

les

defis

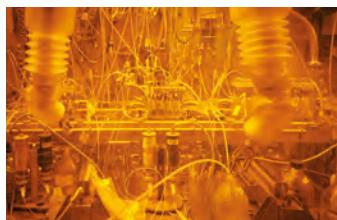
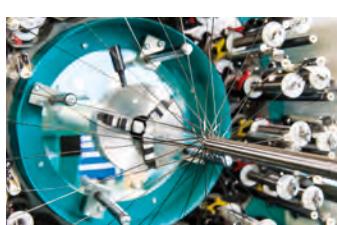
du cea

Le magazine de la recherche et de ses applications

HORS-SÉRIE

Juin 2016

**INNOVER
POUR UN NUCLÉAIRE
DURABLE**

**03 AVANT-PROPOS****R&D et innovation pour le nucléaire actuel et futur****04 NUCLÉAIRE DU FUTUR****Astrid, une option pour la quatrième génération****INFOGRAPHIE: Le RNR-Na****14 CYCLE DU COMBUSTIBLE****Le combustible nucléaire fait des tours****INFOGRAPHIE: Les procédés du cycle fermé****24 COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE****Moisson d'innovations pour le combustible nucléaire****INFOGRAPHIE: Le combustible du nucléaire****34 MATERIAUX DU NUCLÉAIRE****Des matériaux faits pour durer****42 MOYENS DE R&D****Une recherche bien outillée****INFOGRAPHIE: Le RJH****50 ASSAINISSEMENT - DÉMANTÈLEMENT****Héritage du passé, perspectives d'avenir****INFOGRAPHIE: Le démantèlement nucléaire** **ABONNEMENT GRATUIT**

Vous pouvez vous abonner sur:

www.cea.fr/le_cea/publications, ou en faisant parvenir par courrier vos nom, prénom, adresse et profession à *Les Défis du CEA* – Abonnements. CEA. Bâtiment Siège. 91191 Gif-sur-Yvette.

Éditeur Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, R. C. S. Paris B77568019 | **Directeur de la publication** Xavier Clément | **Rédactrice en chef** Aude Ganier | **Rédactrice** Amélie Loret | **Contributeurs** Patrick Phillipon et Vahé Ter Minassian | **Comité éditorial** Alexandra Bender, Coralie Godfroid et Brigitte Raffray | **Iconographie** Micheline Bayard | **Infographies** Fabrice Mathé et David Torondel | **Photo de couverture CEA** | **Conception et réalisation** www.rougevif.fr | N°ISSN 1163-619X | Tous droits de reproduction réservés. **Ce magazine est imprimé sur du papier PEFC BVS, issu de forêts gérées durablement. Imprimerie Abelia.**



R&D ET INNOVATION POUR LE NUCLÉAIRE ACTUEL ET FUTUR

Avec un parc de 58 réacteurs produisant plus de 75 % de l'électricité française, l'industrie électronucléaire fournit à la France un avantage compétitif significatif. Elle lui vaut d'être parmi les pays européens les moins émetteurs de CO₂ par kilowatt heure produit. De même, cette industrie émet une pollution atmosphérique très faible.

Dans ce contexte, la Direction de l'énergie nucléaire (DEN) du CEA apporte aux pouvoirs publics et aux industriels les éléments d'expertise et d'innovation sur les systèmes de production d'énergie nucléaire : il s'agit de développer un nucléaire durable, sûr et économiquement compétitif, dans un environnement exigeant, avec des contraintes réglementaires et budgétaires croissantes. Pour répondre à cet enjeu, la DEN intervient sur plusieurs échelles de temps.

D'une part, elle apporte un soutien à l'industrie nucléaire, aussi bien dans le domaine des réacteurs que du cycle du combustible. Cela concerne principalement EDF et AREVA, mais aussi d'autres partenaires, y compris à l'international, auxquels la DEN propose expertise et programmes de R&D en soutien à leur parc d'installations nucléaires actuelles et en construction.

D'autre part, la DEN travaille pour le plus long terme, avec ses partenaires industriels, sur les futures générations de réacteurs nucléaires et les cycles du combustible associés. Ainsi, la DEN accompagne EDF dans l'optimisation des réacteurs à eau sous pression comme l'EPR et dans la réflexion sur les petits réacteurs modulaires (SMR pour *Small Modular Reactors*). Elle étudie également les

réacteurs de 4^e génération, et en particulier les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Elle pilote ainsi les études de conception d'un démonstrateur technologique appelé Astrid, tout en poursuivant veille et R&D sur l'ensemble des autres concepts intéressants cette future génération.

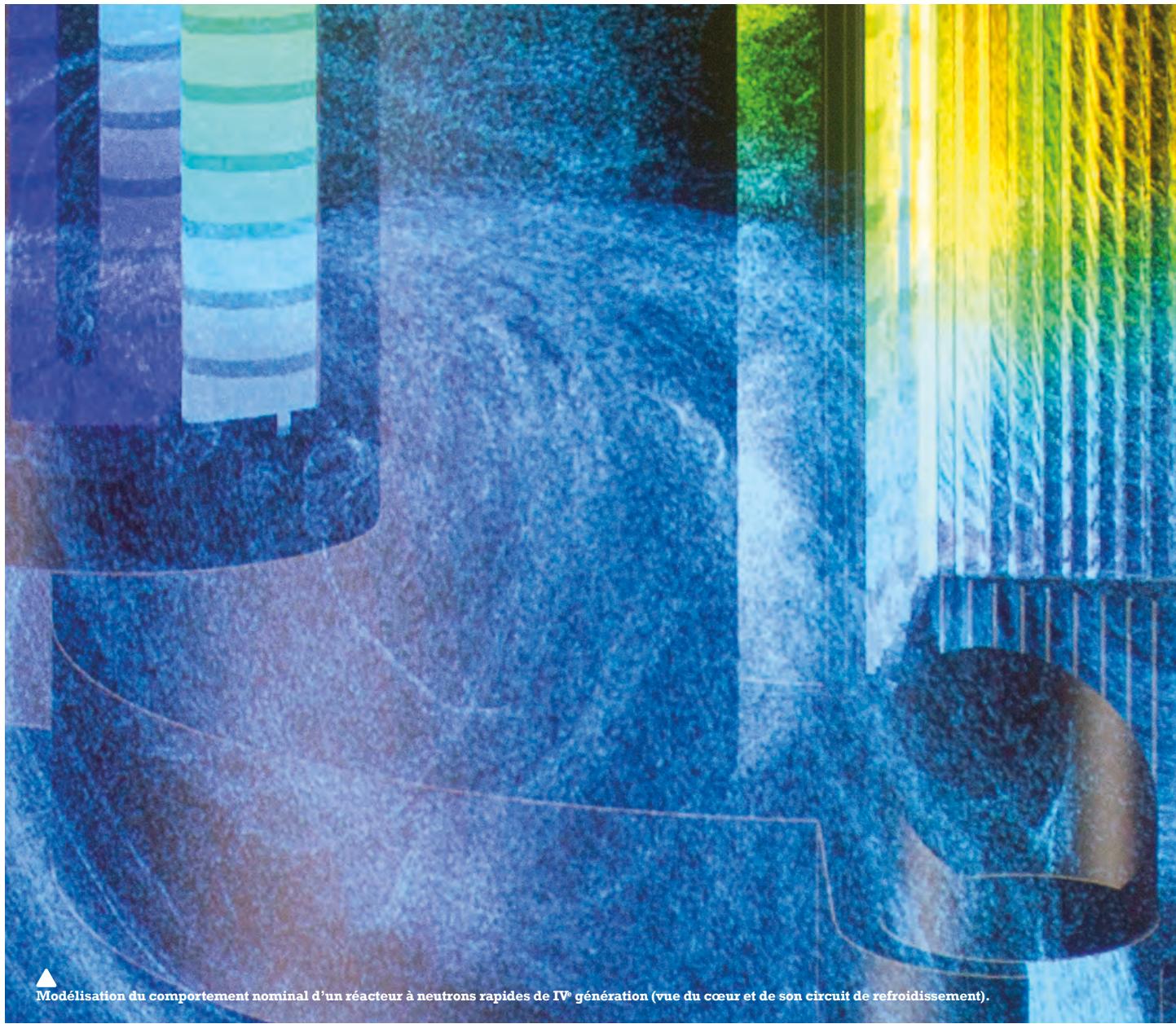
Ces missions couvrent une large gamme de programmes de R&D, par exemple dans le domaine des combustibles, de leur recyclage, des matériaux... Ils nécessitent aussi des outils expérimentaux et de simulation numérique. Ainsi, la DEN est aujourd'hui maître d'ouvrage du réacteur expérimental RJH, actuellement en construction à Cadarache.

Les opérations d'assainissement-démantèlement et la R&D associée constituent un autre volet important de l'activité de la DEN. Historiquement, le CEA a exploité un grand nombre d'installations nucléaires et est, en tant qu'exploitant nucléaire, responsable de l'assainissement de du démantèlement de celles qui sont ou vont être arrêtées.

Les grands enjeux et programmes du CEA dans le domaine de l'énergie nucléaire civile vous sont décrits plus en détail dans les différents dossiers qui constituent ce numéro hors-série.



ASTRID, UNE OPTION POUR LA QUATRIÈME GÉNÉRATION





Assurer l'indépendance énergétique et la sécurité d'approvisionnement, améliorer les standards de sûreté, optimiser durablement la gestion des matières et minimiser la production des déchets. Le tout, sans émettre de gaz à effet de serre. Voici le cahier des charges du nucléaire du futur fixé par le Forum international génération IV.

La conception du démonstrateur technologique de réacteur à neutrons rapides Astrid, prévue par la loi du 28 juin 2006 sur la gestion durable des matières et des déchets radioactifs, est confiée au CEA et financée dans le cadre des investissements d'avenir votés par le Parlement en 2010.

Dossier réalisé par Vahé Ter Minassian



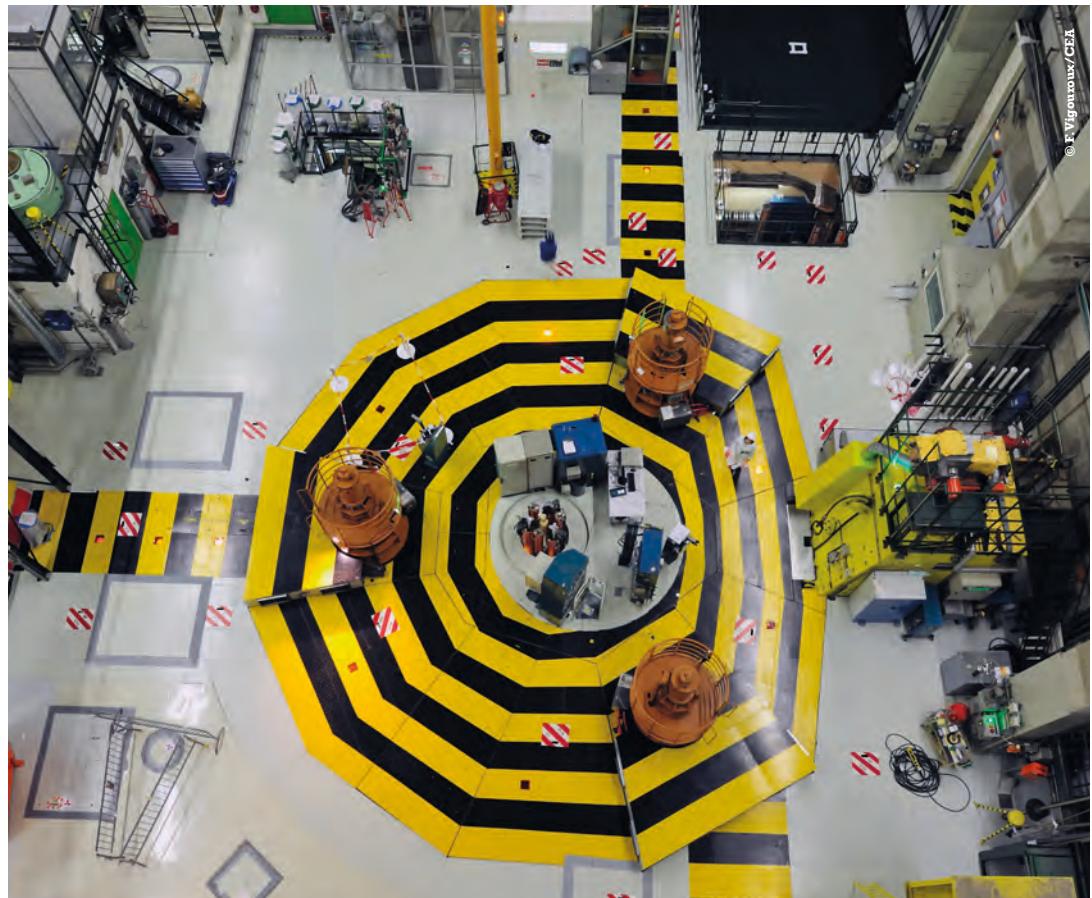
**PRÉPARER L'AVENIR
DU NUCLÉAIRE**

**OPTIMISER DURABLEMENT
LES RESSOURCES**

**DÉFINIR DES OPTIONS
TECHNOLOGIQUES EN RUPTURE**

Infographie
LE RNR-Na

Vue plongeante depuis
le toit du bâtiment réacteur
Phénix, au centre CEA
de Marcoule.



© F. Vigouroux/CEA

PRÉPARER L'AVENIR DU NUCLÉAIRE

Besoin vital et facteur de croissance, la maîtrise de l'énergie est un enjeu majeur du monde de demain. L'industrie nucléaire dispose à cet égard de sérieux atouts tout en étant confrontée à des problématiques de sûreté, de durabilité des ressources, de gestion des déchets qui imposent de poursuivre sur la voie de l'innovation technologique.

• **Actinides mineurs :** noyaux lourds autres que le plutonium (neptunium, américium, curium) formés dans un réacteur par capture successive de neutrons par les noyaux d'uranium du combustible.

• **Prolifération nucléaire :** détournement du plutonium ou d'autres matières fissiles à des fins militaires.

Certains chiffres parlent d'eux-mêmes : en 2030, la demande énergétique à l'échelle du globe aura doublé sous l'effet conjugué de la croissance des pays émergents et de l'augmentation de la population - nous serons 9 à 10 milliards en 2050. À l'heure où les ressources disponibles sont en voie de raréfaction et où il apparaît de plus en plus urgent d'engager une lutte efficace contre le changement climatique, il est devenu indispensable de disposer de sources d'énergie à la fois compétitives et « bas carbone ». En étant capable de produire massivement de l'électricité sans générer de gaz à effet de serre, le nucléaire dispose d'atouts qui lui permettent de s'imposer comme

l'une des solutions prometteuses. Mais, cette industrie est, comme d'autres, confrontée aux problèmes de sûreté de son approvisionnement et de raréfaction de ses matières premières. En 2014, on estimait que les ressources disponibles en uranium s'élevaient à 69 giga tonnes d'équivalent pétrole, contre 160 et 240 pour le gaz et le pétrole.

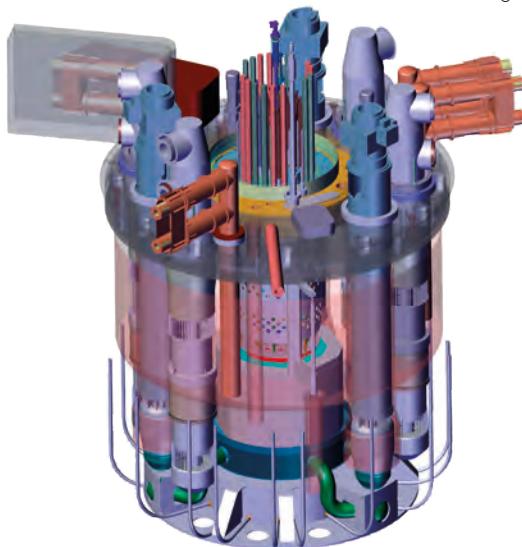
Enfin, la réduction des stocks de plutonium, le devenir des déchets à vie longue comme les **actinides mineurs** et la lutte contre la **prolifération nucléaire** sont autant de questions qui imposent de poursuivre sur la voie de l'innovation en matière de technologie nucléaire.

La France impliquée dans deux projets de réacteurs à neutrons rapides

Lancé en l'an 2000 sur proposition des États-Unis, le Forum international génération IV s'est fixé pour but de promouvoir le nucléaire du futur en préconisant le développement de six concepts de machines (voir encadré). Fortement investi dans cette initiative, le CEA pilote les études de conception du démonstrateur technologique de réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium (RNR-Na), appelé Astrid. Il poursuit aussi une veille et des programmes de R&D sur l'ensemble des autres technologies intéressant la 4^e génération. Le projet Astrid se différencie totalement des réacteurs à neutrons rapides des générations précédentes tout en bénéficiant de l'expérience acquise au cours de programmes passés comme Phénix et Superphénix.

Pourquoi s'intéresser particulièrement aux réacteurs à neutrons rapides ? Ce choix s'explique par leurs multiples avantages, notamment l'impact qu'aurait leur mise en service sur l'état des ressources mondiales en uranium. En effet, cette technologie permet de brûler tout type d'uranium (dans les systèmes actuels, seul l'isotope minoritaire uranium 235 (^{235}U) est utilisé), y compris l'uranium appauvri issu du combustible usé sorti des centrales actuelles. Elle offre également la possibilité de multirecycler le plutonium produit par le parc actuel des réacteurs à eau légère. Une autre raison du choix de ce type de réacteurs tient au fait qu'ils contribuent à la gestion des déchets radioactifs ►►

© CEA



Écorché du cœur du démonstrateur technologique de RNR-Na, Astrid.

LES OBJECTIFS DU FORUM INTERNATIONAL GÉNÉRATION IV

En 2001, les partenaires du Forum international génération IV établissent une charte officielle, donnant le coup d'envoi de cette instance de coopération en matière de R&D pour établir la faisabilité et les performances des réacteurs du futur. Objectif : développer des réacteurs à la sûreté renforcée, durables (entre autres, économies en uranium), économiquement compétitifs par rapport aux autres sources d'énergie, non proliférants, résistants aux attaques terroristes et créant peu de déchets ultimes.

Fin 2002, six concepts de réacteurs sont sélectionnés. Trois sont des filières à neutrons rapides (RNR) : RNR gaz, RNR sodium et RNR plomb. Les autres utilisent des neutrons thermiques : réacteurs à eau supercritique (RESC), à très haute température (RTHT) et à sels fondus (RSF).



Les 14 partenaires : Afrique du Sud, Argentine, Australie, Brésil, Canada, Corée du Sud, Chine, États-Unis, France, Japon, Royaume-Uni, Russie, Suisse ainsi que l'Euratom.

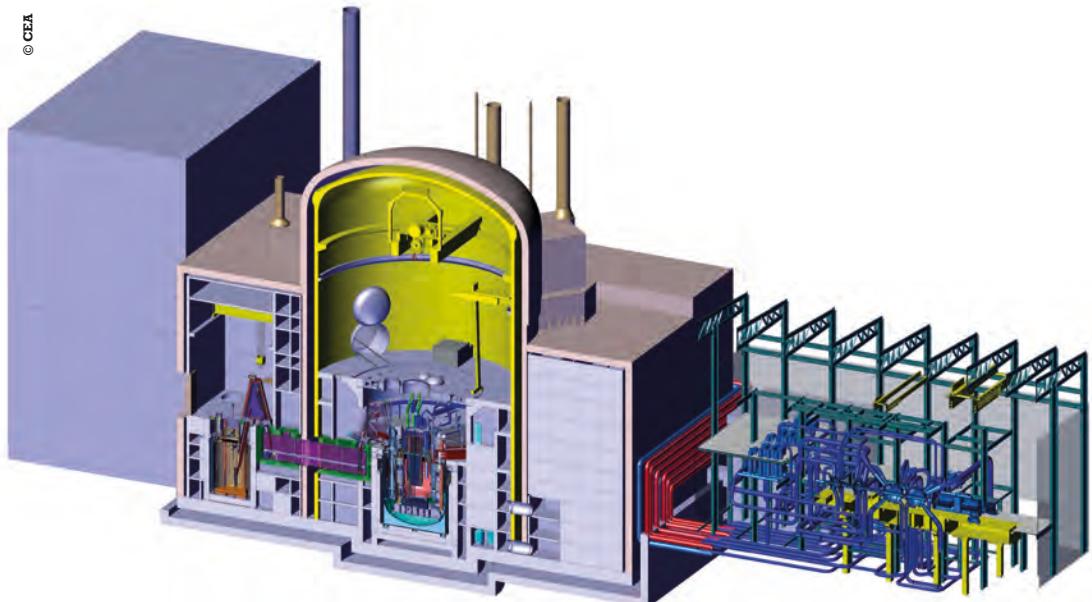
• **Transmutation:** transformation d'un atome en un autre atome par réaction nucléaire. En l'occurrence, il s'agirait de fissionner les actinides mineurs pour obtenir des éléments toujours radioactifs mais à durée de vie moins longue.

à vie longue et à leur diminution grâce à la **transmutation** des actinides mineurs. Enfin, et du fait de ces avantages, ces réacteurs sont un rempart contre la prolifération nucléaire dans la mesure où ils suppriment la nécessité d'enrichir l'uranium et consomment eux-mêmes le plutonium qu'ils produisent.

