosion) et du nickel (8 à 10 %), présentant une grande aptitude à la déformation et une très bonne résistance à la corrosion.

• **Acier ferritique faiblement allié :** famille d'acier à faible teneur en carbone (inférieur à 0,1 %), comportant 11 à 14 % de chrome et pas de nickel, qui dispose d'une bonne résistance à la corrosion et à l'oxydation haute température.

ans ! Il s'agit ensuite de vérifier que les propriétés des matériaux des cuves n'évoluent pas au point de remettre en cause l'intégrité de ces dernières en cas d'accident. *« Nous devons produire des modèles décrivant comment les propriétés des aciers irradiés vont évoluer au cours de ces 60 ans »* Comment ? Par l'expérience ! Afin de reproduire les sollicitations que le matériau subit à l'intérieur d'un cœur, les chercheurs le vieillissent de manière accélérée en le soumettant, dans le réacteur Osiris à Saclay, à un flux de neutrons dix à vingt fois supérieur à celui qu'il subit en réalité. Puis, au sein du LECI (*voir encadré page 29*), ils caractérisent les propriétés mécaniques et les microstructures de ces échantillons. *« À cela s'ajoute toute une batterie de tests conduits sur des métaux non-irradiés par des neutrons. Ils peuvent être réalisés sur l'installation JANNuS, du DMN ou en collaboration avec des collègues d'autres départements du CEA-DEN*[2]*. Le but étant de résoudre un problème particulier comme la tenue mécanique des aciers ou leur résistance à la corrosion. »*

Anticiper l'usure normale des matériaux

Au-delà de sa contribution aux dossiers réglementaires des exploitants de centrales, le DMN mène d'autres études. Il peut s'agir de vérifier que le vieillissement d'échantillons dans des réacteurs expérimentaux est représentatif de ce qui se passera à long terme en réacteur REP. Ou, plus prosaïquement, de fournir des données qui faciliteront le remplacement des vis des internes qui peuvent céder sous la combinaison des sollicitations mécaniques, corrosion et fragilisation par les neutrons. D'où des campagnes périodiques lancées par EDF pour en remplacer certaines ; et d'autres recherches pour mieux comprendre le phénomène et anticiper le moment de leur rupture. Enfin, le DMN s'intéresse également à la problématique du gonflement. *« Il nous faut regarder si des irradiations pendant plus de 40 ans entraînent un gonflement des internes de REP, comme cela se produit dans les réacteurs à neutrons rapides (RNR), et trouver, le cas échéant, le moyen de limiter ce phénomène. »*

Étudier leur comportement en cas d'accident

Quant aux recherches sur les gaines, elles visent l'amélioration des performances et de la manœuvrabilité des réacteurs. Elles portent également sur leur comportement en cas d'accident pour des raisons évidentes de sûreté. *« L'un des objectifs est de trouver des solutions pour limiter les dégâts occasionnés au réacteur par la perte du réfrigérant suite à la formation d'une brèche dans le circuit primaire »*, explique Jean-Christophe Brachet, expert international au CEA-DEN, en illustrant par l'accident nucléaire de Fukushima Daï-ichi lors duquel les gaines n'ont pas résisté à l'élévation en quelques minutes de la température du cœur jusqu'à 1 000 °C. *« Les gaines voient leur pression interne augmenter brusquement. Elles peuvent alors éclater puis, si les systèmes de refroidissement sont inopérants (ce qui fut malheureusement le cas à Fukushima), se fragmenter en formant avec le combustible qu'elles renferment un magma radioactif très difficile à refroidir : le corium. Par ailleurs, l'alliage en zirconium dont elles sont faites s'oxyde, libérant de l'hydrogène qui favorise le risque d'explosion. D'où l'idée de faire en sorte que les gaines puissent maintenir leur intégrité durant quelques heures à quelques dizaines d'heures supplémentaires et, pour cela, qu'elles s'oxydent le moins vite possible »* détaille l'expert. Deux types de solutions ayant conduit à des dépôts de brevet font ainsi l'objet d'un examen de la part du CEA-DEN. La première consiste à déposer, sur les gaines actuelles en alliage de zirconium, un revêtement à base de chrome à même de diviser par dix à vingt leur vitesse d'oxydation dans un tel environnement. La seconde, davantage en rupture technologique et donc à une échéance à plus long terme, vise à fabriquer de nouvelles gaines en ayant recours à un matériau conçu à l'origine pour les réacteurs de la quatrième génération : un matériau composite, à base de fibres de carbure de silicium tressées, présentant une couche intercalaire métallique pour assurer l'étanchéité. ●

Essai de rupture de gaine par corrosion sous contrainte induite par l'iode (en haut) et essai d'éclatement, réalisés dans les cellules chaudes du LECI.

Notes :

1. *Département des Matériaux pour le nucléaire.*

2. *Département de Physicochimie (DPC) et département de Modélisation des systèmes et structures (DM2S).*

Opération de tressage sur mandrin pour la fabrication d'une gaine en matériau composite.

DES NERFS D'ACIER POUR LES CENTRALES DU FUTUR

Développer les matériaux des réacteurs du futur à neutrons rapides est l'autre enjeu des chercheurs du CEA-DEN qui bénéficient déjà d'un retour d'expériences[1]. Il s'agit dès lors de concevoir les matériaux qui opéreront en toute sûreté et performance, notamment ceux confinant les combustibles ou ceux en regard du fluide caloporteur sodium. Les aciers ODS apparaissent d'excellents candidats.

Filage à chaud de gaines en acier ODS sur la chaîne de fabrication du CEA-DEN à Saclay.

Les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium (RNR-Na) constituent la filière de référence des réacteurs à neutrons rapides de 4e génération. Dans ce cadre, le CEA-DEN est maître d'ouvrage d'un projet de démonstrateur technologique appelé Astrid, actuellement en phase de conception. Or, soulignent Jean-Luc Béchade et Yann de Carlan, chef de laboratoire et responsable d'études sur les aciers hautes performances au CEA-DEN : *« la mise en place de cette nouvelle filière, en intégrant les critères de la 4e génération, est un défi pour la science des matériaux »*. Fluide caloporteur aux propriétés chimiques différentes (du sodium liquide à la place de l'eau des REP du parc actuel), températures du cœur élevées (400 à 650 °C, contre 325 °C), neutrons plus énergétiques. Dans les futurs réacteurs, les matériaux seront soumis à des sollicitations plus sévères que celles auxquelles ils sont confrontés dans les installations actuelles. À tel point que, le plus souvent, de nouveaux matériaux doivent être utilisés ! Ceci motive les recherches « amont » conduites par les équipes du CEA-DEN en vue d'identifier de nouveaux métaux et céramiques, ainsi que les travaux menés dans le but de les qualifier sur des plateformes expérimentales dédiées à cette intention.

De nouveaux alliages encore plus résistants

Un exemple ? Les gaines renfermant les pastilles de combustible ! Dans les REP, elles sont faites en alliage de zirconium. Dans les premiers assemblages du cœur d'Astrid, elles seront en acier austénitique. Sauf que, expliquent Jean-Luc Bechade et Yann de Carlan : *« les*

Études de corrosion de matériaux en milieu sodium sur la plateforme CORRONa2 du CEA-DEN à Saclay.

neutrons rapides produits par les RNR-Na peuvent créer des cavités dans ces alliages, lesquels finissent par "gonfler", c'est-à-dire augmenter en volume ». Résultat : les gaines en acier austénitique d'Astrid devront être changées tous les « 100/120 **dpa**• » alors que le combustible à l'intérieur de ces gaines ne sera pas complètement épuisé. Partant de ce constat, les chercheurs se sont lancés en 2007 dans le développement de la filière d'un nouveau matériau capable de mieux résister aux effets cumulés de l'irradiation et de la forte température : celle des aciers ODS[2]. Conçue dans les années 1960, cette famille d'alliage base fer, carbone, chrome et autres éléments minoritaires, supporte mieux ce type de sollicitations grâce aux nanoparticules d'oxyde d'yttrium qui y sont dispersées. Aujourd'hui, il s'agit non seulement d'identifier la **nuance**• de référence pour les études mais aussi d'évaluer certaines de ses caractéristiques sur l'installation JANNuS (*voir page 29*). Une étape indispensable avant de pouvoir passer à la phase suivante : la mise au point d'un procédé de fabrication transférable à un industriel et la qualification du matériau sous irradiation par des neutrons. Alors les aciers ODS pourront prendre la relève des aciers austénitiques.