Vers le démonstrateur technologique Astrid

Reste à mettre au point cette nouvelle filière de réacteurs. Ce à quoi s'emploie depuis 2010 le CEA avec des partenaires publics et privés (voir encadré) grâce au projet de RNR-Na, baptisé Astrid. Ce démonstrateur technologique de 600 MWe n'en est pour l'instant

qu'à la phase d'études. Les options de conception, reposant sur l'expérience acquise dans le passé, prévoient de fortes améliorations pour positionner ce réacteur au niveau attendu de la quatrième génération. Il s'agit notamment de poursuivre les innovations sur le plan de la sûreté car le démonstrateur technologique devra rompre, sur ce point, avec ses prédecesseurs. La phase « d'avant-projet sommaire » s'est achevée fin 2015. Elle est suivie, depuis début 2016, d'une phase de *basic design*. Des études qui bénéficient d'une aide de 625 millions d'euros du programme Investissements d'Avenir (sur l'enveloppe de 1 milliard d'euros allouée au nucléaire du futur). ●



Vue en coupe de l'ilot nucléaire et de la salle des machines d'Astrid. ►

LES PARTENAIRES DU PROJET ASTRID

Pour les études d'ingénierie et de R&D qui mobilisent actuellement plus de 500 personnes, la Direction de l'énergie nucléaire du CEA (CEA-DEN) collabore avec différents industriels français et étrangers. Voici le rôle de chacun :

- CEA : pilote du projet et chargé de la conception du cœur ;
- Airbus Defence and Space : fiabilité et sûreté de fonctionnement ;
- Alcen : cellules chaudes ;
- AREVA NP : chaudière, contrôle commande et auxiliaires nucléaires ;
- Bouygues : génie civil et ventilation ;
- CNIM : valorisation de la chaleur pour optimiser le rendement du système de conversion d'énergie au gaz ;
- EDF : assistance à maîtrise d'ouvrage, retour d'expérience d'exploitation, des études de sûreté et de conception du cœur, de l'inspection en service et des matériaux [durée de vie] ;
- General Electric : système de conversion d'énergie eau-vapeur et gaz ;
- Jacobs France : moyens communs et infrastructures ;
- JAEA, MHI et MFBR : conception de systèmes de sûreté et contribution à la R&D associée ;
- Onet Technologies : innovations sur robotique et manutention ;
- Rolls-Royce : échangeurs compacts sodium-gaz et manutention du combustible ;
- Technetics : développement de solutions innovantes d'étanchéité pour les traversées de dalle et la robotique ;
- Toshiba : pompes électromagnétiques de grande taille ;
- Velan : conception et développement de vannes sodium d'isolement sur la boucle secondaire.

OPTIMISER DURABLEMENT LES RESSOURCES

Les réacteurs à neutrons rapides intéressent aussi l'industrie nucléaire parce que leur capacité de recyclage permettrait de résoudre certains problèmes liés aux stocks d'uranium et de plutonium.

Actuellement, la France importe 8000 tonnes d'uranium naturel par an qui permettent la fabrication des 1000 tonnes d'uranium enrichi qui alimentent les centrales. Le reste, l'uranium appauvri, soit 7000 tonnes, est entreposé. Cet uranium appauvri (constitué pour l'essentiel d'uranium 238) ne pourrait de toute manière pas être employé comme combustible des réacteurs à eau pressurisée (REP) du parc EDF. Il a été progressivement entreposé sur le territoire français et son stock représente aujourd'hui plus de 270 000 tonnes!

Autre matière à gérer durablement : le plutonium issu du combustible usé des centrales (10 tonnes par an). En France, il est traité pour fabriquer du **MOX***. Or ce carburant fissile dont la production s'élève à 120 tonnes par an ne peut être utilisé efficacement qu'une seule fois dans les réacteurs actuels. Après son passage en réacteur, il est entreposé en piscine bien qu'il contienne encore du plutonium. N'y aurait-il pas un moyen de le valoriser ?

Résorber les stocks existants, sans en constituer de nouveaux

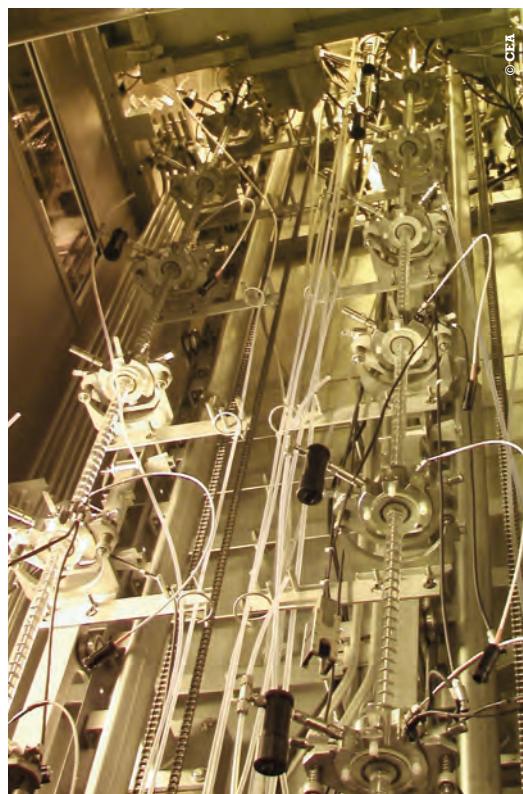
Les réacteurs à neutrons rapides (RNR) peuvent apporter des solutions. Utilisant un carburant fissile fait de 80 % d'uranium 238 et de 20 % de plutonium, ils produisent de l'énergie en brûlant le plutonium et transforment également l'uranium en plutonium. Parfois, en quantités égales s'ils fonctionnent (cas d'Astrid) selon un mode **isogénérateur***. L'avantage ? « Il est double, estime Bernard Boulle, directeur du programme “aval du cycle” du CEA-DEN. Les RNR permettraient d'éviter de constituer des stocks de plutonium puisque tout serait “brûlé” et aussi de valoriser la presque totalité de l'uranium 238 contenu dans le combustible. » En effet, dans les REP classiques, seule une infime partie de la matière première, l'uranium 235, est valorisée pour produire de l'énergie. Dans les RNR, les 99 % d'uranium 238 seraient utilisables.

De ce fait, les RNR ne nécessiteraient pas d'enrichir l'uranium préalablement à son utilisation, ce qui présenterait un avantage vis-à-vis de la problématique de prolifération nucléaire. Comme l'uranium 238 est naturellement plus abondant sur Terre que l'uranium 235, et que la France en dispose d'énormes quantités, il y aurait là un moyen de garantir la production d'électricité durant des milliers d'années !

Récupérer le plutonium du MOX usé

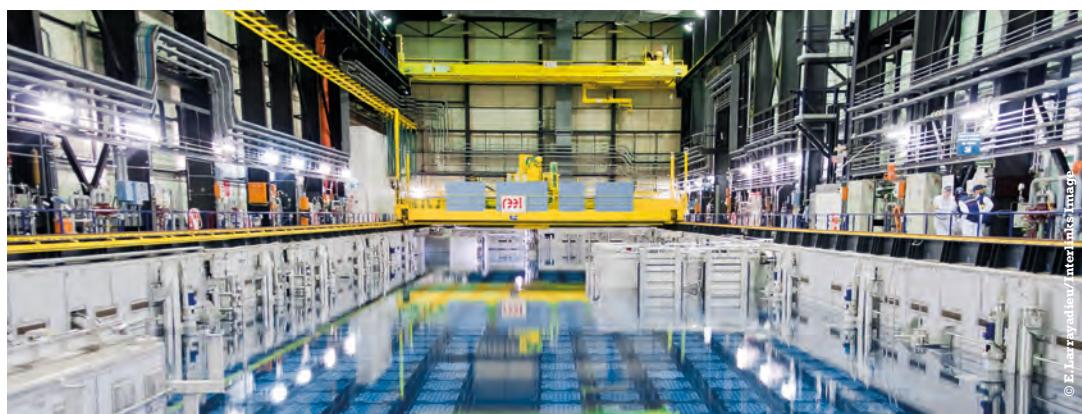
Reste que pour démarrer les premiers réacteurs, il faudra disposer de plutonium. Celui-ci pourra être récupéré dans le MOX usé, conservé dans les piscines de l'usine de La Hague dont les volumes seraient suffisants pour mettre en service dix centrales. De plus, les RNR pourraient aussi servir à se débarrasser de certains déchets problématiques de l'industrie nucléaire. Ces machines auraient, en effet, la capacité de « brûler » - transmuter - les actinides mineurs. Les procédés pour les isoler dans le combustible usé, avant cette opération, sont là aussi connus : ils sont en cours de développement sur le centre CEA de Marcoule. ●

- **MOX (Mixed Oxides) :** combustible nucléaire composé d'un mélange d'oxydes d'uranium et de plutonium.



- **Isogénération :** processus qui produit autant de combustible fissile qu'il en consomme.

Colonne pulsée en haute activité dans Atalante à Marcoule pour des expérimentations de multirecyclage uranium-plutonium.



Piscine d'entreposage du site AREVA à La Hague.

DÉFINIR DES OPTIONS TECHNOLOGIQUES EN RUPTURE

Après une relance des travaux de R&D en 2006 avec EDF et AREVA, les études de conception d'Astrid ont commencé en 2010. Le CEA, maître d'ouvrage du programme, est aujourd'hui capable de dresser le portrait-robot de ce démonstrateur technologique de réacteur de quatrième génération qui pourrait voir le jour au cours de la prochaine décennie.



« *Un réacteur doté des meilleurs standards de sûreté du moment et capable d'optimiser la gestion des matières.* » Telle est pour Nicolas Devictor qui dirige les programmes de recherche dans ce domaine au CEA-DEN, la définition d'un réacteur de quatrième génération. « Sûreté maximum » parce qu'elle devra être au moins à la hauteur de celle de l'EPR et intégrer le retour d'expérience des évaluations de sûreté réalisées sur les centrales françaises, suite à l'accident de Fukushima. « Capacité d'optimisation », car cette technologie futuriste devra pouvoir tirer de la ressource disponible « *cent fois plus d'énergie que ne le font les réacteurs actuellement déployés sur le parc nucléaire français* ». Ce cahier des charges explique les principaux choix technologiques que les équipes du CEA-DEN ont opérés pour le projet Astrid, en partenariat avec des industriels. Ainsi, ce réacteur sera à « *neutrons rapides* » (RNR), parce que la physique impose que seul ce procédé puisse convertir en énergie la quasi-totalité de l'uranium naturel, tout en utilisant comme matières premières les énormes stocks d'uranium 238 constitués par l'exploitation du parc EDF durant des décennies, ainsi que le plutonium contenu dans les combustibles usés. Il sera également en « *rupture technologique* » pour que son niveau de sûreté dépasse celui de tous les autres RNR ayant existé jusqu'ici, comme par exemple Phénix ou Superphénix. Enfin, il sera un réacteur de 600 MWe raccordé au réseau car, explique Nicolas Devictor, « *son rôle sera de démontrer que les options techniques retenues pour Astrid sont extrapolables à une filière de réacteurs de production d'électricité, grâce à des progrès sur l'opérabilité du réacteur.* » En exploitation commerciale, un réacteur du futur devra être disponible pour produire de l'énergie au moins 90 % du temps. Dès lors, il s'agit de démontrer aux industriels que la technologie du RNR sodium est capable d'atteindre cet objectif par la mise au point progressive de procédures adaptées.

Le sodium pour des neutrons rapides

Les options technologiques et les principaux axes de recherche du projet peuvent se décliner selon un mode semblable. Ainsi, le choix des RNR fixerait de lui-même la nature du liquide caloporeur à utiliser pour refroidir le cœur du réacteur. Ne devant pas ralentir les neutrons, ce fluide ne peut être de l'eau comme dans les REP du parc EDF. D'autres critères comme la viscosité, la corrosivité ou les propriétés thermiques doivent être aussi considérés. Et au bout du compte, indique Nicolas Devictor : « *même si on peut employer du gaz, le meilleur choix possible est le sodium liquide porté à des températures de 200 à 550 °C.* » Mais les défauts du sodium demandent à être corrigés, et ce, dès la conception du réacteur. Dans les réacteurs

comme Superphénix, une vidange du sodium se traduisait, par exemple, par une hausse de la réactivité du cœur ; ce que les ingénieurs-chercheurs du CEA-DEN veulent maintenant éviter en développant pour Astrid un cœur à sûreté améliorée. Pour limiter les conséquences d'une mise en contact accidentelle de ce métal liquide avec l'eau, ils envisagent également de remplacer le générateur de vapeur servant à produire de l'électricité par un circuit et une turbine fonctionnant à l'azote pressurisé.

Enfin, les risques d'incendie, liés à une fuite de sodium dans le bâtiment, seront limités par les progrès sur la détection de fuite ainsi que par le casematage ou l'inter-tage des locaux les plus exposés. Des capteurs ultrasensores hautes températures [voir encadré] ou des robots résistant aux fortes chaleurs devront aussi être employés lors des opérations d'inspection qui sont plus compliquées dans un RNR sodium, puisque le sodium est naturellement opaque.

Poursuivre l'innovation

Une telle présentation des faits ne signifie pas que toutes les options techniques sont déjà décidées. L'important est de donner la priorité à l'innovation et un effort important de R&D reste nécessaire, en soutien aux études d'ingénierie cofinancées par le CEA et les partenaires industriels.

Cet état des lieux ne préjuge pas non plus de la date à laquelle les premières centrales de quatrième génération arriveront sur le marché, puisque le projet Astrid n'a pas une vocation commerciale. Il vise simplement « à préparer le futur et faire en sorte qu'une filière de IV^e génération atteigne une maturité technologique pour la seconde moitié de ce siècle en France ». Pour ce faire, il devra, à cette date, avoir accumulé une quinzaine d'années d'exploitation tout en ayant pu réaliser une série d'expériences visant à démontrer ses capacités : essais d'opérabilité, tests de vieillissement des matériaux, tests de transmutation, etc. ●



© P. P. Grosjean/CEA

◀ Expérimentation en boîte à gants sodium.

DES ULTRASONS POUR PERCER L'OPACITÉ DU SODIUM

Parmi les innovations autour du projet Astrid, le développement d'une instrumentation permettant la visualisation sous sodium constitue un enjeu majeur. L'objectif étant d'améliorer la démonstration des capacités d'inspection et de surveillance.

Comment voir à travers le sodium chaud, milieu opaque à l'aspect d'aluminium fondu ? À partir du retour d'expérience des RNR ayant déjà fonctionné dans le monde, une équipe du CEA-DEN, en collaboration avec le CEA-List¹, a développé deux techniques de contrôle non destructif par ultrasons. Celles-ci utilisent des **traducteurs**[•] électromagnétiques et piézoélectriques immergés en sodium, tel que l'explique Olivier Gastaldi, chef de service² au CEA-DEN : « Ils émettent des ultrasons et enregistrent les échos qui leur reviennent. Les données sont ensuite analysées par des algorithmes de traitement du signal pour générer une image permettant de visualiser en 3D l'objet ou la surface rencontrés, détecter d'éventuelles fissures ou encore identifier un assemblage de combustible dans le cœur. » Une prouesse au regard des contraintes propres à un réacteur : températures élevées (200 à 600 °C selon l'application), irradiations, compatibilité chimique des matériaux avec le sodium. Une fois ces techniques développées, elles ont été testées dans l'eau qui présente des similitudes avec le sodium en termes de transfert d'ondes ultrasensores. Elles ont ensuite été vérifiées sous sodium. À présent, les scientifiques innovent sur des systèmes autorisant une déviation électronique du faisceau des ultrasons. En effet, pour qu'un objet soit vu par un traducteur mono-élément, il faut qu'il soit dans l'axe de diffusion de celui-ci, ce qui est limitant pour l'obtention d'une image. En parallèle, le développement des algorithmes pour traiter l'information se poursuit pour reconstituer de façon optimale l'image attendue.

- **Traducteurs** : dispositif convertissant un signal physique en un signal mécanique.

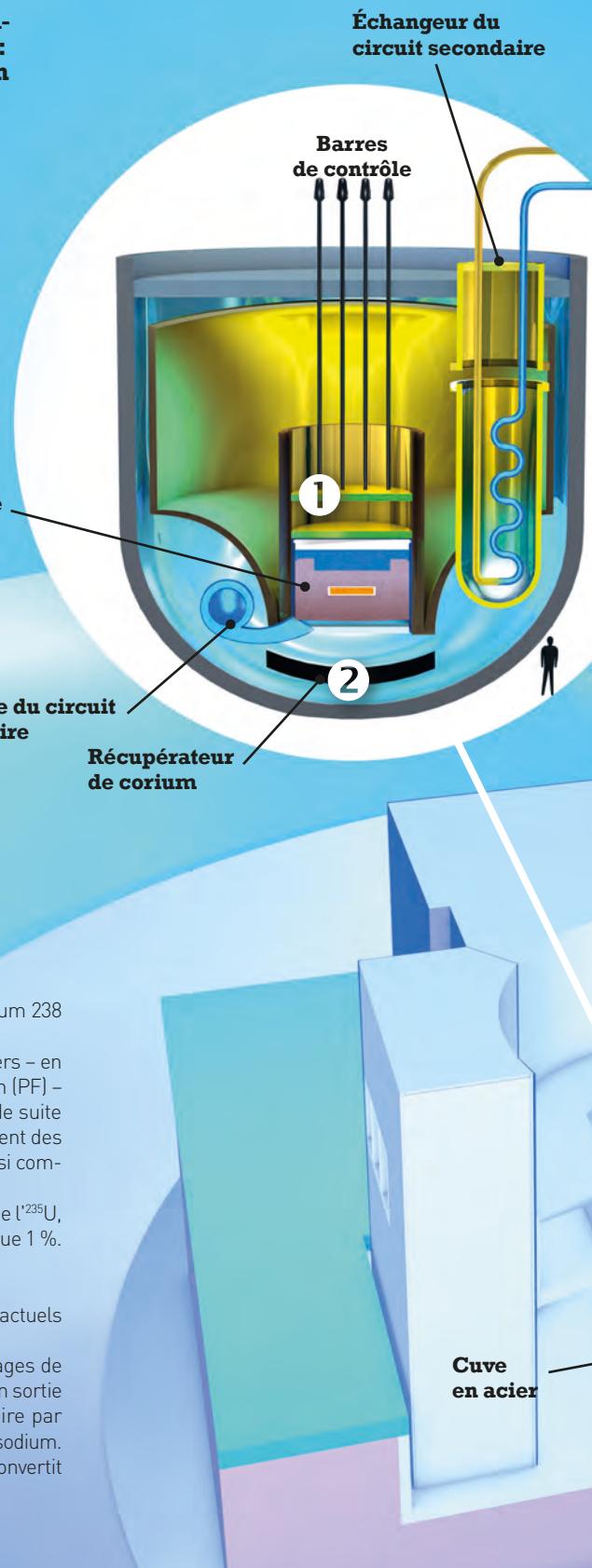
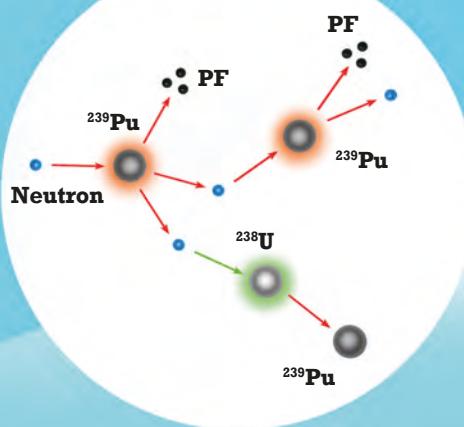
Notes :

1. Institut de CEA Tech, spécialiste des systèmes interactifs, systèmes embarqués, capteurs et traitement du signal.

2. Service de technologie des composants et procédés.

LE RNR-Na

Le réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium (RNR-Na) fonctionne comme un réacteur nucléaire classique : la fission des atomes de son combustible, au sein de son cœur, génère de la chaleur qui est véhiculée jusqu'à un turbogénérateur pour produire de l'électricité. Dans le contexte de la IV^e génération, les RNR-Na innovent, tant sur l'optimisation des matières premières que sur l'amélioration de la sûreté. Voici quelques pistes proposées par le CEA-DEN, maître d'ouvrage du démonstrateur technologique de RNR-Na Astrid.



FONCTIONNEMENT

La réaction de fission nucléaire

Le combustible nucléaire d'un RNR-Na est un mélange d'environ 80 % d'uranium 238 (^{238}U) et 20 % de plutonium 239 (^{239}Pu).

Dans le cœur du réacteur, les neutrons fissionnent les atomes ^{239}Pu . Ces derniers – en plus de libérer de l'énergie et de la chaleur et de générer des produits de fission (PF) – émettent d'autres neutrons qui cassent à leur tour d'autres atomes, et ainsi de suite (réaction en chaîne). Parallèlement, les atomes fertiles (non fissiles) ^{238}U capturent des neutrons et se transforment en ^{239}Pu (fissile). La consommation en ^{239}Pu est ainsi compensée par la production issue d' ^{238}U .

L' ^{238}U , matière première des RNR, représente 99 % de l'uranium naturel alors que l' ^{235}U , matière première utilisée dans les réacteurs nucléaires actuels, ne représente que 1 %.

Le système caloporeur

Dans un RNR-Na, le fluide caloporeur est du sodium – quand celui des réacteurs actuels est de l'eau – qui présente l'avantage de rester liquide jusqu'à 900 °C.

Dans le cœur, une pompe pousse du sodium froid (400 °C) entre les assemblages de combustible pour qu'il récupère l'énergie produite par les réactions de fission. En sortie du cœur, le sodium atteint 550 °C. Sa chaleur est extraite du circuit primaire par l'échangeur intermédiaire d'un deuxième circuit dans lequel circule également du sodium. Ainsi réchauffé, le sodium du circuit secondaire est dirigé vers un dispositif qui convertit sa chaleur pour actionner un turbogénérateur et produire de l'électricité.

PRINCIPALES INNOVATIONS

① Un cœur à réactivité maîtrisée

Un nouveau concept de cœur est développé pour améliorer la sûreté en cas d'accident de perte globale de refroidissement. Il s'agit d'éviter l'ébullition du sodium grâce au concept dit de Cœur à faible vidange (CFV) qui favorise la fuite des neutrons hors du cœur en cas d'accident pour ainsi réduire la réactivité du cœur en cas d'augmentation de la température du sodium.

② Un récupérateur de corium

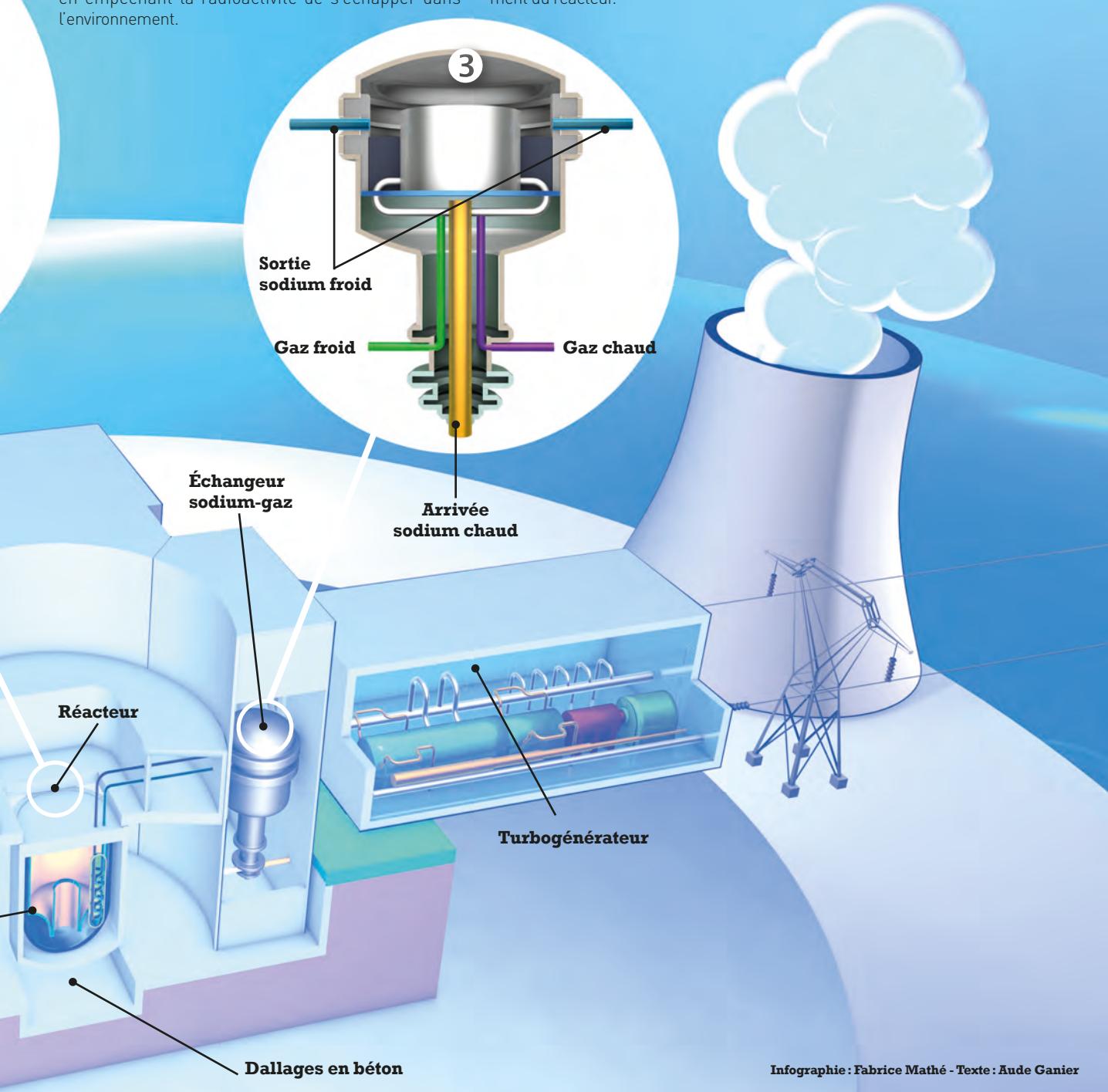
En cas de situation postulée de fusion du combustible et des gaines métalliques qui l'entourent, un magma très chaud se forme (+ de 2000 °C), appelé corium. Une innovation consiste à le récupérer, grâce à un dispositif placé au fond de la cuve, pour l'étaler et le refroidir en empêchant la radioactivité de s'échapper dans l'environnement.

③ Un échangeur sodium-gaz

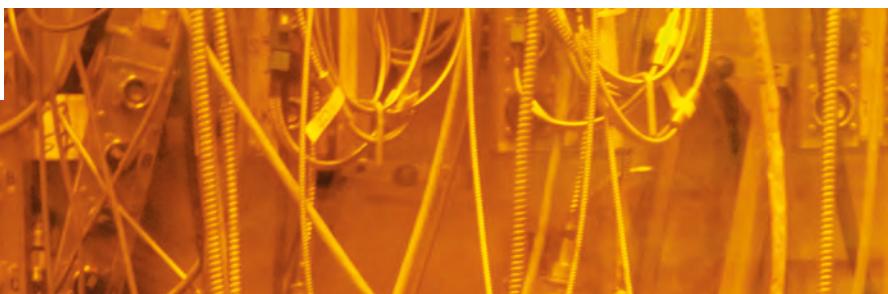
Le sodium étant réactif chimiquement avec l'eau, le générateur en eau-vapeur actionnant le turbogénérateur est remplacé par un système de conversion en gaz. Ainsi, la chaleur du sodium du circuit secondaire est communiquée à de l'azote qui, sous pression, se détend dans les turbines pour les faire tourner et produire l'électricité.

...et aussi

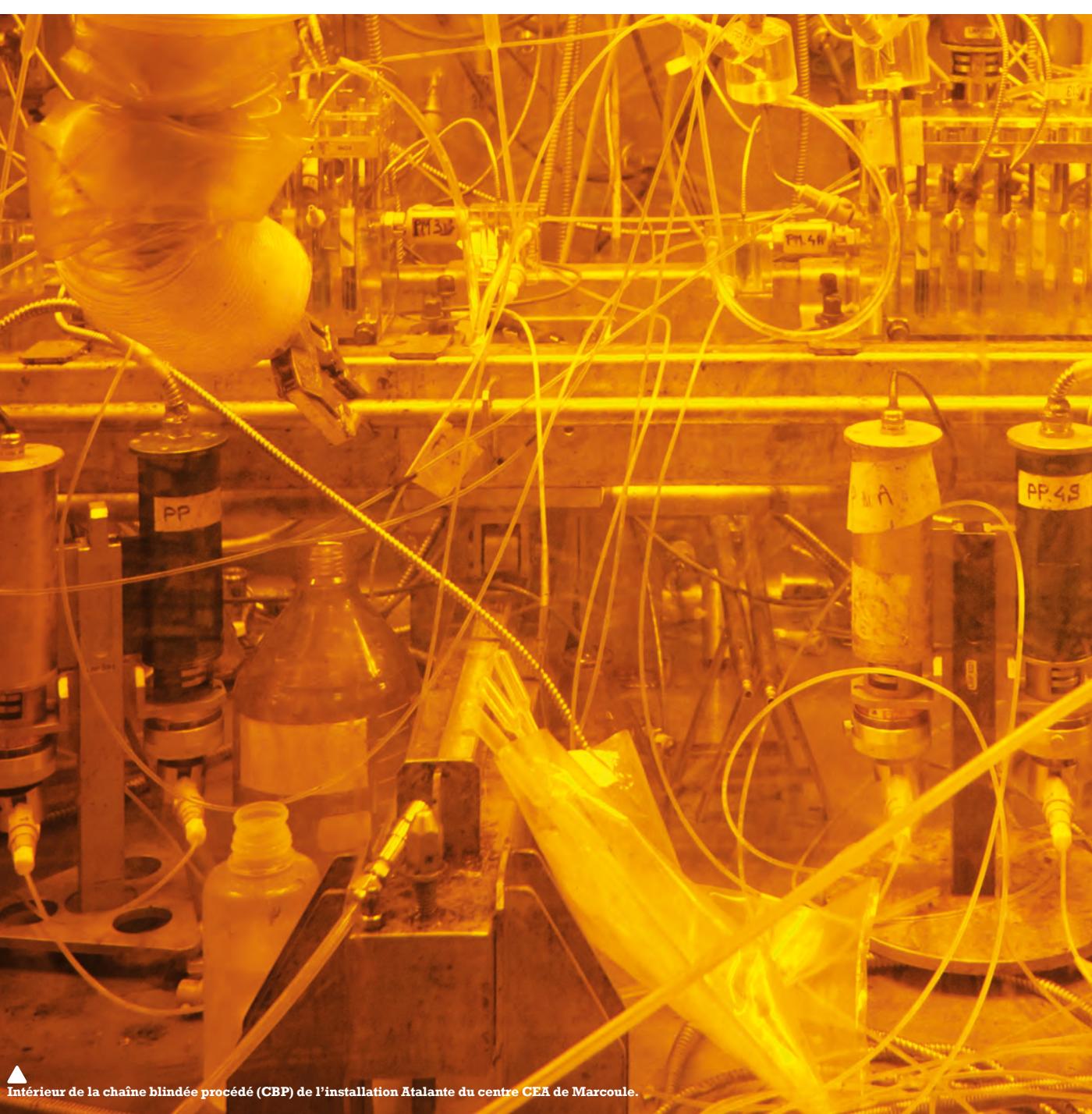
Des dispositifs de détection précoce de micro-fuite de sodium sont développés ; tout comme des moyens multiples et redondants d'évacuation de la puissance résiduelle, même en cas de perte d'alimentation électrique ou de source d'eau froide. De même, des inspections et maintenances pourront avoir lieu pendant le fonctionnement du réacteur.



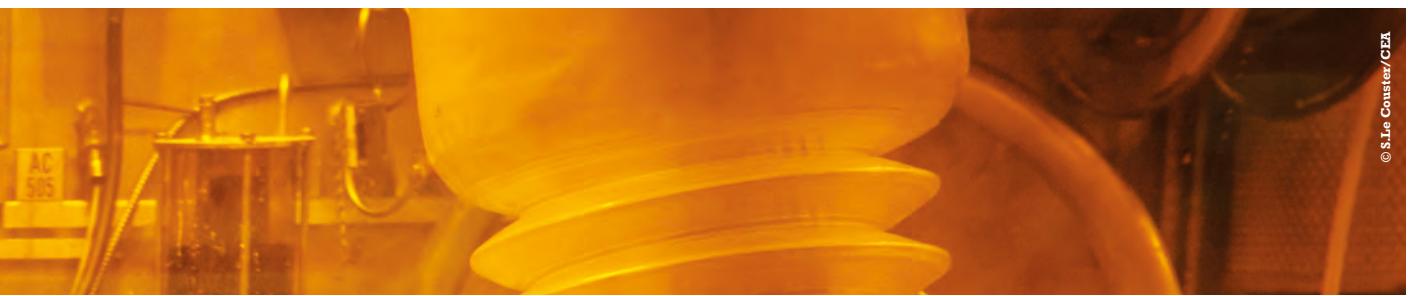
Infographie : Fabrice Mathé - Texte : Aude Ganier



LE COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE FAIT DES TOURS

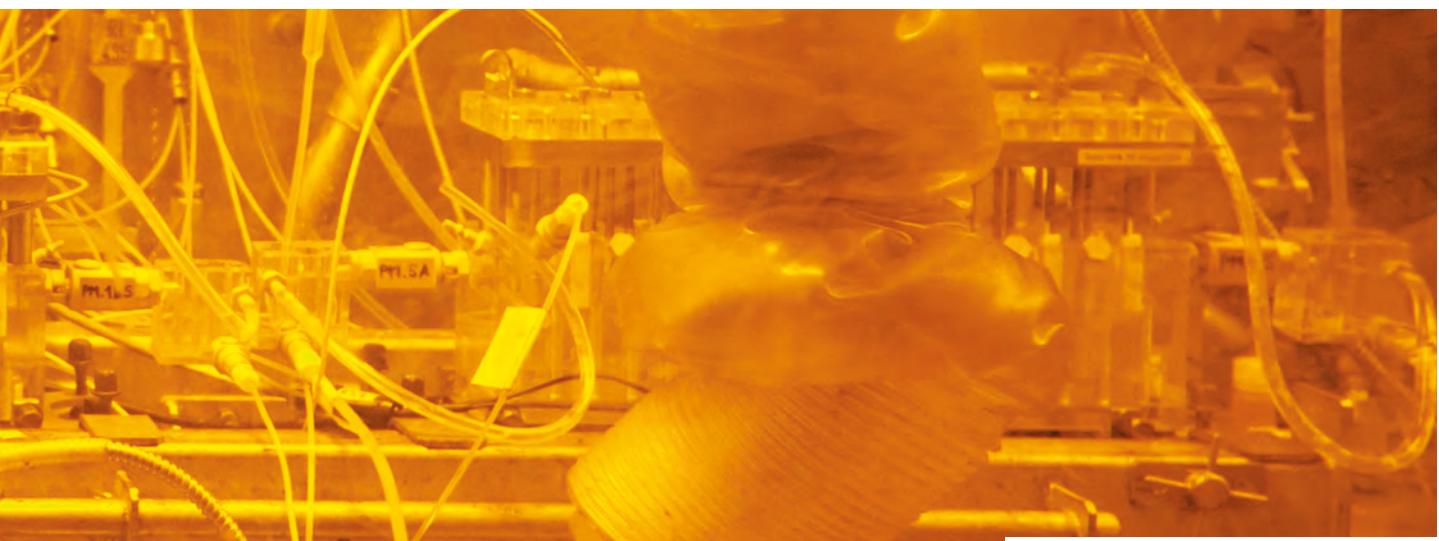


▲ Intérieur de la chaîne blindée procédé (CBP) de l'installation Atalante du centre CEA de Marcoule.



La France a fait le choix d'une politique de traitement-recyclage des combustibles usés. Cette option, déjà déployée industriellement depuis les années 1990, trouvera sa pleine mesure avec la quatrième génération. La Direction de l'énergie nucléaire du CEA (CEA-DEN), qui a mis au point les procédés actuellement mis en œuvre, poursuit aujourd'hui des recherches pour améliorer, compléter et adapter les technologies aux enjeux de demain.

Dossier réalisé par Patrick Philippon



LE CHOIX D'UN CYCLE FERMÉ

Infographie
LES PROCÉDÉS DU CYCLE FERMÉ

L'AMONT DU CYCLE : DU MINERAIS BRUT À L'URANIUM ENRICHI

L'aval du cycle : la deuxième vie du combustible

ET DEMAIN : MULTIRECYCLER EN GÉNÉRANT TOUJOURS MOINS DE DÉCHETS



LE CHOIX D'UN CYCLE FERMÉ

La France a fait le choix du « cycle fermé » qui permet de recycler les matières valorisables des combustibles usés (uranium et plutonium) et d'optimiser la gestion des déchets ultimes.



Piscine d'entreposage du combustible usé à La Hague.

• **REP**: réacteur à eau pressurisée, représentant en France la majorité des réacteurs de la filière actuelle.

• **Produits de fission**: nucléides générés par la fission d' ^{235}U ou par la désintégration des fragments de la fission nucléaire.

• **Actinides mineurs**: noyaux lourds (neptunium, américium, curium) formés dans un réacteur par capture successive de neutrons par des noyaux d'uranium du combustible.

« **C**'est dans une vision durable de l'énergie nucléaire que s'est bâtie la stratégie de la France, ce qui l'a conduit à opter pour le recyclage » affirme Bernard Boullis, directeur du programme « aval du cycle nucléaire » de la Direction de l'énergie nucléaire du CEA (CEA-DEN). Il convient dès lors de chercher à apporter les meilleures réponses aux problématiques relatives à la disponibilité des ressources naturelles en uranium et à la gestion des déchets ultimes. Pour bien appréhender ces enjeux, il faut se remémorer ce qui entre et sort des réacteurs nucléaires actuels, les **REP**[•]. Le combustible neuf « normal » comprend environ 4 % d'uranium 235 (^{235}U) fissile¹, le reste étant de l'uranium 238 (^{238}U). En sortie de réacteur, il reste encore l'essentiel de l' ^{238}U , une partie de l' ^{235}U initial ainsi que des **produits de fission**[•] hautement radioactifs et à la

durée de vie de l'ordre du siècle. À cela s'ajoutent 1 % de plutonium et 0,1 % d'**actinides mineurs**[•]. Or, ces éléments radioactifs seront encore présents dans des dizaines de millénaires. Que faire alors des matières réutilisables (uranium et plutonium) et des éléments inutiles et toxiques ?

Le choix du cycle fermé

Les pays ayant décidé d'abandonner le nucléaire à brève échéance ont logiquement opté pour un « cycle ouvert ». En clair : le combustible usé est considéré dans son intégralité comme un déchet et stocké définitivement en couche géologique profonde. C'est par exemple ce qu'a envisagé la Suède après sa décision de ne pas construire de nouveaux réacteurs. À l'opposé, le « cycle fermé » (recyclage des combustibles nucléaires) prend tout son sens

pour les pays, comme la France ou le Japon et demain la Chine et l'Inde, souhaitant exploiter durablement l'énergie nucléaire. L'uranium et le plutonium sont alors extraits du combustible usé pour être recyclés dans de nouveaux assemblages de combustible. Seuls les produits de fission et les actinides mineurs, considérés comme des déchets ultimes, sont **vitrifiés**³ et stockés². Résultat : un volume de déchets bien moindre, à l'impact radioactif divisé par dix car le plutonium en a été retiré. La France étant pionnière dans cette voie, c'est le CEA-DEN qui a développé les technologies de retraitement, aujourd'hui utilisées dans l'usine de La Hague. La Chine s'engage dans la même voie et s'intéresse aujourd'hui à la technologie française.

Le MOX : première étape du recyclage

Tel qu'il est actuellement pratiqué, le cycle fermé consiste à mélanger le plutonium récupéré avec de l'uranium appauvri³ pour fabriquer du **MOX**⁴, lequel va de nouveau alimenter des réacteurs. Malheureusement, cela ne « marche » bien que pour un tour : une fois usé, le MOX contient en effet des isotopes⁴ de plutonium difficilement utilisables dans la filière actuelle des REP. De plus, le problème de l'épuisement à long terme des ressources reste entier car le rendement du MOX est comparable à celui du combustible classique : seulement 1 % de l'énergie potentielle contenue dans l'uranium naturel a été « consommé ». Or, si le recours à l'énergie nucléaire doit se développer durablement, les ressources naturelles « facilement » exploitables risquent de ne pas pouvoir répondre aux besoins à l'horizon de quelques décennies. La solution consiste à trouver un moyen d'utiliser l'²³⁸U (99,3 % de l'uranium naturel). Le recyclage sous forme de MOX dans les réacteurs à eau doit ainsi être considéré comme une étape visant, à la fois, à tirer le meilleur parti des ressources dans les réacteurs actuels, et à conditionner au mieux les déchets ultimes, tout en préparant l'avenir. « *Un "tour" dans la filière MOX dure une quinzaine d'années, la suite appartient aux réacteurs à neutrons rapides (RNR) de IV^e génération* » souligne Bernard Boullis.

RNR : en route vers le nucléaire du futur

Ces réacteurs valorisent tous les isotopes de plutonium ce qui permet un recyclage récurrent du combustible. Le plutonium consommé peut également être directement régénéré dans ces réacteurs, suite à la capture de neutrons rapides par l'²³⁸U. Le taux de production est d'ailleurs réglable : soit, les réacteurs en produisent plus qu'ils n'en consomment (mode « surgénérateur »); soit, ils le « brûlent » (mode « sous-générateur »); soit, ils en produisent autant qu'ils en consomment (« mode isogénérateur »). C'est cette dernière option que développe le CEA-DEN. Dans ce cas de figure, après amorçage du réacteur grâce au stock de plutonium issu du retraitement du MOX, le parc de RNR produirait lui-même son combustible fissile jusqu'à épuisement de l'²³⁸U initial. Un RNR extrait en effet de 100 à 150 fois plus d'énergie de l'uranium naturel que les réacteurs actuels. Les réserves connues d'uranium deviendraient alors la plus grande ressource énergétique naturelle, très loin devant les hydrocarbures fossiles. « *À très long terme, la France pourrait même se passer totalement des mines car le stock d'uranium appauvri déjà entreposé sur le territoire suffirait pour plusieurs millénaires de production électrique* » assure Christophe Poinsot, chef du département Radiochimie & Procédés du CEA-DEN à Marcoule.

Autre avantage : les RNR créent environ quatre fois moins d'actinides mineurs que les réacteurs à neutrons thermiques, tout en produisant la même quantité d'électricité. Surtout, ils seraient capables de « brûler » ces

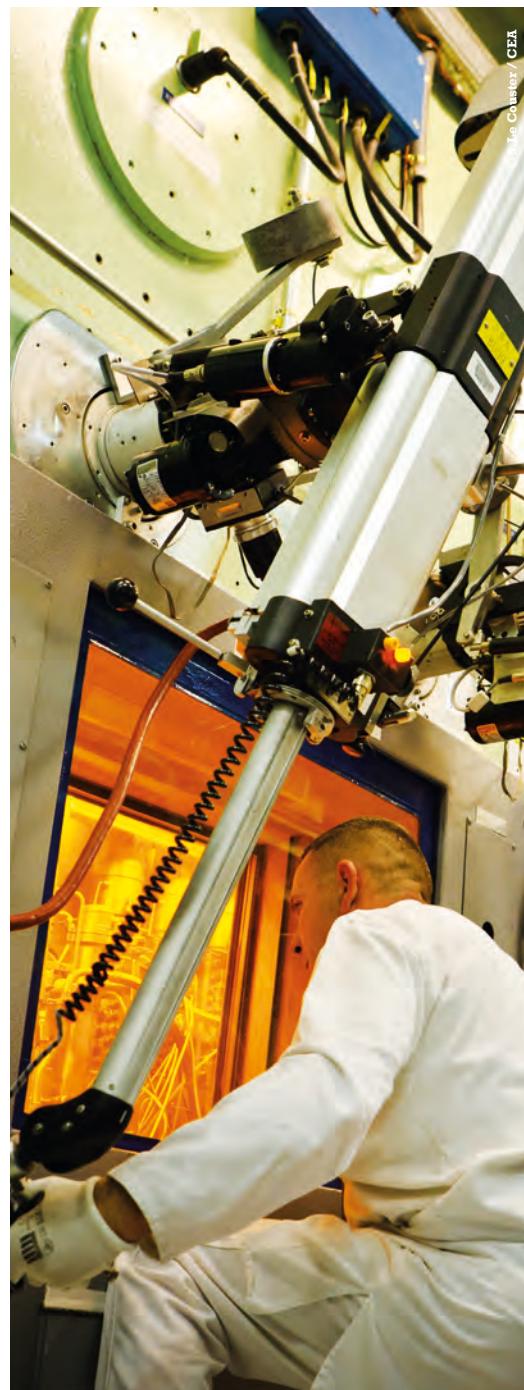
éléments pour obtenir des produits de fission à la durée de vie beaucoup moins longue [voir p 23]. Cette opération, dite de **transmutation**⁵, fait l'objet de recherches poussées depuis une vingtaine d'années, tant en France, par le CEA, qu'au Japon et aux États-Unis. Les déchets ultimes sans actinides mineurs – constitués essentiellement de produits de fission – retrouveraient en trois siècles une radioactivité comparable à celle du minerai d'uranium, au lieu de plusieurs dizaines de millénaires : « *cela nous ramène à une échelle compatible avec l'histoire et la mémoire humaine* » estime Christophe Poinsot.