Fabriqué, assemblé et testé au CEA

Pour atteindre ces objectifs, le CEA-DEN s'est équipé d'une chaîne de fabrication de ces aciers ODS, en tout point semblable à celle que l'on trouverait dans une vraie installation de « métallurgie des poudres ». Mécanosynthèse par broyage des poudres dans un **attriteur**•, consolidation à 1 100 °C par « extrusion à chaud » ou par « compaction isostatique », forage des tubes et transformation à chaud et à froid, permettent à ces chercheurs de produire, chaque année, une dizaine de ces gaines. Des gaines à qui on demandera d'être 1,5 fois plus résistantes à l'irradiation par les neutrons rapides que celles en acier austénitique ! La microstructure de ces nouveaux matériaux étant spécifique[3], des outils d'analyse de très haute technologie doivent être utilisés pour les caractériser. Ainsi le CEA-DEN a contribué au développement de la ligne de lumière MARS[4] du Synchrotron Soleil pour des caractérisations fines avant mais surtout après irradiation. Il s'agit de vérifier que les nano-oxydes restent stables après passage en réacteur et qu'ils permettent toujours, même sous fort flux de neutrons, de renforcer le matériau. Les expériences en cours sont d'ailleurs très concluantes. Enfin, comme ces matériaux ne peuvent être soudés par des moyens classiques[5], de nouvelles techniques d'assemblage par soudage résistance ou par soudage friction ont été développées par les chercheurs[6].

La corrosion à l'étude

Au-delà des contraintes d'irradiations et de fortes températures, les matériaux des RNR-Na devront aussi résister à la corrosion. Certes, au regard de l'eau utilisée de nos jours comme fluide caloporteur des REP, le sodium liquide s'avère un fluide moins agressif. *« À ceci près qu'en pratique, il contient toujours des impuretés, du carbone ou de l'oxygène dissous qui peuvent, suite à des phénomènes d'oxydation et de carburation, dégrader les surfaces des équipements du cœur et au bout du compte avoir une incidence sur la durée de fonctionnement de l'installation »*, expliquent Fabrice Legendre et Raphael Robin, chef de service et chef de laboratoire au CEA-DEN. Les scientifiques voudraient qualifier les matériaux face à ce risque, déterminer les produits issus de leur corrosion afin de dimensionner au mieux les « pièges à froid » qui seront chargés dans les futurs réacteurs de purifier le sodium liquide. Deux plateformes de R&D ont été construites dans ce but à Saclay, les boucles « CORRONa », constituées de séries de boîtes à gants, maintenues sous une atmosphère inerte d'argon, couplées à des « pots » contenant plusieurs litres de sodium liquide chauffés jusqu'à 650 °C. En exposant, durant quelques milliers d'heures, des échantillons dans ce fluide chaud et en les caractérisant finement avec des outils optiques adaptés, l'équipe réalise toutes sortes d'expériences statiques, hydrodynamiques ou **tribologiques**•. Utilisés dans des modèles ou pour les affiner, ces résultats permettent de prédire le « vieillissement » de ces alliages par la corrosion sur plusieurs dizaines d'années et asseoir le dimensionnement des composants en conséquence. Une dizaine de nuances de métaux, soit des centaines d'échantillons, a ainsi été déjà testée. Un matériau, l'acier 316 LN, est d'ailleurs retenu comme « matériau de référence » pour les cuves et internes des futurs réacteurs à caloporteur sodium de la 4e génération. ●

• **dpa, *déplacement par atome* :** unité utilisée pour quantifier le dommage d'irradiation.

• **Nuance :** terme désignant la proposition des différents métaux composant un type d'acier.

• **Attriteur :** appareil dans lequel le broyage de la matière est réalisé par écrasement des particules entre des billes mises en mouvement.

• **Tribologie :** science qui étudie les phénomènes de frottement susceptibles de se produire entre deux systèmes matériels en contact, immobiles ou animés de mouvements relatifs.

Notes :

1. *Voir article 1.*

2. Oxyde Dispersion Strengthened.

3. *La déformation à haute température est plus faible et la recombinaison des défauts d'irradiation plus importante.*

4. *Ligne conçue et financée en partie par le CEA.*

5. *Le passage des matériaux à l'état liquide, lors du soudage, « effaceraient » leur nanostructure.*

6. *Ces techniques, développées et mises en œuvre au DM2S, permettent de souder ces aciers à l'état solide.*