En attendant, le CEA-DEN, qui a développé toutes les technologies actuelles de retraitement avant de les transférer à la Cogema, devenue AREVA, continue avec cette dernière d'améliorer les procédés mis en œuvre à La Hague. Plus en amont, les équipes de Saclay, Marcoule et Cadarache mettent au point le cycle du combustible du futur. ●

• **Vitrification** : incorporation des déchets radioactifs dans une matrice de verre pour stabiliser leur conditionnement.

• **MOX [Mixed Oxides]** : combustible nucléaire composé d'un mélange d'oxydes d'uranium et de plutonium.

• **Transmutation** : transformation d'un atome en un autre atome par réaction nucléaire. En l'occurrence, il s'agirait de fissionner les actinides mineurs pour obtenir des éléments toujours radioactifs mais à durée de vie moins longue.



Notes :

1. Le noyau d'un atome fissile peut se scinder en libérant une grande quantité d'énergie sous un flux de neutrons. L'²³⁵U est le seul élément fissile naturel. A contrario, l'²³⁸U, de loin le plus abondant, n'est pas fissile mais fertile : il peut donner des éléments fissiles après capture de neutrons.

2. Beaucoup de pays, n'ayant pas encore déterminé leur politique, entretiennent le combustible usé de manière réversible. C'est le cas des USA, par exemple.

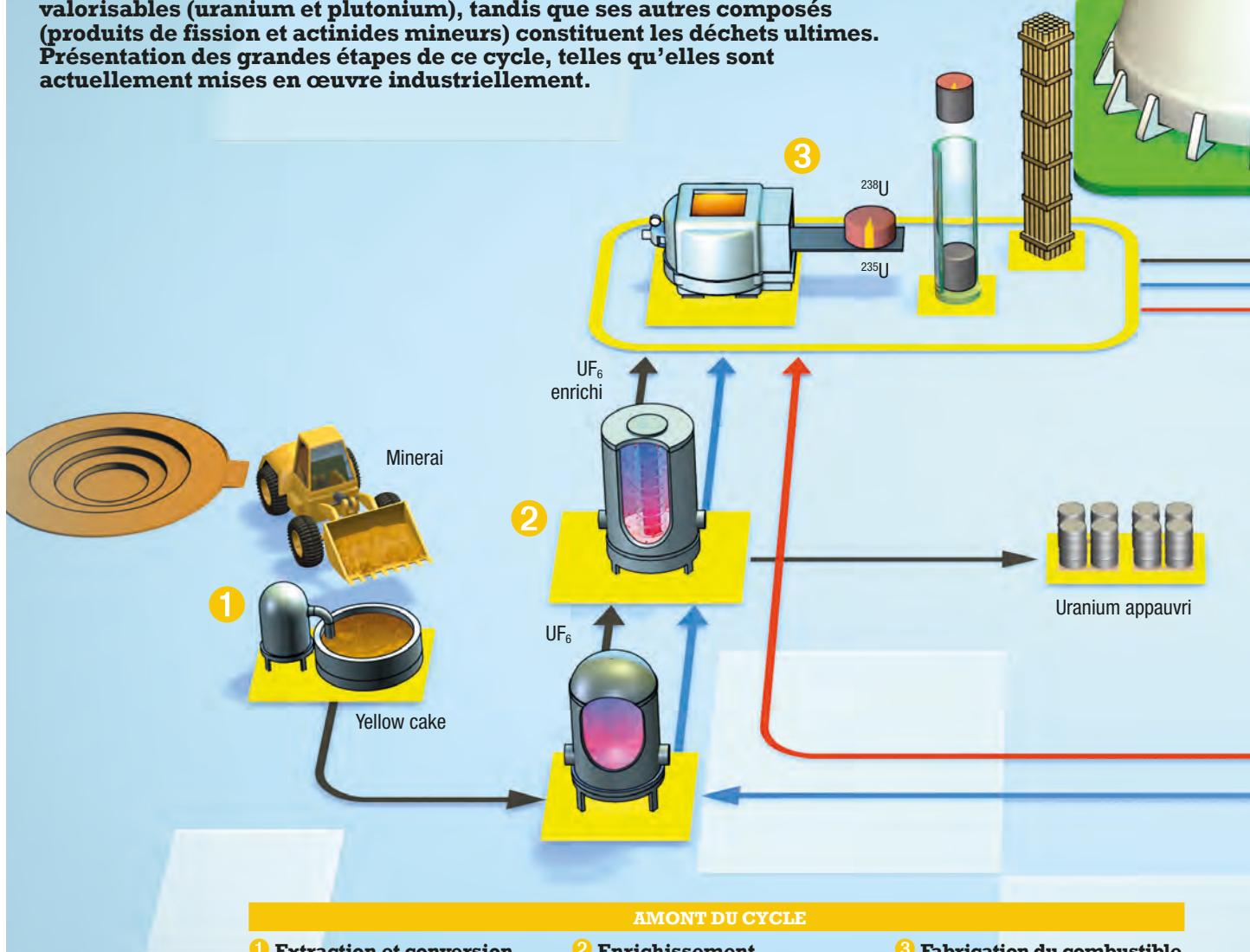
3. Uranium résiduel après opérations d'enrichissement, pratiquement exempt d'²³⁵U, lequel a été extrait pour fabriquer du combustible nucléaire « enrichi » en ²³⁵U.

4. Les noyaux des différents isotopes d'un élément comportent tous le même nombre de protons (caractéristique de l'élément) mais pas le même nombre de neutrons : ²³⁸U et ²³⁵U sont des isotopes de l'uranium, par exemple.

Installation Atalante à Marcoule, dédiée aux études sur le cycle du combustible.

LES PROCÉDÉS DU CYCLE FERMÉ

La France a fait le choix d'un cycle du combustible nucléaire dit « fermé ». Il consiste à traiter le combustible usé pour récupérer ses matières valorisables (uranium et plutonium), tandis que ses autres composés (produits de fission et actinides mineurs) constituent les déchets ultimes. Présentation des grandes étapes de ce cycle, telles qu'elles sont actuellement mises en œuvre industriellement.



AMONT DU CYCLE

1 Extraction et conversion

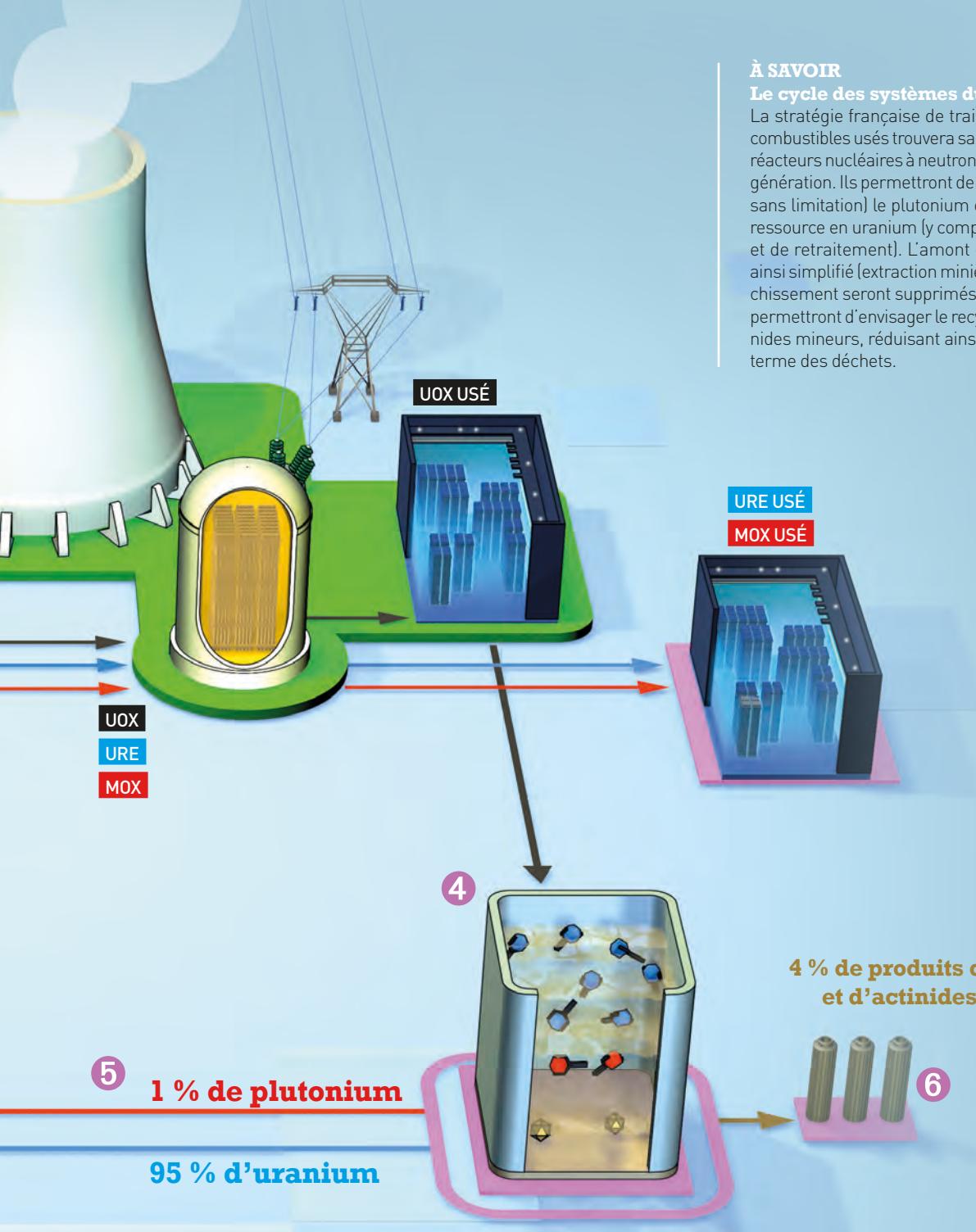
L'extraction du mineraï uranifère, dans des gisements souterrains ou à ciel ouvert, fournit les ressources nécessaires à la fabrication du combustible. Contenant de 1 à 200 kg d'uranium par tonne, le mineraï est dissous par voie alcaline ou acide, puis traité pour obtenir une poudre jaune, le yellow cake (99,27% d'²³⁸U et 0,7% d'²³⁵U). Celui-ci est ensuite converti en un gaz : l'hexafluorure d'uranium (UF₆).

2 Enrichissement

Seul l'isotope 235 de l'uranium est fissile (générant de l'énergie lorsque son noyau est cassé par un neutron) ; or, il est présent en très faible proportion dans l'uranium naturel (0,7%). Grâce à l'enrichissement, par un procédé de centrifugation gazeuse, sa proportion augmente entre 3 et 5 %.

3 Fabrication du combustible

L'UF₆ gazeux enrichi est converti en poudre d'oxyde d'uranium (UO₂). Elle est comprimée en pastilles de 7 grammes qui sont empilées dans des tubes en alliage de zirconium, les « crayons ». Ces derniers sont réunis en faisceaux dans des assemblages de combustible qui sont chargés dans le réacteur pour produire de l'électricité. Par exemple, un réacteur à eau pressurisée (REP) de 900 MWe compte 157 assemblages de 264 crayons.



À SAVOIR

Le cycle des systèmes du futur

La stratégie française de traitement-recyclage des combustibles usés trouvera sa pleine mesure avec les réacteurs nucléaires à neutrons rapides de quatrième génération. Ils permettront de multirecyclier [recycler sans limitation] le plutonium et de valoriser toute la ressource en uranium (y compris l'uranium appauvri et de retraitement). L'amont du cycle s'en trouvera ainsi simplifié (extraction minière, conversion et enrichissement seront supprimés). Sur le long terme, ils permettront d'envisager le recyclage de certains actinides mineurs, réduisant ainsi la radiotoxicité à long terme des déchets.

AVAL DU CYCLE

4 Séparation des éléments

Après environ quatre ans en réacteur, le combustible usé se compose de 96 % de matières valorisables et de 4 % de déchets ultimes. Ce combustible usé est entreposé en piscine de refroidissement puis subit plusieurs traitements avant d'être dissous dans une solution d'acide nitrique. Celle-ci est mélangée à une solution contenant des molécules extractantes spécifiques pour séparer les matières réutilisables des déchets ultimes.

5 Recyclage des matières

Plutonium (1 %) et uranium (95 % dont moins d'1 % d' ^{235}U) sont recyclés, respectivement en combustibles MOX (Oxyde mixte U et Pu) utilisables par 24 des 58 réacteurs actuels, et en URE (uranium de retraitement enrichi).

Après un nouveau cycle en réacteur, ces combustibles ne peuvent pas encore être recyclés efficacement dans le parc actuel. Ils sont entreposés en piscine, en attendant leur valorisation dans les réacteurs à neutrons rapides (RNR) de quatrième génération.

6 Conditionnement des déchets ultimes

Les déchets ultimes sont piégés dans une matrice de verre : c'est le procédé de vitrification, développé au CEA et mis en œuvre dans les usines d'AREVA La Hague. Ces déchets vitrifiés sont ensuite coulés dans des conteneurs en inox et entreposés en puits, en attendant d'être stockés en couche géologique profonde.

Infographie : Fabrice Mathé - Texte : Aude Ganier

L'AMONT DU CYCLE : DU MINERAIS BRUT À L'URANIUM ENRICHIS

De la mine jusqu'au réacteur, toute une chaîne industrielle assure la transformation de l'uranium contenu dans le minerai pour obtenir l'oxyde d'uranium (UOX) qui constitue les pastilles de combustible. Extraction sélective, purification, enrichissement... autant d'enjeux scientifiques et techniques pour les équipes du CEA-DEN.

Pour fonctionner, les réacteurs nucléaires exigent de l'uranium très pur, ce qui représente un grand enjeu de chimie car l'uranium doit être épuré de tous les autres éléments présents dans le minerai. Or, comme le rappelle Romain Grastien, chef du programme « amont du cycle » au CEA-DEN : « L'uranium représente au mieux quelques pourcents en masse de ce minerai. De plus, l'uranium naturel ne contient que 0,7 % d' ^{235}U fissile (le reste étant de l' ^{238}U), alors que le combustible des REP doit comprendre environ 4 % d' ^{235}U ». Ainsi, dès les années 1950-1960, le CEA-DEN a conçu et mis en place toute la chaîne industrielle allant du minerai brut¹ jusqu'à l'uranium enrichi. Aujourd'hui, près de 55 000 tonnes d'uranium sont extraites annuellement pour une consommation de 65 000 tonnes². « À terme, avec l'épuisement des mines existantes, il faudra apprendre à exploiter des gisements plus pauvres et à un coût raisonnable dans les meilleures conditions environnementales » prévient Romain Grastien. La R&D sur tout l'amont du cycle du combustible s'est adaptée...

Extraire l'uranium et le purifier

Tout commence à la mine où l'uranium est extrait. Le minerai est concassé, broyé puis imprégné d'une solution acide oxydante pour dissoudre l'uranium à hauteur de quelques grammes par litre. L'uranium est ensuite sélectivement extrait de la solution par une molécule spécifique, utilisée depuis les années 1970. Viennent ensuite plusieurs étapes de purification avant d'obtenir un concentré minier d'uranium appelé *yellow cake*. « Nous voulons supprimer les dernières étapes, consommatrices en eau et en réactifs, en développant une nouvelle molécule extractante afin d'atteindre, dès la première opération, une solution suffisamment purifiée » explique Romain Grastien. À plus long terme, les chimistes souhaitent

davantage diminuer la consommation d'eau en repensant la phase d'extraction elle-même.

Un autre mode d'exploitation est également utilisé : l'*in situ leaching*³. Lorsque la géologie s'y prête, on peut en effet se passer d'excavation : on récupère l'uranium en injectant directement une solution acide oxydante dans le gisement puis en pompant la solution. Là aussi, les chercheurs essaient de supprimer des étapes de purification en améliorant la méthode d'extraction⁴.

Du *yellow cake* à l'uranium enrichi

À l'usine Comurhex de Malvési, le *yellow cake* subit une purification complémentaire avant d'être converti en tetrafluorure d'uranium, lequel est ensuite transformé, à l'usine Comurhex de Pierrelatte, en hexafluorure d'uranium par réaction avec du fluor. Ce dernier étant un produit très coûteux, les experts du CEA-DEN travaillent à son recyclage. Arrive ensuite l'enrichissement. Lors de cette opération, l'uranium gazeux est introduit dans des centrifugeuses par lesquelles il est séparé en deux flux : l'un enrichi en ^{235}U (entre 3 et 5 %) et l'autre appauvri en ^{235}U (0,1 à 0,3 %). La première usine d'enrichissement, Georges-Besse, utilisait la diffusion gazeuse, seule technologie mature à l'époque de son démarrage (1978). Aujourd'hui, Georges-Besse II utilise la technologie d'ultracentrifugation gazeuse qui consomme 40 à 50 fois moins d'énergie. Une fois enrichi, l'hexafluorure est de nouveau converti en oxyde d'uranium solide utilisé pour la fabrication des combustibles. Les chimistes essaient aujourd'hui de récupérer le précieux fluor lors de cette opération afin de le réutiliser au cours de l'étape précédant l'enrichissement. Tout en gardant un œil sur l'émergence de nouveaux procédés, à base de lasers par exemple, qui pourraient supplanter l'ultracentrifugation... ●

Notes :

1. Le CEA était chargé de la prospection minière, avant de transférer cet aspect à la Cogema en 1976.

2. Données de 2014. Source WNA.

3. Méthode de plus en plus utilisée, en particulier au Kazakhstan, également appelée *in situ recovering*. Elle représente 50 % de la production d'uranium.

4. L'extraction se fait par passage de la solution sortant du puits sur une résine échangeuse d'ions.

► Plaque de *yellow cake*, concentré d'uranium obtenu après dissolution du minerai d'uranium dans l'acide.





© P.Dumas / CEA

Vue d'ensemble du prototype évolutif de vitrification équipé du creuset froid nucléarisé à Marcoule.

L'aval du cycle : la deuxième vie du combustible

Si les différentes étapes de l'aval du cycle sont aujourd'hui bien maîtrisées pour valoriser les matières réutilisables du combustible usé et conditionner les déchets ultimes, les chercheurs du CEA-DEN poursuivent des recherches en soutien aux industriels pour optimiser l'ensemble de ces procédés.

Depuis 1987, EDF alimente une vingtaine de ses réacteurs avec du MOX, à raison d'un tiers de MOX et deux tiers d'**UOX** dans les assemblages de combustible. Le plutonium fournit ainsi en France environ 10 % de l'électricité nucléaire. « *Ante la choix du cycle fermé, la France ne stocke plus de plutonium dans les déchets ultimes : tout est réutilisé en MOX* » précise Christophe Poinssot, chef de Département au CEA-DEN. Ainsi, chaque année, le parc nucléaire ne génère plus que 50 tonnes de déchets ultimes, contre 1 200 tonnes avec un cycle ouvert ; les 200 tonnes de combustible usé (MOX + URE) sont entreposés avant une utilisation ultérieure. En France, les étapes de l'aval du cycle du combustible nucléaire – extraction de l'uranium et du plutonium du combustible UOX usé, fabrication du MOX avec le plutonium récupéré, vitrification des déchets ultimes – sont pleinement opérationnelles dans les usines de La Hague et MELOX, à partir de technologies créées pour la plupart par le CEA-DEN¹. Les procédés sont si efficaces que plus de 99,9 % du plutonium est aujourd'hui récupéré. Quant aux contaminants, il n'en reste qu'un millionième voire un milliardième de la

charge de départ. Est-ce à dire que tout est définitivement au point ?

Optimiser les procédés de vitrification des déchets

« *Les performances sont déjà remarquables mais le CEA-DEN poursuit sa R&D en lien étroit avec AREVA. Il s'agit d'adapter les procédés à l'évolution des combustibles. Nous voulons aussi les optimiser afin d'obtenir les mêmes résultats à moindre coût et en cherchant encore à optimiser la gestion des déchets ultimes* », répond Bernard Boullis, directeur de Programme au CEA-DEN. L'essentiel de ce travail se déroule à Marcoule. Par exemple, l'extraction et la purification du plutonium et de l'uranium, aussi performantes soient-elles, se déroulent aujourd'hui en trois étapes et autant d'ateliers. « *Nous travaillons sur une nouvelle approche qui permettrait de tout réaliser en une étape, dans un seul atelier, avec des quantités plus faibles de produits chimiques afin de réduire les rejets de l'usine* » explique Christophe Poinssot.

Une fois le plutonium et l'uranium récupérés, les déchets ultimes – produits de fission et actinides mineurs ►

- **UOX** (Uranium Oxydes) : combustible nucléaire, habituellement utilisé dans les réacteurs, à base d'oxyde d'uranium.

CYCLE DU COMBUSTIBLE

Coulée d'un verre de conditionnement des déchets radioactifs à Marcoule.



– sont calcinés, vitrifiés et coulés dans des « colis » destinés au stockage géologique profond (voir encadré). Si les colis eux-mêmes sont parfaitement définis, il reste des pistes d'optimisation des procédés. Ainsi, l'élaboration du verre fondu contenant les déchets s'effectue classiquement à plus de 1000 °C dans des pots de fusion métalliques qui s'endommagent sous l'effet de la corrosion et de la chaleur. Il faut donc régulièrement les remplacer, ce qui constitue autant de déchets technologiques à gérer. Les équipes du CEA-DEN de Marcoule ont mis au point une nouvelle technique, implantée en 2010 sur une des six lignes de vitrification de l'usine de La Hague : le « creuset froid ». Dans ce procédé, la paroi métallique du « pot » est

refroidie par circulation d'eau froide. Le creuset est alors rempli d'une charge de verre qui est fondue par induction avant l'introduction des déchets. Une fine couche de verre solide se forme au contact de la paroi froide, séparant la paroi du four du verre fondu et des déchets radioactifs. Ainsi protégé de la chaleur et des radiations, le creuset dure beaucoup plus longtemps et permet l'élaboration de matériaux plus corrosifs.

Vers un nouveau procédé pour traiter les déchets issus de la production du MOX

Autre projet de développement mené par le CEA², en lien avec l'Andra³ et AREVA : le traitement et le conditionnement des déchets technologiques solides, mélange de métaux et de matières organiques (vinyles, polyéthylène, gants en polymères) issus du fonctionnement de l'usine MELOX qui produit le MOX. Beaucoup moins radioactifs que les déchets du combustible, ils doivent cependant être stockés dans des colis idoines. C'est là qu'interviendrait un procédé innovant, appelé PIVIC, qui vise à les traiter et les conditionner en une seule étape. Son principe : les déchets sont introduits dans un four et sont incinérés par une torche à plasma sur un bain de verre fondu. Les cendres résultantes sont incorporées au verre et le métal fondu se retrouve au fond du creuset qui constitue le conteneur primaire du déchet. « Ce procédé, aujourd'hui à l'étude, rassemble toutes nos compétences : incinération par torche à plasma, vitrification, fusion par induction, traitement des gaz, etc. » souligne Luc Paradis, chef du Département Études du traitement et du conditionnement des déchets du CEA-DEN. Le développement de PIVIC, qui devrait entrer en service à La Hague au cours de la prochaine décennie, mobilise aujourd'hui une quinzaine de personnes à Marcoule.

De manière générale, les équipes du CEA-DEN apportent en permanence leur soutien à AREVA pour faire évoluer l'usine de La Hague. Ces experts interviennent régulièrement sur place utilisant notamment les codes de simulation numérique de l'usine, développés à la DEN, afin d'étudier des questions comme l'arrêt-redémarrage ou le vieillissement, par exemple. « Cette usine est encore là pour longtemps mais nous travaillons déjà sur des procédés innovants destinés aux usines futures » indique d'ailleurs Christophe Poinssot. ●

Notes :

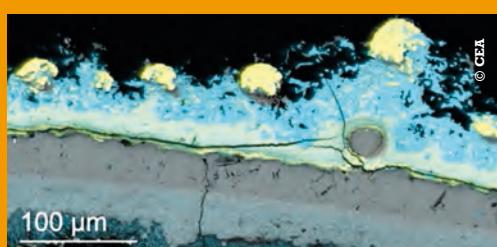
1. Aujourd'hui, seul AREVA produit du MOX dans le monde.

2. Dans le cadre du programme Investissements d'Avenir.

3. Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs.

LA TOUTE FIN DE CYCLE : LA QUESTION DU STOCKAGE

En 2004, l'Andra est chargée de concevoir et d'implanter un Centre industriel de stockage géologique (Cigéo). Les déchets y arriveront sous forme de « colis ». Le CEA, qui a largement contribué à leur conception, mène, en lien avec les industriels qui les produisent, des études pour fournir à l'Andra toutes les données sur leur comportement à long terme, en particulier leur évolution en conditions de stockage au cours des millénaires à venir. Il réalise notamment des expériences à Marcoule dans l'installation Atalante) pour identifier les mécanismes physico-chimiques d'altération. Ces expériences n'étant pas suffisantes pour extrapoler le comportement à long terme du verre en situation de stockage géologique, d'autres études sont conduites sur des analogues naturels (roches volcaniques) ou archéologiques (verres antiques trouvés en Méditerranée). Les résultats obtenus permettent d'établir et de qualifier des modèles mathématiques de l'évolution des colis. « Ils montrent que leur durée de vie dans les conditions d'un stockage souterrain, telles qu'on les envisage aujourd'hui pour le projet Cigéo, dépasserait plusieurs centaines de milliers d'années », conclut Luc Paradis.



▲
Produits de corrosion formés à la surface d'un échantillon d'acier corrodé *in situ* à 85 °C pendant 19 mois dans la formation argileuse du laboratoire souterrain Andra de Meuse/Haute-Marne.

ET DEMAIN : MULTIRECYCLER EN GÉNÉRANT TOUJOURS MOINS DE DÉCHETS

Multirecycler le plutonium, valoriser encore mieux la ressource en uranium et, sur le plus long terme, explorer la possibilité de transmuter les déchets les plus radioactifs, tels sont les principaux enjeux des systèmes nucléaires du futur.



Les essais de séparation poussée sont menés dans l'installation Atalante à Marcoule.

« *L*e cycle du futur, c'est d'abord le multirecyclage du plutonium et de l'uranium dans un parc comportant des RNR¹. La transmutation des actinides mineurs viendra ensuite... » prévoit Bernard Boullis. Si la France décide de lancer cette filière, il faudra adapter le retraitement des combustibles usés. Dans un premier temps, il s'agira d'extraire le plutonium du MOX usé, actuellement entreposé, et de le mélanger (à hauteur d'environ 25 %) à de l'²³⁸U appauvri pour alimenter un « premier » tour dans les RNR. « *Le traitement de combustibles MOX ne pose pas de réelles difficultés : AREVA a déjà traité plus de 70 tonnes de MOX usé dans ses usines de La Hague. Le principal enjeu provient de la proportion plus importante de plutonium* » souligne Christophe Poinssot, chef de Département au CEA-DEN. Cela requiert d'adapter l'usine à ce flux de plutonium, mais les bases du procédé restent essentiellement les mêmes.

Un recyclage récurrent du plutonium

Lorsque tout le plutonium du MOX usé sera épuisé, les RNR commenceront à « brûler » le plutonium qu'ils auront eux-mêmes créé par irradiation de l'²³⁸U. Il faudra donc retraiter leur combustible usé. « *Le principe de base est identique : on dissout le combustible dans de l'acide et on extrait le plutonium avec des molécules très spécifiques* » souligne Bernard Boullis. Il n'empêche. Les assemblages de combustible des RNR n'ont ni la même géométrie, ni les mêmes gaines (elles seront en acier et non en zirconium) que les assemblages actuels. Cela implique de revoir la « tête » de l'usine, cette partie dédiée au cisaillage des assemblages. Christophe Poinssot reste cependant optimiste : « *Nous avons démontré que nous savons techniquement le faire puisque nous avons déjà traité 25 tonnes de combustible usé de Phénix et Rapsodie, que ce soit au CEA à Marcoule ou à La Hague. Il s'agit essentiellement d'adapter*

ces procédés à l'échelle industrielle. » À ce stade, un parc de RNR de puissance équivalente à celle du parc REP actuel, fonctionnant en cycle fermé, consommerait chaque année 50 tonnes d'²³⁸U appauvri issu du stock déjà entreposé – en se passant ainsi d'uranium naturel – et produirait 50 tonnes de déchets ultimes².

Séparation et transmutation : réduire l'activité des futurs déchets

Restera à résoudre la question des actinides mineurs, éléments radiotoxiques aujourd'hui confinés dans le verre avec les produits de fission et principaux responsables de la très longue durée d'activité des déchets ultimes. La loi 2006-739 du 28 juin 2006 a chargé le CEA de « coordonner les recherches sur la séparation et la transmutation³ des éléments radioactifs à vie longue ». Or les RNR, précisément, peuvent consommer ces éléments. À condition toutefois de maîtriser, d'une part, leur extraction des combustibles usés pour les réinjecter dans le cycle, et, d'autre part, leur transmutation dans le cœur des RNR.

Les équipes de Marcoule y travaillent depuis une vingtaine d'années. Il a d'abord fallu trouver une molécule résistante aux radiations, capable d'extraire spécifiquement ces éléments de la solution acide dans laquelle a été dissous le combustible usé. « *Nous avons défini des molécules et les avons testées au laboratoire sur 15 kg de combustible réel. On a pu ainsi démontrer qu'on savait récupérer plus de 99 % des actinides mineurs* » affirme Christophe Poinssot. La transmutation, elle, ne peut se tester que dans le cœur d'un RNR en fonctionnement. Depuis l'arrêt de Phénix en 2009, les chercheurs ne disposent plus de moyens expérimentaux en France. « *Pour avancer sur ce point, il faut s'appuyer sur la coopération internationale jusqu'aux nouvelles possibilités de démonstration prévues dans la conception du projet Astrid* » (voir pages 6 à 9) indique Bernard Boullis. ●

• **Transmutation :** transformation d'un atome en un autre atome par réaction nucléaire. En l'occurrence, il s'agirait de fissionner les actinides mineurs pour obtenir des éléments toujours radioactifs mais à durée de vie moins longue.

Notes :

1. Le CEA-DEN étudie notamment une filière au sodium pour les réacteurs rapides de 4^e génération. Un projet de démonstrateur, Astrid, est aujourd'hui en phase d'avant-projet sommaire. Le CEA-DEN en est le maître d'ouvrage.

2. En réalité, les deux types de réacteurs pourront coexister longtemps dans le parc.



MOISSON D'INNOVATIONS POUR LE COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE



Fabrication du combustible en boîte à gants, dans l'installation LEFCA sur le centre CEA de Cadarache.



Produit industriel bien défini et dûment éprouvé depuis plusieurs décennies, le combustible nucléaire reste toutefois au cœur de nombreuses innovations. Des optimisations sont en effet nécessaires, tant pour répondre aux impératifs économiques et industriels actuels que pour préparer les défis de demain. Pour cause, le combustible est un assemblage complexe et compliqué à mettre en œuvre pour concilier performances et exigences de sûreté accrues. Le défi est relevé par les chercheurs du CEA-DEN qui maîtrisent savoir et savoir-faire sur l'ensemble de la chaîne : de la conception jusqu'à la caractérisation post-irradiation, en passant par la simulation numérique.

Dossier réalisé par Patrick Philippon



LE COMBUSTIBLE NUCLÉAIRE

Installé au cœur d'un réacteur nucléaire, le combustible subit des réactions de fission nucléaire et fournit de la chaleur. Cette dernière est transmise à un fluide caloporteur qui génère de la vapeur et actionne une turbine pour produire de l'électricité. La nature, la forme et le comportement du combustible varient en fonction des types de réacteurs et des applications. Présentation de cette matière et de ses enjeux de recherche dans un réacteur à eau pressurisée (REP).

Sa forme au cœur du réacteur

Le combustible se trouve sous forme de pastilles céramiques empilées dans une gaine métallique. On parle alors de crayons qui sont eux-mêmes regroupés en assemblages, dont l'agencement ordonné (en carré ou en hexagone) constitue le cœur du réacteur.

Les pastilles sont constituées de composés chimiques (souvent un oxyde) contenant la matière fissile. Ainsi, le combustible UO₂ comporte de l'isotope 235 de l'uranium (²³⁵U) et le combustible MOX de l'²³⁵U et de l'isotope 239 du plutonium (²³⁹Pu).

Pastilles de combustible



En chiffres

Pour un réacteur à eau pressurisée (REP) de 900 MW

3,66 mètres de pastilles d'UO₂ par crayon

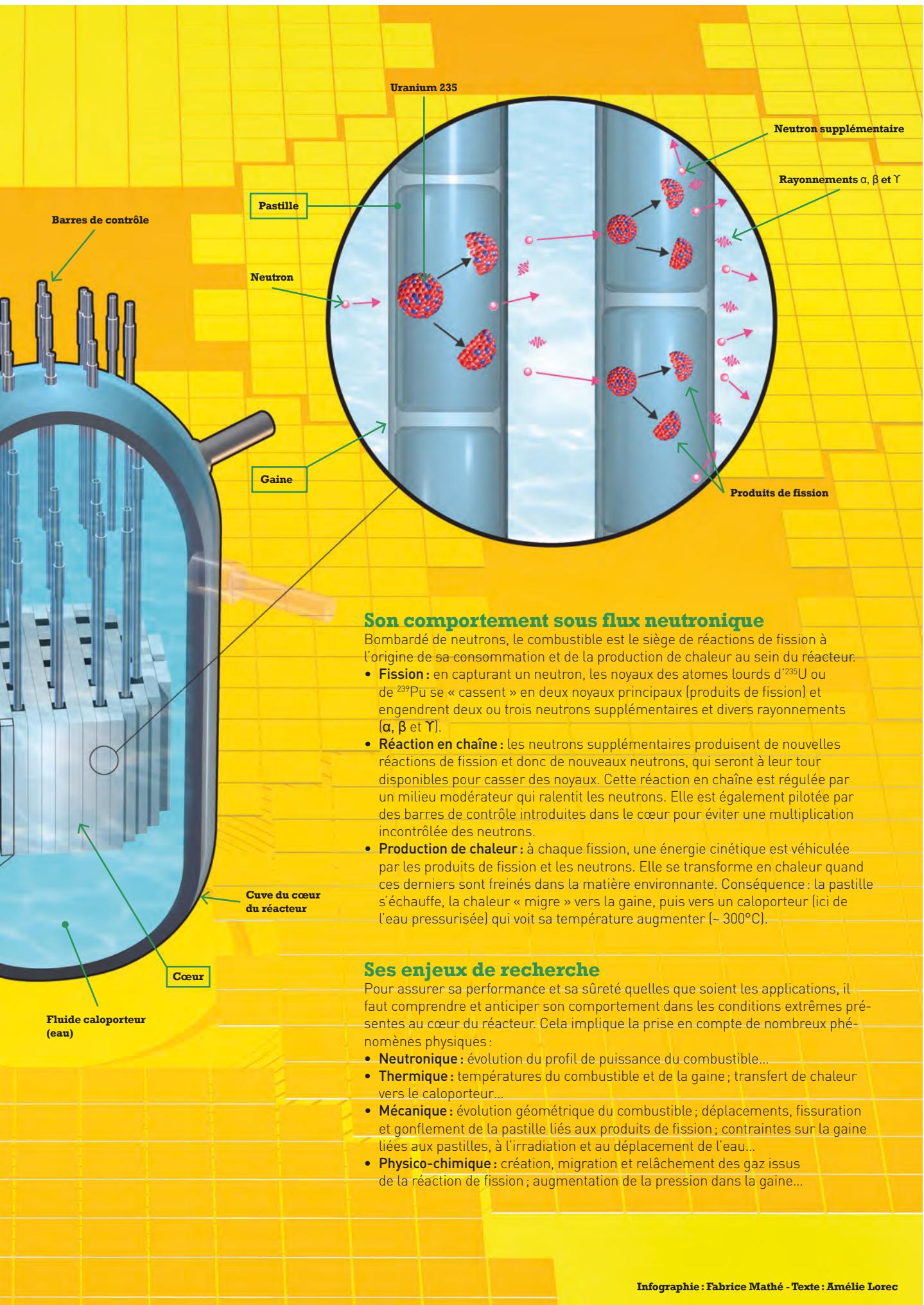
× 264 crayons par assemblage

× 157 assemblages dans le cœur

= 152 km de pastilles, soit **72** t de combustible

À SAVOIR

Les assemblages de combustible restent environ trois ans dans le cœur des différents réacteurs. En effet, au fur et à mesure de sa consommation, le combustible s'appauvrit en matière fissile et s'enrichit en produits de fission, ce qui ralentit les réactions de fission. Il devient alors nécessaire de remplacer le combustible usé par du neuf. Pour éviter un arrêt prolongé du réacteur, un tiers des assemblages est renouvelé tous les ans. Les plus récents étant placés à l'extérieur.



DU COMBUSTIBLE SUR MESURE

Si les petites pastilles d'oxyde d'uranium n'ont guère changé de forme depuis les années soixante-dix, leur composition et leur comportement continuent de faire l'objet de recherches poussées au CEA. Il s'agit en effet d'optimiser le combustible nucléaire en fonction de ses différentes applications : parc électronucléaire, propulsion nucléaire, réacteurs de recherche ou de quatrième génération... Avec, toujours en ligne de mire, des exigences de sûreté et de performance.



Premières pastilles de combustible pour le démonstrateur technologique Astrid. Leur particularité : un trou central pour éviter l'échauffement trop important en position centrale.

Installation Leca-Star, à Cadarache, où sont analysés les combustibles en cours de fabrication.

Depuis des décennies, le parc électronucléaire français utilise le même matériau combustible : de l'oxyde d'uranium (UO_2) sous forme de petites « pastilles » cylindriques¹, empilées dans des gaines métalliques, les « crayons », regroupées dans des dispositifs appelés « assemblages ». Tous ces objets ont conservé, peu ou prou, la même géométrie qu'à l'origine de la filière



Notes :

1. Produits à raison de quelques centaines de milliers par jour à l'usine FBFC (Franco Belge de Fabrication du Combustible, filiale d'AREVA) à Romans en Isère.

2. Les départements DMN (matériaux nucléaires) et DPC (physico-chimie) sont également impliqués dans ces recherches (voir article p.30).

des réacteurs à eau pressurisée (REP) dans les années 1970. Le combustible des centrales nucléaires est donc un produit industriel bien défini et dûment éprouvé, tout comme celui des sous-marins et porte-avions à propulsion nucléaire. Pourtant, à Cadarache, des chercheurs de la Direction de l'énergie nucléaire (CEA-DEN) travaillent toujours d'arrache-pied sur le sujet ; tant sur le combustible lui-même au sein du Département d'études des combustibles (DEC) que sur le comportement des assemblages, l'une des spécialités du Département de technologie nucléaire (DTN)². Pourquoi ?

Optimiser le comportement du combustible quels que soient les enjeux

Même dans les filières établies, le combustible évolue et voit ses performances améliorées. « Nous sommes constamment sollicités par nos partenaires industriels car la composition précise du matériau dépend du contexte économique. Nous pouvons moduler la quantité de plutonium ou l'enrichissement de l'uranium selon l'évolution du coût de la matière première, ou encore y ajouter des additifs pour améliorer son fonctionnement. Lors de chaque évolution, il faut étudier le comportement du nouveau combustible, notamment pour garantir la

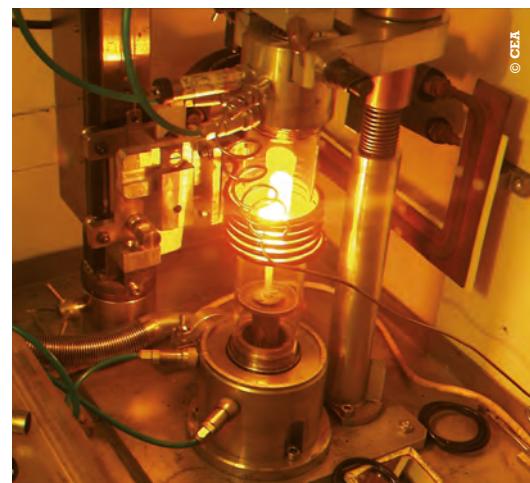
sûreté qui est l'une de nos missions essentielles (voir encadré). Cette démarche nous a permis, par rapport aux années quatre-vingt, de doubler la durée de « séjour » du combustible des REP et, surtout, de multiplier par deux l'énergie produite par chaque assemblage mis en réacteur », répond Philippe Prené, chef du DEC au CEA-DEN. Autre exemple : au lieu de faire fonctionner les réacteurs en permanence à leur puissance nominale, EDF a décidé, dans les années quatre-vingt, de pratiquer le « suivi de charge » dans certains réacteurs, c'est-à-dire de moduler leur puissance en fonction de la demande, grâce aux **barres de contrôle**[•]. Celles-ci sont en général descendues pendant la nuit et remontées au moment du pic matinal de consommation, mais des manœuvres encore plus rapides peuvent intervenir pour équilibrer le réseau. « *Cette pratique économise du combustible mais sollicite davantage son matériau qui, au lieu de travailler en conditions constantes, subit des cycles de température et d'irradiation. Nous devons alors nous assurer qu'il conservera toutes ses propriétés* », précise Bruno Collard, chef de laboratoire au DEC au CEA-DEN. Les activités de recherche du CEA-DEN sur le combustible peuvent également être orientées par des choix stratégiques. Par exemple, lorsque la France a décidé de recycler le plutonium du combustible usé, avec une vingtaine de réacteurs EDF consommant³ un mélange d'oxydes d'uranium et de plutonium (le MOX), il a fallu tester, caractériser et faire valider ce nouveau matériau combustible par l'Autorité de sûreté nucléaire. De même, il revient au CEA de concevoir et mettre au point les combustibles des réacteurs à venir, comme celui du RJH⁴ ou des réacteurs à neutrons rapides (RNR) de 4^e génération, dont le démonstrateur technologique Astrid⁵. Et si, pour ce dernier, l'option de la **transmutation des actinides mineurs**[•] est retenue, il faudra savoir les incorporer dans le combustible des futurs RNR.

Maîtriser la tenue du combustible dans des environnements extrêmes et complexes

Dans tous les cas, l'affaire est d'autant plus complexe qu'un combustible nucléaire mène une vie difficile. « *Ses propriétés de base – forme, structure microscopique et même composition élémentaire – varient fortement en utilisation normale* » souligne Philippe Prené. En effet, conçu pour dégager de l'énergie, il atteint des températures extrêmes : dans le cas des REP, le cœur de la pastille est à 1 100 °C alors que l'eau autour de la gaine est à environ 300 °C. Sous l'effet des contraintes dues à la dilatation thermique plus importante au centre qu'à la périphérie des pastilles, celles-ci finissent par se fragmenter et adopter une forme générale en « diabolo ». Par ailleurs, l'**irradiation**[•] altère la composition du combustible mais aussi sa microstructure : les **produits de fission**[•] générés par la réaction de fission nucléaire induisent à leur tour un gonflement de la pastille et une augmentation de la pression à l'intérieur de la



Échantillon de combustible préparé en vue d'un examen métallographique en cellule blindée au Leca-Star.



Four expérimental qui permet, en cellule blindée, de porter le combustible à des températures proches de 2000°C afin d'étudier son comportement dans des situations extrêmes.

gaine. Gaine dont le matériau, tout comme celui des assemblages, doit également supporter le milieu très agressif de l'irradiation et les efforts mécaniques dus au combustible lui-même, à la pression et au déplacement de l'eau.

Pour appréhender tous ces phénomènes, à la demande des industriels ou pour des projets de recherche à long terme, les équipes du DEC ont construit une démarche sur l'ensemble de la chaîne de valeur. Les concepteurs entrent en jeu les premiers ; utilisant des codes de simulation, ils déterminent un matériau combustible, une géométrie d'assemblage et des règles de fonctionnement (voir article page 30). Viennent ensuite les fabricants qui élaborent ce qu'ont imaginé les précédents et ceux qui le testent (voir article pages 31-32) ; enfin ceux qui le caractérisent à toutes les échelles (voir article page 33). Et toutes ces données enrichissent le *corpus* de connaissances nécessaires à la compréhension et simulation du comportement des combustibles. La boucle est ainsi bouclée... ●

RÉSISTER AUX ACCIDENTS

Au-delà de l'irradiation « normale », des expériences extrêmes sur de faibles quantités de matériau radioactif sont également réalisées. Enjeu : déterminer les limites du matériau pour appliquer les marges de sécurité adéquates. Pour être validé par l'Autorité de sûreté nucléaire (ASN), un combustible doit en effet faire ses preuves en conditions normales et démontrer qu'il peut subir des accidents sans disperser de radionucléides dans l'environnement.

Parmi les principaux risques testés sur des installations dédiées¹ : emballage de la réaction de fission nucléaire (« accident d'injection de réactivité ») dû par exemple à l'éjection inopinée des barres de contrôle ; ou fusion du cœur suite à la perte de réfrigérant primaire (cas de l'accident de Three Mile Island aux États-Unis en 1979).

• **Barre de contrôle** : pièce mobile (également appelée grappe de commande) insérée dans le cœur d'un réacteur pour diminuer le facteur de multiplication des neutrons et ainsi contrôler les réactions en chaîne de fission nucléaire.

• **Transmutation des actinides mineurs** : transformation, par réaction nucléaire, des actinides (autres qu'uranium et plutonium) en produits de fission.

• **Irradiation** : émission de rayonnements ionisants, par exemple lors de la réaction de fission nucléaire.

• **Produits de fission** : nucléides générés par la fission d'un noyau lourd (²³⁵U ou ²³⁹Pu) qui se scinde en deux nouveaux atomes plus légers.

Notes :

3. À partir des années 2000.

4. Réacteur Jules Horowitz, en construction à Cadarache.

5. Pilote industriel, au stade d'avant-projet sommaire, dont la conception est confiée au CEA.

1. Respectivement, les réacteurs Cabri et Phébus, à Cadarache.

INCONTOURNABLE SIMULATION NUMÉRIQUE

Présente de la conception jusqu'à la caractérisation du combustible, la simulation numérique est un outil indispensable. Adossée à l'expérimentation, elle permet de comprendre le comportement du combustible sous irradiation de l'échelle atomique à celle de l'assemblage, et de guider les chercheurs tout au long de l'élaboration du précieux produit.

« La modélisation-simulation intervient dans toutes les étapes de la R&D du combustible : conception, fabrication, préparation et interprétation des expériences, exploitation des résultats de caractérisation. Et il faut beaucoup de physique et de données expérimentales pour construire un bon modèle qui ait les capacités de prédiction souhaitées... » explique Carole Valot, ingénieur au DEC du CEA-DEN, tout en insistant sur le va-et-vient permanent entre l'expérimentation et la simulation, chacune « nourrissant » l'autre.

Comprendre, modéliser et simuler le comportement d'un combustible est une entreprise à la mesure de la complexité de l'objet qui implique, en plus de l'expertise des équipes du DEC, celle du DMN et du DPC. Il faut en effet être capable de prévoir des phénomènes très divers : création de nouveaux éléments (par exemple les produits de fission), formation de cavités et bulles au sein du matériau, fissuration des pastilles, migration de matière¹, déformations de la pastille, de la gaine, des assemblages. Pour cela, le CEA-DEN dispose d'une plateforme de simulation inédite (voir encadré) qui permet de développer toute une gamme de modèles s'intéressant à des durées allant de la picoseconde à l'année, et à des échelles de taille comprises entre le cortège

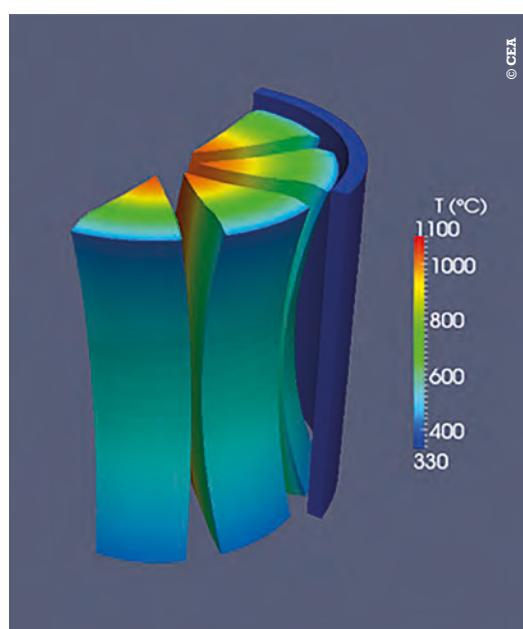
d'électrons et la pastille voire l'assemblage. « Notre objectif est que toutes ces échelles communiquent. Or, elles font intervenir des experts de domaines très différents² qui peuvent parfois avoir du mal à se comprendre. C'est l'un des enjeux de la simulation multi-échelle ! » précise la chercheuse.

De l'échelle atomique à celle du grain pour coupler les phénomènes physiques fondamentaux et les données expérimentales

Concrètement, deux approches complémentaires sont mises en œuvre. La première se dédie à la compréhension physique des phénomènes de base, en partant de l'échelle atomique pour « monter » de proche en proche jusqu'au grain³. Cette recherche de base utilise des modèles de la physique des matériaux et des codes développés par des équipes universitaires même si ces derniers doivent être adaptés car ils ne prennent pas forcément en compte les problématiques propres aux combustibles nucléaires. « Nous n'avons pas les moyens de tout développer. Pour être à la pointe, nous utilisons ce qui se fait de mieux ailleurs et collaborons avec d'autres chercheurs du CEA et du monde académique. » La seconde approche prend le problème par l'autre bout. Il s'agit de développer, avec EDF et AREVA, des codes de performance simulant le comportement sous irradiation de la pastille ou du crayon (en s'appuyant sur des méthodes numériques développées dans le cadre de collaborations académiques) et les enrichir de données d'observation. « Ces deux approches de simulation se rejoignent au niveau du grain, qui est finalement une échelle clé, réceptacle de nombreuses informations », constate Carole Valot. ●

UNE PLÉIADE DE MODÈLES ET DE DONNÉES

À Cadarache, la plateforme de simulation du comportement des combustibles PLEIADES rassemble les codes de performance de toutes les filières de réacteurs, en particulier deux codes majeurs : Alcyone pour les REP et Germinal pour les RNR. Elle abrite l'ensemble des modèles physiques ainsi que toutes les bases de données du CEA-DEN et de ses partenaires. « Une des grandes forces du CEA » conclut Carole Valot.



- Notes :**
1. Formation d'un trou au centre des pastilles irradiées dans les réacteurs à neutrons rapides.
 2. Physique, chimie, thermique, thermodynamique, mécanique.
 3. Le matériau est constitué d'une poudre fine (grains de quelques microns) agglomérée par frittage.

Simulation du comportement d'une pastille soumise à une montée rapide de la puissance du réacteur, provoquant sa fracture au centre et occasionnant une pression sur la gaine.



◀ Élaboration des carbures d'uranium et de plutonium dans un four en graphite haute température, dans une boîte à gants du Lefca.

UNE CHAÎNE DE RÉALISATION QUI CARBURE

Conception, fabrication, expérimentation, caractérisation : chacune des étapes qui jalonnent la recherche sur le combustible est un terrain d'innovation pour les équipes du CEA-DEN.

Tout part de l'expression d'un besoin. Tout d'abord, quelle sera la mission du réacteur ? S'il faut produire de l'électricité, le combustible fonctionnera en régime continu et on privilégiera la puissance et la compacité du cœur. S'il est destiné à la recherche, nécessitant une succession de démarages et arrêts et donc de bons échanges thermiques, le combustible sera façonné de préférence en plaques plutôt qu'en crayons. Par exemple, le futur RJH utilisera des plaques cintrées assemblées en cylindres concentriques. De même, la conception des combustibles des futurs RNR passe par l'innovation. Ainsi, pour répondre aux exigences du projet de démonstrateur technologique Astrid, une approche intégrée conception-dimensionnement-simulation a permis au CEA-DEN de proposer des objets très innovants, brevetés, en particulier en termes de sûreté passive¹.

De nombreuses recettes à la carte

Dans le cas des combustibles du parc actuel de REP, le matériau fait également l'objet d'innovations, tel que l'explique Bruno Collard, chef de laboratoire au CEA-DEN : « Les industriels nous sollicitent pour améliorer les performances tout en renforçant les marges de sûreté. » Ainsi, pour augmenter la proportion d'uranium fissile, et donc la durée d'utilisation, les chercheurs ont imaginé d'implanter des atomes de bore ou de gadolinium² capables d'absorber les neutrons surnuméraires dans le combustible neuf. Il s'agit ainsi de maintenir le plus longtemps possible l'équilibre entre puissance dégagée et absorption des neutrons. Autre enjeu : réduire l'émission gênante des gaz de fission, notamment en augmentant la taille des grains afin que les gaz aient plus de trajet à faire pour en sortir. Pour cela, les chercheurs ont proposé d'incorporer des éléments d'addition tels le chrome ou le nobium qui peuvent, de surcroît, présenter

l'avantage de diminuer la corrosivité de certains produits de fission. « En revanche, c'est plus compliqué à fabriquer, donc plus cher. Il faut donc être sûr de l'intérêt de l'innovation. De manière générale, le concept final est toujours une affaire de compromis » admet Bruno Collard. C'est ainsi qu'a été choisi l'oxyde d'uranium car bien que sa conductivité thermique ne soit pas la plus élevée, il fait preuve d'une grande stabilité sous irradiation, gonfle assez peu et s'avère facile à produire.

Des procédés de fabrication classiques, néanmoins adaptés à des environnements particuliers

Quoiqu'il en soit, une fois le concept défini, il faut réaliser le combustible pour pouvoir le tester. Un savoir-faire que maîtrisent des équipes du CEA-DEN : « Notre objectif est, non seulement, de fabriquer le combustible, mais aussi ➤

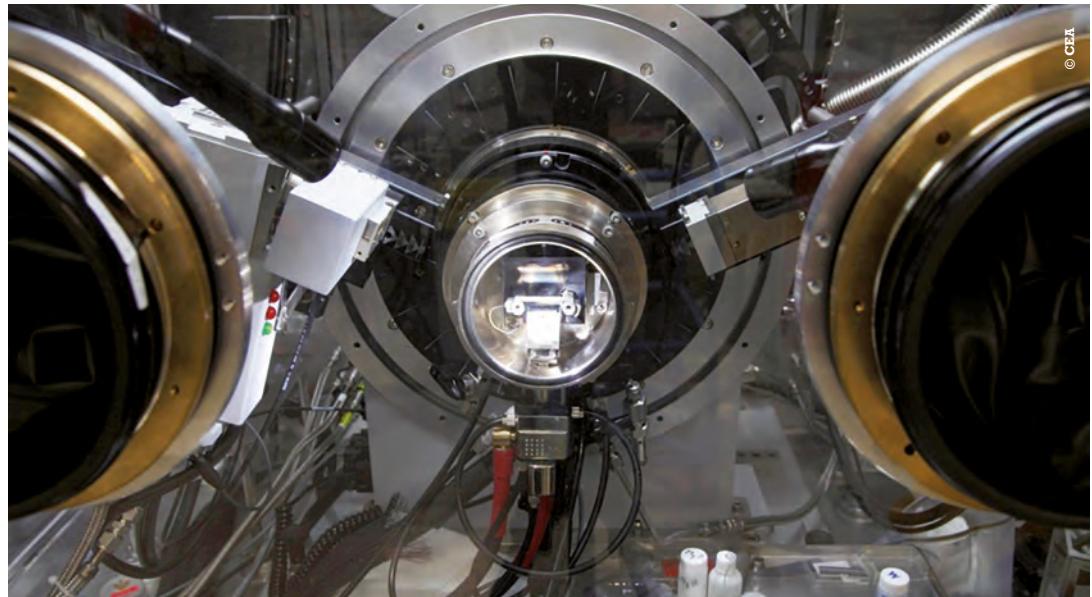


Notes :

1. Qui agit par les seuls effets de processus naturels (gravité, dilatation thermique), ne nécessitant donc pas de contrôle-commande ou d'alimentation électrique.

2. Poisons consommables.

◀ Pesée de poudres en boîte à gants du laboratoire UO₂ à Cadarache.



Appareil de diffraction des rayons X, unique en Europe, qui a nécessité cinq ans de développement pour pouvoir caractériser les matériaux d'actinides.

de le caractériser à toutes les étapes du procédé » résume Meryl Brothier, chef de service au DTEC au CEA-DEN. « Nous pouvons aller de quelques grammes à plusieurs centaines, soit la limite basse de l'échelle industrielle » précise-t-il en insistant sur la nécessité de développer des procédés de fabrication industrialisables. D'autant que les conditions de manipulation ne sont pas les mêmes en fonction du type de combustible : « le travail avec du plutonium implique une gestion et des précautions supplémentaires par rapport à celui de l'uranium ». Dans les deux cas, le déroulement des opérations est le même : préparation des poudres de départ (broyage, mélange, tamisage), mise en forme dans des presses (pour obtenir les pastilles), frittage en four sous atmosphère contrôlée, éventuelle rectification géométrique. Bref, le procédé classique de fabrication d'une céramique ! « Plusieurs personnes ici ont fait l'école de céramique de Limoges » glisse d'ailleurs Philippe Prené, directeur du DEC au CEA-DEN.

Des outils de caractérisation pour des contrôles qualité optimisés

De la matière première au produit final, tout doit être précisément caractérisé. Les chercheurs disposent donc de toute une batterie d'outils sophistiqués, qui distingue d'ailleurs le laboratoire d'une installation industrielle : analyses thermodifférentielle et thermogravimétrique, dilatomètres, céramographie. Avec, en plus, un dispositif de diffraction des rayons X unique en Europe pouvant déterminer la structure cristalline d'un matériau en température jusqu'à 1800 °C-2000 °C suivant l'atmosphère considérée. La fabrication du combustible est alors achevée. Reste toutefois à le qualifier, en irradiant des pastilles dans un dispositif (lire encadré), et à caractériser les résultats de cette expérimentation (lire article page 33). ●

LE COMBUSTIBLE À L'ÉPREUVE DE L'IRRADIATION

Différentes démarches coexistent pour expérimenter les effets de l'irradiation sur les combustibles. L'une d'elle consiste à placer des pastilles voire des crayons dans un réacteur réel (expérimental comme Cabri, Phébus et bientôt le RJH¹, ou du parc électronucléaire). Cela permet d'acquérir une connaissance du comportement global du combustible en situation représentative (exigée des autorités de sûreté). Mais, comme il importe également de pouvoir attribuer à une cause précise les effets constatés, d'autres expériences instrumentées sont nécessaires.

© CEA-IPSN



Le réacteur Phébus à Cadarache.

Notes :

1. Réacteur d'irradiation qui remplacera le réacteur Osiris du CEA à Saclay dont l'arrêt a été décidé pour fin 2015.
2. Sur des accélérateurs comme JANNus à Saclay ou le Ganil à Caen.
3. Une ligne du synchrotron Soleil à Saclay, appelée Mars, est aujourd'hui dédiée aux matériaux et combustibles nucléaires.

AU CŒUR DU COMBUSTIBLE IRRADIÉ



Pour qualifier un combustible, les chercheurs étudient son comportement sous irradiation. Pour cela, ils bénéficient d'importants dispositifs expérimentaux et de micro-analyse. D'eux dépend la validation des innovations pour augmenter ses performances et sûreté.

« *I*l ne faut pas se le cacher, les combustibles irradiés contiennent des produits extrêmement radiotoxiques. Notre laboratoire est conçu en conséquence : toute la chaîne de caractérisation s'effectue dans des cellules blindées aux parois de béton épaisses d'un mètre avec des hublots de verre au plomb encore plus épais. Et tout se fait en télé-manipulation. » prévient Jean Noirot, ingénieur du DEC¹ au CEA-DEN. Car de cette caractérisation « post-irradiation » dépendent de nombreuses innovations. Par exemple, les équipes ont développé un combustible pour le RJH en imaginant un matériau à base d'uranium métallique allié à du molybdène (UMo). Elles l'ont irradié dans Osiris puis rapatrié pour analyse à Cadarache : « nous avons alors découvert un phénomène d'interdiffusion entre la matrice et le combustible ainsi que la formation de cavités à certaines interfaces qui ont conduit le combustible à se déchirer. Si cela avait été repéré lors des premiers examens in situ dans Osiris, notre analyse a confirmé que le choix initial devait être remis en cause, ce qui fait qu'un combustible plus classique a été choisi pour le démarrage du RJH. Même si des recherches se poursuivent sur le combustible innovant, dans un cadre international » détaille Jean Noirot.

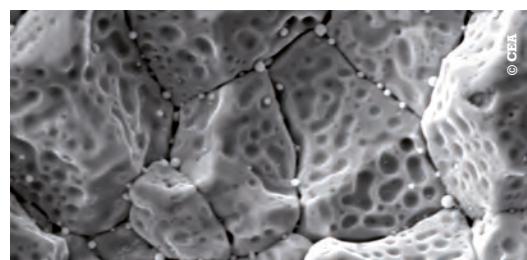
Observations microscopiques de la tenue du combustible

Pour atteindre de tels niveaux d'information, dans cet environnement extrême, les équipes du CEA-DEN disposent de moyens sophistiqués. En premier lieu, des microscopes optiques adaptés à l'examen d'objets radioactifs livrent des données métallo-céramographiques qui révèlent les fissures et la porosité du matériau irradié ainsi que l'existence de précipités de produits de fission. « La porosité est un phénomène important, à la fois pour la vie du combustible, son comportement en condition accidentelle et son stockage avant retraitement » explique le chercheur.

Des micro-analyses sont également mises en œuvre avec des appareils comme une microsonde électronique. Principe : focaliser un faisceau d'électrons sur l'échantillon poli qui réagit en émettant des rayons X dont l'analyse par

spectromètre révèle la nature des éléments présents. Cela permet une analyse locale de la composition du combustible. « On peut ensuite casser la pastille pour voir la surface des grains, les joints ou les bulles sans la modification induite par le polissage » poursuit Jean Noirot. « Voir » signifie en l'occurrence observer au microscope électronique à balayage. Dans les mois à venir, le DEC se dotera également d'un microscope électronique à transmission, outil très utilisé pour la caractérisation des matériaux qui a déjà démontré sa pertinence sur des combustibles non irradiés. Grâce à lui, des informations à l'échelle du nanomètre seront accessibles.

Toutes ces données, et bien d'autres encore, quantitatives ou qualitatives, servent ainsi à évaluer de plus en plus finement les mécanismes pilotant le comportement du combustible, et à donner des points de comparaison pour les modèles les reproduisant. Et la boucle est à nouveau bouclée ! ●



◀ Caissons blindés du Leca-Star qui abritent des équipements d'analyse microstructurale de combustibles irradiés.

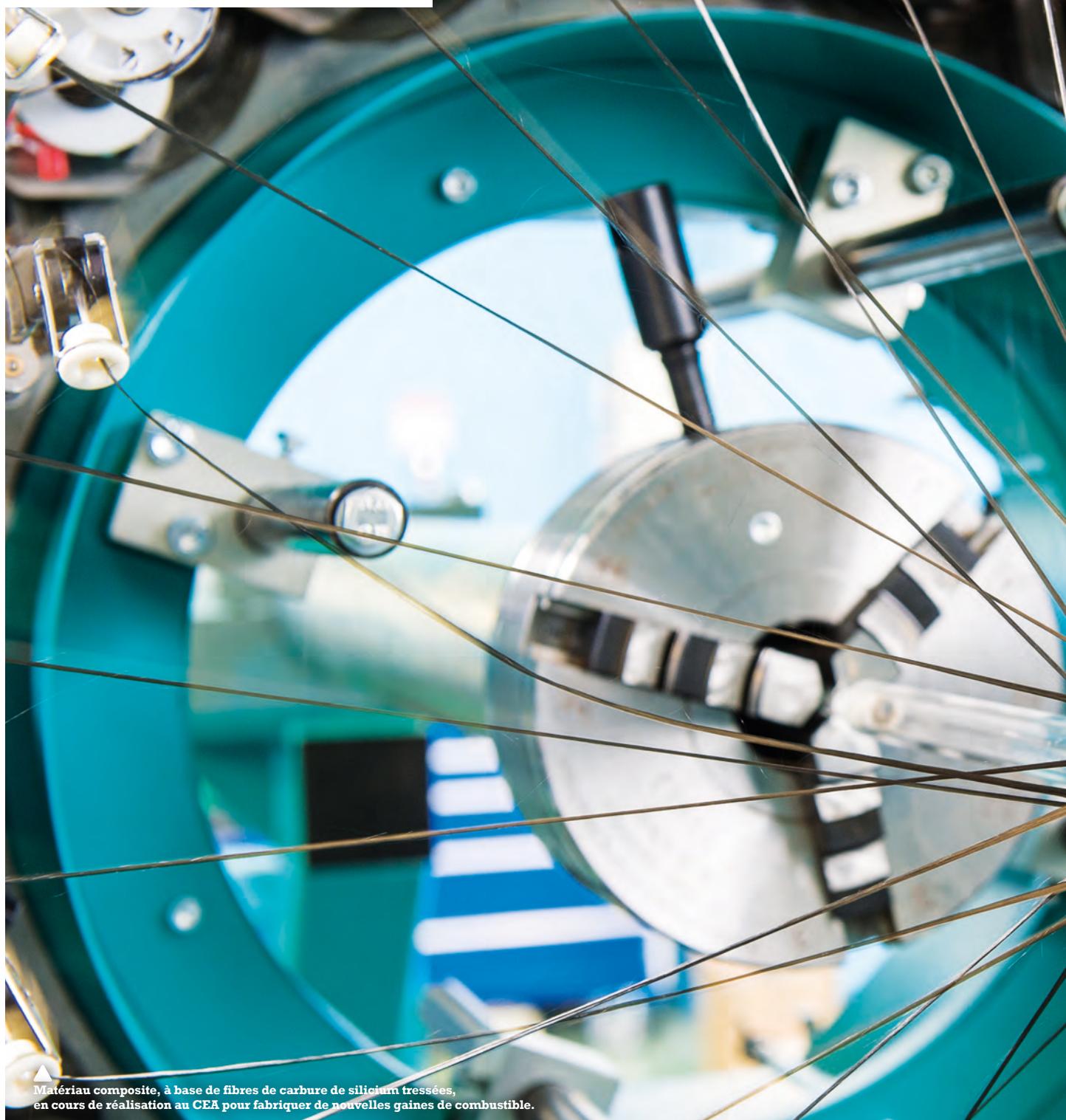


◀ Observation des bulles de gaz de fission des grains d'oxydes d'uranium irradié.

◀ Cratère formé artificiellement pour pouvoir analyser les gaz contenus dans les bulles.

Note :

1. Laboratoire d'examen des combustibles actifs (Leca).



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

DES MATÉRIAUX FAITS POUR DURER !





LES MATERIAUX 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 fonctionnement 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'expérience, 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 fonctionnement 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, directeur adjoint des activités nucléaires de Saclay : « 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

• **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. Materials Innovation for Nuclear Optimized Systems.

2. 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).

3. En service depuis 1959 sur le centre de Saclay.

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

5. Conçues par le CEA en 2011 puis 2013.



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

Le CEA-DEN dispose d'un ensemble d'installations de recherche constamment renouvelées pour les maintenir au meilleur niveau expérimental. En ce qui concerne les matériaux, les compétences et les installations sont regroupées dans le centre d'excellence MINOS¹.

Dans le domaine de l'étude du comportement des matériaux, la plateforme JANNuS² 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 LECI³ reçoit directement des échantillons de structures métalliques irradiées⁴ en provenance des réacteurs industriels ou de recherche pour les tester et les expertiser. Et ce, grâce à des cellules chaudes⁵ dont les dernières ont été mises en service en 2005.

Dans le cadre des études sur les réacteurs de 4^e génération, particulièrement le projet de démonstrateur technologique Astrid, deux installations dédiées, CORRONA et CORRONa⁵ 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.



© P. Stroppa/CEA

► **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 qui 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.

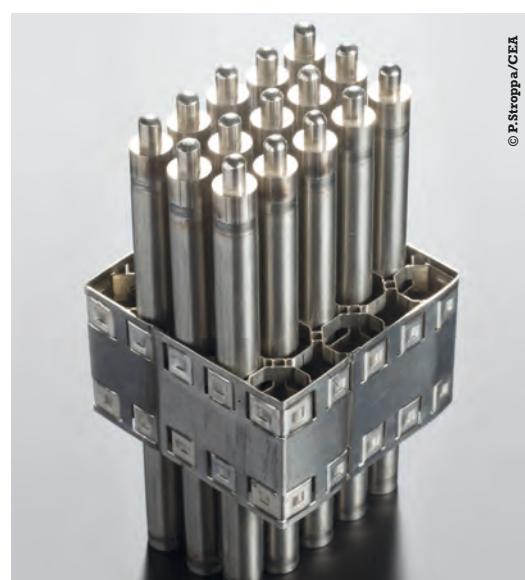
Au cœur des réacteurs actuels...

Deux missions orientent l'action du CEA-DEN en la matière. La première se manifeste par un soutien au parc de réacteurs actuel à la demande d'industriels, par exemple dans le cadre de l'élaboration des dossiers réglementaires qu'EDF doit constituer auprès de l'ASN¹ 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 4^e 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 pressurisée (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 DMN² et du DPC³, 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'études 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. ●



© P. Stroppa/CEA

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

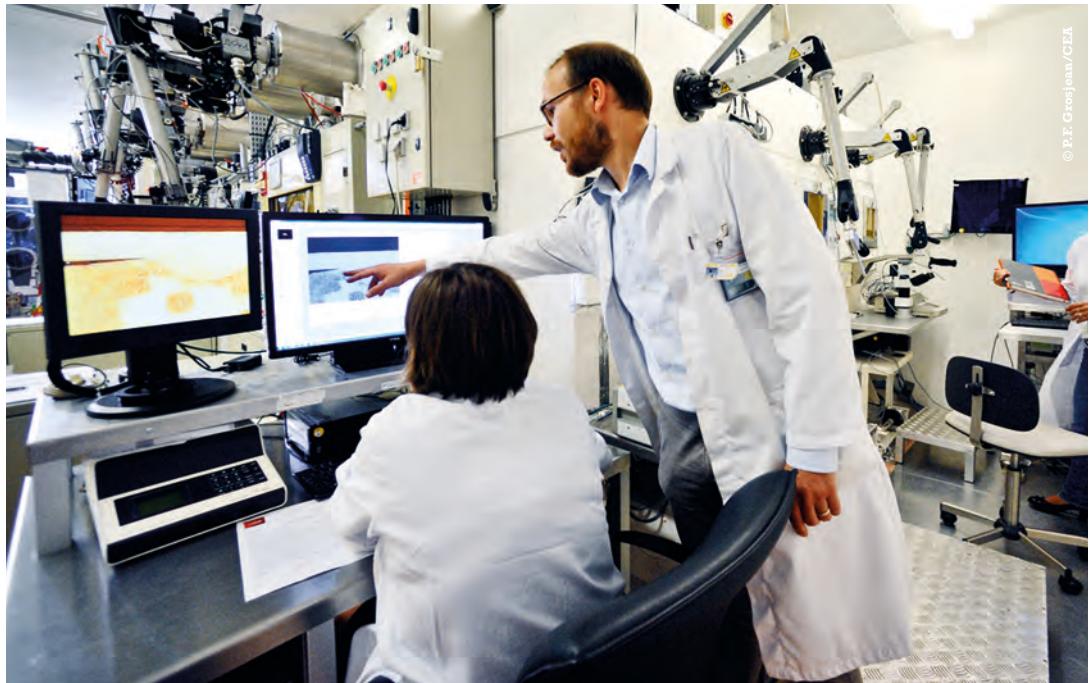
● **Barrière de confinement:** la radioactivité d'un réacteur nucléaire est confinée par trois barrières physiques : la gaine du combustible, l'enveloppe du circuit primaire (circuit de refroidissement primaire et cuve) et l'enceinte de confinement (bâtiment en béton entourant tous les éléments du réacteur).

Notes:

1. Autorité de sûreté nucléaire.
2. Département des matériaux pour le nucléaire.
3. Département de physico-chimie.

► **Portion d'assemblage combustible.**

Analyses métallographiques
de matériaux irradiés
en ligne Isidore du LECI.



© P.F. Grosjean/CEA

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.

• **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.

« *L*e 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 DMN¹ 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 cuve, 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 d'un dépôt de 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 matériau 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 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 les réacteurs expérimentaux, 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 36), 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-DEN². 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 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



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

au CEA-DEN, en illustrant par l'accident nucléaire de Fukushima Daïchi 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 fragiliser 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. ●



Notes :

1. Département des matériaux pour le nucléaire.
2. Département de physico-chimie (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'expérience¹. 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 4^e 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 service 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 4^e 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 Béchade 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 dpa¹ » 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 ODS². 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**³ de référence pour les études mais aussi d'évaluer certaines de ses caractéristiques sur l'installation JANNuS (voir page 36). 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.

Fabriqués, assemblés et testés 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**⁴, 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 spécifique⁵, 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 MARS⁶ 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 classiques⁵, de nouvelles techniques d'assemblage par soudage résistance ou par soudage friction ont été développées par les chercheurs⁶.

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 caloporeur 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**⁷. 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 d'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 caloporeur sodium de la 4^e 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.

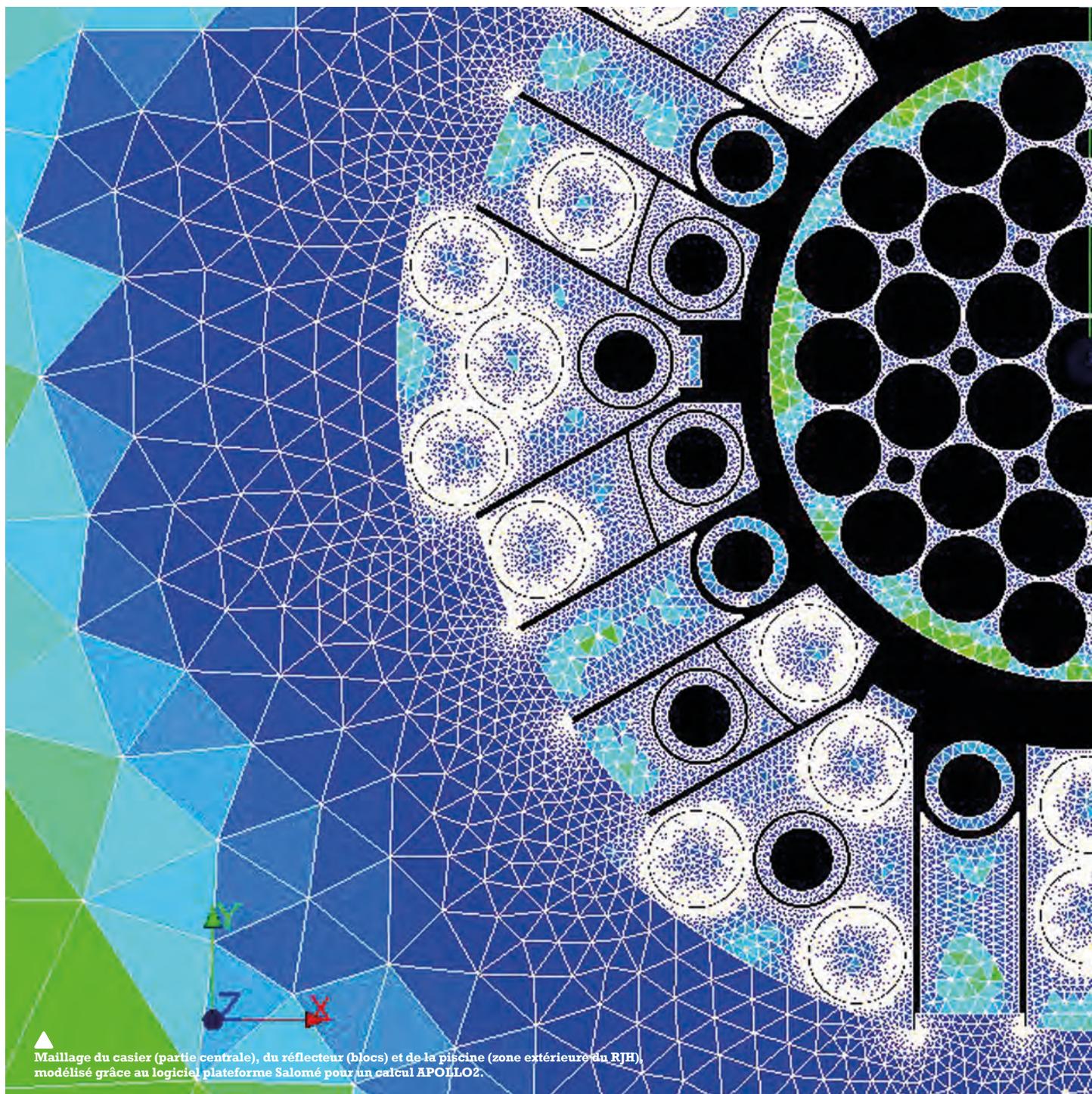
3. La déformation à haute température est plus faible et la recombinaison des défauts d'irradiation plus importante.

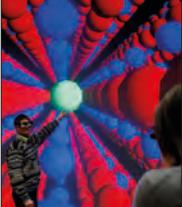
4. Ligne conçue et financée en partie par le CEA.

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

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

UNE RECHERCHE BIEN OUTILLÉE





Les recherches pour les systèmes nucléaires actuels ou du futur nécessitent des outils expérimentaux et de simulation spécifiques. Dans ce cadre, le CEA-DEN développe et exploite un parc complet et cohérent d'installations expérimentales, prépare le remplacement des installations vieillissantes et réalise de nouvelles installations telles que le Réacteur Jules Horowitz (RJH) à Cadarache. Dans le domaine de la simulation, il développe des codes dans tous les grands domaines du nucléaire (neutronique, thermo-hydraulique, mécanique, thermique, chimie du cycle et matériaux) afin de modéliser l'ensemble des phénomènes entrant en jeu dans un réacteur.

Dossier réalisé par Vahé Ter Minassian et Aude Ganier



**SIMULER POUR
MIEUX CONCEVOIR**

**RJH : LE RÉACTEUR
EXPÉRIMENTAL PREND FORME**

Infographie
LE RJH

SIMULER POUR MIEUX CONCEVOIR

Composante incontournable des études de conception et de sûreté des installations nucléaires, la simulation numérique permet de prédire leur fonctionnement normal, incidentel ou accidentel. Les codes développés par les spécialistes du CEA-DEN décrivent ainsi, avec toujours plus de précision, les phénomènes physiques à l'œuvre dans les réacteurs, pour le bénéfice des industriels et de la recherche nucléaire.

Le recours aux simulations numériques a toujours été une composante incontournable de la conception des installations nucléaires. « C'est une nécessité issue du constat que certaines expériences ne peuvent être réalisées en vraie grandeur, explique Patrick Blanc-Tranchant, chef du programme « Simulation » à la Direction de l'énergie nucléaire du CEA (CEA-DEN) à Saclay. En effet, les réacteurs nucléaires ne sont pas des produits industriels comparables aux voitures par exemple. Il est hors de question de leur faire subir un "crash test" pour les tester dans des situations extrêmes ! » Or, leur conception et leurs autorisations de construction nécessitent justement, pour des raisons évidentes de sécurité et de sûreté, de connaître ce qui se passe dans les cas limites. D'où le recours à des codes et des méthodologies de calcul (voir encadrés).

Des codes pour l'industrie et la recherche

Le CEA-DEN s'est donc fait une spécialité de ces simulations numériques d'un genre particulier. Dans le cadre d'accords tripartites et quadripartites signés avec EDF, AREVA et l'IRSN, et pour répondre à ses besoins propres, il mobilise 400 personnes pour élaborer des codes pour l'industrie et la recherche nucléaires. Cette activité comprend : la modélisation des phénomènes que l'on cherche à décrire, leur programmation informatique, la validation des outils de calcul développés, les expérimentations en support à la modélisation et à la validation ainsi que la mise

au point de méthodes de calcul faisant appel à ces codes. L'objectif est, il est vrai, à la hauteur des efforts déployés. Il s'agit d'être capable de reproduire sur un ordinateur, et avec le maximum de détails, les phénomènes physiques mis en jeu dans le fonctionnement d'une partie d'un réacteur ou de toute autre installation nucléaire, et cela, à des fins d'amélioration permanente de la maîtrise et de la connaissance des installations. Ce point est important : les codes de calcul et les méthodologies associées capitalisent en effet la connaissance accumulée au fil du temps sur la modélisation des systèmes.

Confrontation aux résultats expérimentaux

Même si chaque cas est particulier, avec ses contraintes et spécificités, la chaîne d'élaboration des codes comprend schématiquement trois étapes. Au cours de la première dite de « modélisation », les chercheurs, pour traiter un problème donné, commencent par identifier les phénomènes physiques élémentaires les plus pertinents qu'il s'agira de prendre en compte et de mettre en équations mathématiques. Durant la seconde phase, le « développement », ils s'attaquent à la programmation proprement dite du code et à sa mise en œuvre dans un logiciel. Enfin, dans le temps de la « validation », ils vérifient le bon fonctionnement du code en confrontant ses résultats à ceux d'autres outils numériques analogues et surtout à des résultats expérimentaux. Pour obtenir

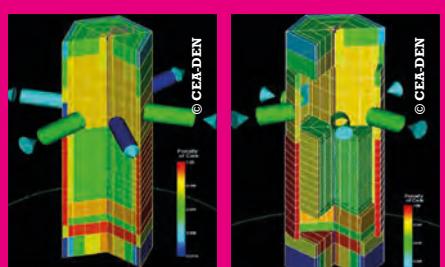
LES SAVANTS CALCULS D'APOLLO ET DE CATHARE

Développés dans les années 80, Apollo et Cathare sont des codes de calcul complémentaires. Apollo, l'une des composantes de la plateforme « neutronique » du CEA-DEN, sert à calculer les flux de neutrons générés par les réactions de fission afin d'établir la répartition de la puissance au niveau des assemblages de combustible ainsi que leur degré d'activité. Cathare est dédié aux phénomènes thermo-hydrauliques pour, notamment, calculer les écoulements « diphasiques » dans les situations accidentielles liées à la rupture d'une canalisation du circuit de refroidissement¹.

Dans les prochaines années, ces outils vont changer de génération. « Apollo 3 », opérationnel dans le courant de la décennie, pourra reproduire numériquement en 3D (contre 2D aujourd'hui), et de manière extrêmement fine, les phénomènes se manifestant dans les assemblages de combustible. Autre progrès : il sera en mesure de réaliser ces simulations pour n'importe quel type d'installations, y compris les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Disponible à partir de 2019, « Cathare 3 » aura également cette caractéristique « multifilière » et pourra également prendre en compte de nouveaux phénomènes, comme le transport en cas d'accidents de gouttelettes ou de films de liquide de refroidissement depuis le cœur.

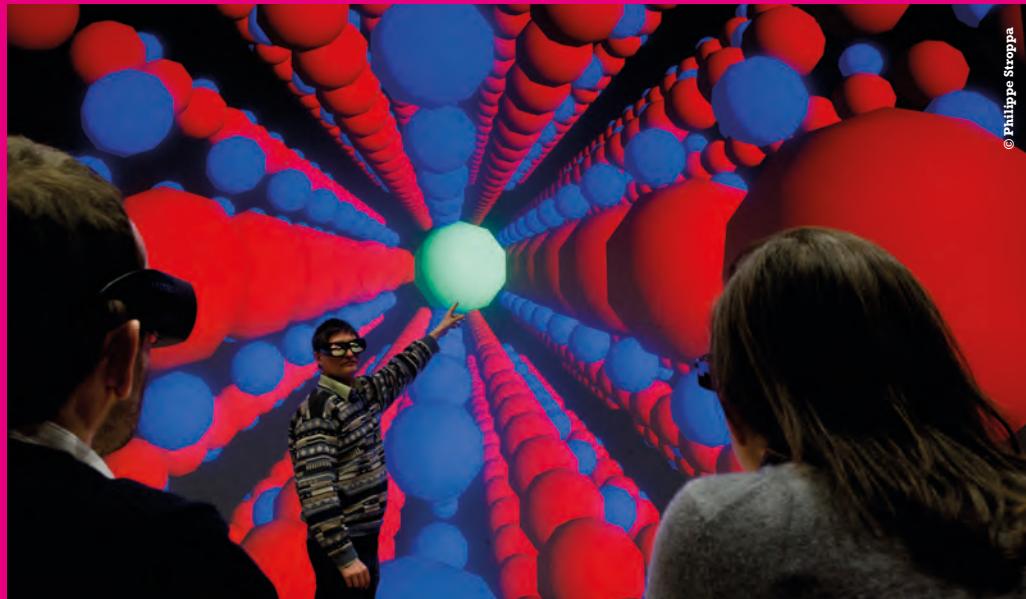
Note :

1. Lorsque le fluide caloporteur se met sous la forme d'un mélange de vapeur et de liquide.



Modélisation de la cuve d'un réacteur, avec 1 module 3D grâce à Cathare2 (à gauche) et 7 modules 3D avec Cathare3 (à droite).

VISUALISATION 3D SUR GRAND ÉCRAN



© Philippe Stroppa

Modélisation
du comportement
du combustible
à l'échelle atomique.

Avec ses 15 m² et 7 millions de pixels, le « mur d'images », dont s'est doté le CEA-DEN dans un auditorium de 40 places sur le site de Saclay, est un outil coopératif de visualisation et d'analyse des données. Il offre une capacité de visualisation simple et globale des simulations numériques, complexes et détaillées, réalisées par le CEA-DEN dans le domaine de l'énergie nucléaire. Avec les meilleures technologies de projection et de travail collaboratif, il permet de représenter en 3D la modélisation des phénomènes physiques qui se produisent dans les réacteurs en fonctionnement, de l'échelle d'un réseau cristallin d'atomes, au sein des matériaux d'un réacteur, jusqu'à l'échelle complète des écoulements de fluide dans le réacteur.

ces derniers, le CEA-DEN dispose notamment de boucles thermo-hydrauliques à Grenoble, de maquettes critiques à Cadarache, de moyens d'essais mécaniques à Saclay, de laboratoires de chimie du cycle à Marcoule. Ces comparaisons permettent de juger de la validité du code sur un domaine d'emploi donné. La conception de ces grands logiciels de calcul est toutefois beaucoup plus longue et complexe que ne pourrait le laisser penser ce cheminement simpliste et fait appel à un très grand nombre de compétences : physiciens, expérimentateurs, numériciens, informaticiens, mathématiciens... « *Il faut en effet, savoir que les principaux codes utilisés par le CEA-DEN ou ses partenaires industriels pour la conception et l'exploitation de réacteurs nucléaires peuvent atteindre jusqu'à 1 million de lignes d'instruction informatique de type "fortran" ou "C++"* », explique Patrick Blanc-Tranchant. *Leur mise au point peut durer dix ans et nécessite de suivre des procédures agréées par l'ASN. L'exploitant d'installation nucléaire est d'ailleurs tenu de transmettre à cet organisme un dossier de validation prouvant que l'outil numérique a correctement été validé dans son domaine d'emploi* ». Étant donné le temps de développement des codes, et leur durée d'utilisation qui peut s'échelonner sur 20 à 30 ans, il est impératif de bien anticiper les besoins qu'ils devront couvrir, et la diversité des machines informatiques sur lesquelles ils seront utilisés. « *C'est pourquoi, ajoute-t-il, les codes majeurs du CEA-DEN doivent être considérés comme des investissements à long terme, au même titre que les installations expérimentales.* »

Aller toujours plus loin

Est ainsi développé tout un ensemble de codes spécifiques à différents domaines du nucléaire : la neutronique, pour le calcul du niveau de radiation et la distribution de

puissance à l'intérieur du cœur d'un réacteur ; la thermo-hydraulique, pour celui du refroidissement du réacteur en situation normale de fonctionnement aussi bien qu'accidentelle ; la mécanique, pour calculer le comportement des structures, par exemple en situation de séisme. Certains codes sont exploités pour répondre aux besoins propres du CEA comme la conception du futur réacteur expérimental Jules Horowitz (RHJ) en construction sur son centre à Cadarache ou des chaufferies nucléaires des sous-marins et du porte-avions¹ de la marine nationale française. Ces mêmes codes sont utilisés par les partenaires industriels du CEA dans le cadre d'études de conception et de sûreté de leurs installations. Le CEA-DEN a également développé d'autres outils de simulation, dédiés aux procédés d'extraction liquide-liquide de l'usine de recyclage de combustible usé d'AREVA à La Hague ou à la vitrification des déchets. Enfin, certains codes sont également utilisés pour la formation de personnel sur des simulateurs d'installations. Dans le cadre d'accords de licence, ces différents codes sont largement distribués à l'étranger.

Pour l'avenir, les chercheurs du CEA voudraient aller toujours plus loin dans la finesse de description des phénomènes physiques élémentaires. Un certain nombre de simplifications fondatrices vont ainsi pouvoir être levées grâce aux possibilités offertes par le calcul intensif. Par ailleurs, un plus grand couplage des disciplines physiques, associé à l'utilisation des supercalculateurs de GENCI², permettra le développement d'outils de type « réacteur numérique » ou « usine numérique » pour une évaluation extrêmement rapide de l'impact sur une installation d'une modification d'un choix de conception ou d'une donnée d'entrée. ●

Notes:

1. Direction des applications militaires du CEA.
2. Grand équipement national de calcul intensif.



© G. Lescenechal/CEA

Vue aérienne du chantier du RJE sur le centre CEA de Cadarache, en mai 2015.

RJE : LE RÉACTEUR PREND FORME

Outil expérimental d'irradiation inédit en Europe, le réacteur Jules Horowitz (RJE) devra permettre l'étude des matériaux et des combustibles sous irradiation, en soutien aux réacteurs nucléaires actuels et futurs. Il assurera également la production de radio-isotopes médicaux.

Actuellement en construction sur le centre de Cadarache (voir encadré), le réacteur Jules Horowitz (RJE) viendra renforcer l'offre expérimentale indispensable aux recherches sur les systèmes nucléaires actuels et futurs. Ses missions seront nombreuses : soutenir l'exploitation et la gestion de la durée de fonctionnement des réacteurs existants et à venir ; permettre l'évolution de conception des réacteurs à eau qui seront en service pendant la majeure partie du siècle ; contribuer à l'amélioration des performances et des marges de sécurité des combustibles ; livrer des études de comportement du combustible en situations incidentelle et accidentelle ; participer aux développements de matériaux et combustibles innovants en support à différents concepts de réacteurs de quatrième génération. « *Par ailleurs, le RJE produira des radioéléments à usage médical, avec l'objectif de subvenir à 25 % des besoins de l'Union européenne en moyenne annuelle, voire 50 % temporairement* » précise Xavier Bravo, chef du projet RJE au CEA-DEN.

Une capacité d'irradiation à la pointe de l'innovation

À partir de sa mise en service, prévue d'ici la fin de la décennie, le RJE sera en mesure de fournir une capacité

d'irradiations expérimentales à la hauteur des enjeux : flux importants de neutrons ; différents environnements (pression, température, flux, chimie des calporteurs) reproduisant les conditions des réacteurs de puissance (réacteurs à eau, réacteurs à neutrons rapides refroidis au gaz et au sodium, etc.) ; **mesures en ligne** renforcées en cohérence avec l'état de l'art de la modélisation et de la simulation numérique ; **référentiel de sûreté** conforme aux exigences actuelles de conception, en nette évolution par rapport aux réacteurs existants conçus dans les années soixante.

Un consortium international autour du CEA

Le RJE mobilise un consortium international autour du CEA, propriétaire, exploitant nucléaire et maître d'ouvrage de cette installation. En mars 2007, la signature de l'accord de consortium pour la construction et l'exploitation du RJE a fédéré les premiers partenaires. Celui-ci regroupait autour du CEA, AREVA et EDF (France), CIEMAT (Espagne), NRI (République tchèque), SCK.CEN (Belgique), VTT (Finlande) et la Commission européenne. En 2009, le consortium s'est élargi au DAE (Inde), à l'IAEC (Israël) en 2011, au NNL (Grande-Bretagne) en 2014 et à STUDSVIK (Suède) en 2015. Le JAEA (Japon) s'est engagé concomitamment dans le programme RJE. ■

RETOUR EN IMAGES SUR LE CHANTIER



Les 7 et 8 janvier 2015, sur le centre du CEA de Cadarache, le bétonnage du dôme du bâtiment réacteur a été réalisé.

Cette opération aura nécessité un peu plus de 20 heures de travail et 730 m³ de béton auto-plaçant. Des chiffres à la hauteur de ce grand chantier (voir photos ci-dessus) :

- ① En 2009, les 200 plots parasismiques sont posés sur les fondations du RJH.
- ② En 2010, le bâtiment prend forme avec, au centre (zone blanche), l'emplacement de la piscine dans laquelle sera immergé le cœur du réacteur.
- ③ La coque de cette piscine est montée peu à peu en 2011.
- ④ Elle est pratiquement terminée en 2012.
- ⑤ Parallèlement, le dôme du bâtiment réacteur est construit au sol, sur le site.
- ⑥ ⑦ L'ossature métallique permettant de cuveler la piscine et le pont polaire (partie jaune) sont installés avant que le dôme ferme le bâtiment réacteur en décembre 2013. 80 % des travaux de génie civil sont alors achevés...
- ⑧ Début janvier 2015, le bétonnage du dôme du bâtiment réacteur est réalisé en une seule phase et à l'aide d'un béton auto-plaçant.

LE RJH

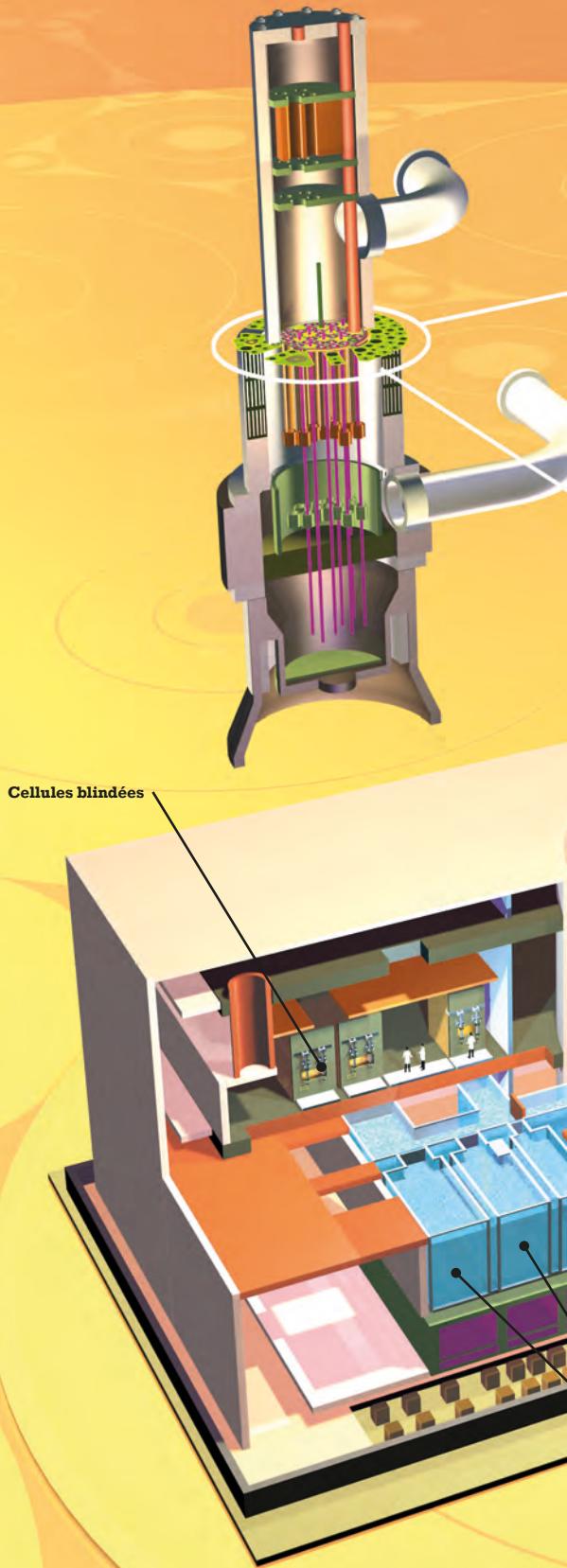
Le réacteur Jules Horowitz (RJH), en construction sur le centre CEA de Cadarache, est un réacteur expérimental. Dans cette installation nucléaire, une réaction en chaîne est créée et entretenue pour obtenir un flux de neutrons. Celui-ci permet d'étudier le comportement des matériaux et des combustibles des réacteurs nucléaires actuels et futurs, sous irradiation. Fort de ses hautes performances, le RJH assurera également la production de radioéléments médicaux pour le diagnostic et la radiothérapie.

Un réacteur d'irradiation technologique...

Le RJH est composé d'une zone réacteur et d'une zone d'analyses. Le cœur du réacteur, contenu dans un caisson de 70 cm de diamètre, a une puissance thermique de 100 MW. Il produira un flux de neutrons jusqu'à $5.10^{14} \text{n/cm}^2.\text{s}$, réparti en neutrons thermiques (énergie inférieure à 0,625 eV) pour étudier le comportement du combustible nucléaire actuel; et en neutrons rapides (énergie supérieure à 0,9 MeV) pour étudier les matériaux des réacteurs du futur. Le RJH est conçu comme un réacteur piscine : le bloc réacteur est immergé dans une piscine (7 m de diamètre et 12 m de profondeur) pour une meilleure accessibilité aux expérimentations (l'eau faisant écran aux radiations). Il pourra accueillir plusieurs expériences simultanément.

... pour étudier les matériaux des réacteurs nucléaires

Dans un réacteur, les matériaux sont soumis à rude épreuve : sollicitations thermomécaniques et chimiques, irradiations par les neutrons... Le RJH reproduira les conditions des différentes filières et générations de réacteurs nucléaires pour approfondir les connaissances sur les matériaux. Objets d'études : résistance, vieillissement, corrosion, etc. Objectifs : mieux appréhender la durée de fonctionnement des centrales actuelles, en évaluer les marges de sûreté...; et contribuer à la définition des matériaux et combustibles des futurs réacteurs.





Expérimentations

Combustibles du RJE

Production de radioéléments médicaux



Les expérimentations

Les matériaux et combustibles à étudier sont placés dans des dispositifs expérimentaux. Ils sont descendus dans le bloc réacteur par des perches et insérés dans le cœur. Certains sont introduits dans le réflecteur (structure en bétylium, entourant le cœur, permettant de confiner les neutrons). Pendant quelques jours ou quelques mois, les matériaux sont soumis aux irradiations des neutrons. Les dispositifs sont équipés de capteurs qui transmettent les mesures réalisées *in situ*. Ils sont ensuite acheminés, via un canal de transfert, vers les cellules blindées où des analyses complémentaires sont menées.

La production de radioéléments à usage médical

80 % des examens médicaux sont effectués à l'aide de technétium 99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$). Pour le produire, des plaques d'uranium sont irradiées dans le réflecteur : les neutrons bombardent l'uranium, ce qui engendre des produits de fission : parmi eux, le molybdène-99 dont la décroissance génère du $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Les plaques sont ensuite déplacées vers les cellules chaudes pour être conditionnées dans un châteleau de transport accolé à la cellule. Elles sont ensuite envoyées vers une usine de traitement des cibles qui sépare les éléments des plaques pour expédier le $^{99\text{m}}\text{Tc}$ vers les centres de soins.



État final d'un laboratoire chaud du CEA à Grenoble,
après écroûtement des surfaces puis contrôles radiologiques.

DÉMANTÈLEMENT : HÉRITAGE DU PASSÉ, PERSPECTIVES D'AVENIR





Leader sur l'ensemble du cycle de l'électronucléaire, la France assume également les exigences d'assainissement-démantèlement de ses installations nucléaires en fin d'exploitation. À ce titre, le CEA fait figure de pionnier tant dans la maîtrise d'ouvrage de chantiers que dans la R&D pour en optimiser les délais, coûts et sûreté. Définir le scénario le plus adapté, caractériser l'état radiologique des équipements, décontaminer les lieux, procéder au démontage et optimiser les déchets qui en découlent: fort de ce large panel de compétences et de la diversité de ses installations concernées, la Direction de l'énergie nucléaire du CEA (CEA-DEN) développe des solutions innovantes qui font déjà l'objet de transferts industriels.

Dossier réalisé par Amélie Lorec

Intérieur du bâtiment de l'ancien réacteur Mélusine, du site CEA de Grenoble, assaini et démantelé.



© E. Stanislas/CEA

CEA, ACTEUR DE LA PREMIÈRE HEURE DU DÉMANTÈLEMENT

Deux tiers des installations nucléaires françaises en fin d'exploitation appartiennent au CEA. Une situation liée à son histoire qui implique la mise en œuvre de chantiers d'assainissement/démantèlement, aux enjeux scientifiques, humains et financiers sans précédent...

Au cours des années cinquante à quatre-vingt, le monde a vu se construire la majorité des installations nucléaires. Les plus anciennes ont été progressivement arrêtées pour laisser place à de nouvelles activités. Plusieurs raisons à cela : programmes de recherche ou de production achevés, équipements obsolètes, maintenance lourde, ou évolution de la réglementation. Que se passe-t-il alors ? En résumé, ces installations vont être nettoyées, et réutilisées en fonction des besoins ou éventuellement détruites. Dans le langage du nucléaire, on parle d'assainissement-démantèlement. Une activité qui représente un marché estimé à 220 milliards d'euros dans le monde sur vingt ans¹ ! En France, ce sont près de quarante installations nucléaires qui sont aujourd'hui concernées.

Vingt ans d'expertise pour le CEA... et des situations nouvelles à chaque fois !

Une fois lancé, un chantier d'assainissement-démantèlement s'étale sur plusieurs années. Et cette véritable « course de fond », le CEA la connaît bien. Acteur historique de la recherche nucléaire en France, il gère des installations en fin d'exploitation dans ses propres centres depuis

plus de vingt ans : réacteurs de « première génération », réacteurs de recherche, laboratoires, installations de traitement de déchets... « La totalité des installations du centre de Grenoble a par exemple été déconstruite. Les trois réacteurs – Siloé, Siloette et Mélusine – ont déjà été déclassés. Le déclassement du Laboratoire d'analyse des matériaux actifs (Lama) et des deux stations de traitement de déchets et d'effluents radioactifs est quant à lui en cours d'instruction par l'ASN » raconte Bernard Vignau, chef de Département² au CEA-DEN. « Ce chantier d'envergure, réalisé pour la première fois à l'échelle d'un site, a permis de faire place nette pour des laboratoires en recherche technologique. » Sur les 43 installations que le CEA exploite, 22 sont aujourd'hui en cours de démantèlement. Parmi elles, les INB³ du centre de Fontenay-aux-Roses qui est en pleine reconversion pour passer du génie nucléaire au génie biologique, les réacteurs Phénix à Marcoule et Rapsodie à Cadarache, l'usine UP1 de retraitement de combustibles usés et l'atelier pilote de Marcoule. « Aucun de nos chantiers n'est identique ce qui nous empêche de bénéficier d'un "effet de série". Même si nous profitons d'un retour d'expérience d'une opération à l'autre, il faut toujours chercher

à être ingénieux pour trouver des solutions aux situations encore jamais rencontrées. C'est chaque fois une source nouvelle de connaissances sur les travaux et les efforts de recherche engagés » témoigne Bernard Vignau. La grande diversité de ces installations, que ce soit par leur nature, leur taille ou leurs spécificités techniques, confère ainsi au CEA-DEN une expertise unique en maîtrise d'ouvrage et en R&D, que ce soit pour l'assainissement, le démantèlement ou la reprise et le conditionnement des déchets radioactifs anciens. Ce savoir-faire s'avère par ailleurs très précieux dès la phase de conception des futures installations nucléaires qui oblige, dorénavant, chaque exploitant à considérer leur démantèlement. Tel est le cas du projet international Iter, réacteur expérimental de fusion thermonucléaire, actuellement en construction à Cadarache.

Une course de fond en plusieurs étapes

Mais concrètement, comment se déroulent de telles opérations ? Tout commence par la définition du scénario du chantier et des moyens d'intervention à mettre en œuvre en collectant les données initiales sur l'installation (plans, équipements...) et en évaluant son état radiologique (taux d'irradiation, locaux contaminés...). Ce scénario est réalisé conformément au **référentiel de sûreté**• de l'installation qui, pour une INB en arrêt définitif, évolue du statut « d'exploitation » à celui de « démantèlement ». Il précise alors l'état final visé, l'analyse des nouveaux risques induits par les opérations, l'étude des déchets produits, des rejets, de la dosimétrie, etc. Conséquences : une nouvelle cartographie des risques radiologiques est réalisée, avec l'individu au cœur des préoccupations pour s'assurer de sa protection contre une éventuelle contamination ou irradiation au cours des opérations. En parallèle, un dossier administratif relatif à la gestion des déchets est élaboré, évaluant leur impact environnemental pour s'assurer qu'ils seront acceptés par l'Andra⁴. À partir du scénario retenu, et une fois les autorisations délivrées par l'Autorité de sûreté nucléaire compétente (ASN ou ASND⁵), s'ensuit l'entrée en phase de préparation : délimitation du périmètre des opérations, installation d'un circuit de ventilation pour protéger l'environnement de travail, mise en œuvre du matériel de radioprotection... Enfin, les travaux démarrent, tout d'abord pour évacuer les matières, puis assainir, c'est-à-dire nettoyer et éliminer les substances radioactives des équipements et parties des installations. Ce travail s'effectue en amont du démantèlement qui, lui, consiste à démonter et évacuer l'ensemble des matériels



► Démolition de la cheminée du réacteur G1 à Marcoule. © CEA

et à réhabiliter les sites et locaux. Un chantier qui peut prendre plus d'une décennie. Le rapport de fin d'intervention, faisant état des bilans radiologique, de sécurité et de déchets, servira ensuite pour autoriser le déclassement définitif de l'installation qui pourra être complet ou partiel.

Un défi technique et un enjeu financier

Quant au coût de tels chantiers, Laurence Piketty, directrice de l'assainissement et du démantèlement nucléaire du CEA-DEN, estime que « *dans les prochaines années, le CEA dépensera environ 700 millions d'euros par an pour ses programmes d'assainissement-démantèlement, d'exploitation et de gestion des déchets. Financées par des fonds dédiés*•, nos provisions s'élèvent aujourd'hui à 16,7 milliards d'euros, dont 80 à 90 % seront réinjectés dans l'industrie française. » C'est un réel challenge pour les équipes de mener ces projets complexes à leur terme tout en tenant les coûts et les délais, et surtout en respectant strictement, à chaque étape, le référentiel de sûreté des installations imposé par l'ASN. L'une des clés de la réussite pour respecter ces nombreuses exigences passe notamment par une R&D ciblée pour optimiser les outils et les procédés (voir article page 56). ●



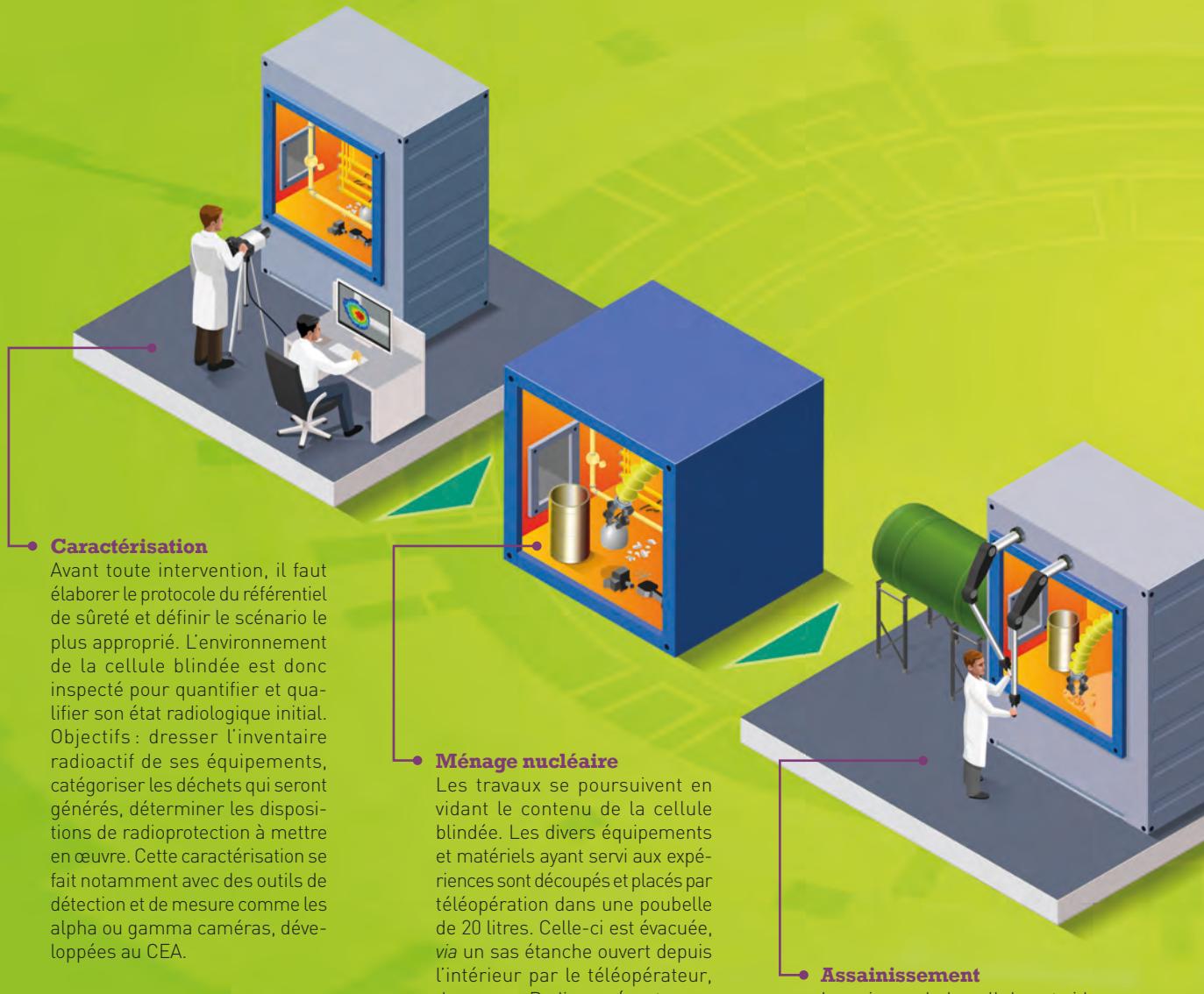
Notes:

1. Estimation du cabinet de conseil Arthur D. Little en stratégie, innovation et technologie.
2. Département des projets d'assainissement/démantèlement.
3. Installation nucléaire de base.
4. Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs.
5. Autorité de sûreté nucléaire Défense.
6. Les lois de 2006 stipulent qu'en France les exploitants doivent provisionner l'intégralité des charges futures de démantèlement.

► Chantier d'assainissement d'une sorbonne ventilée de type boîte à gants à Fontenay-aux-Roses.

LE DÉMANTÈLEMENT NUCLÉAIRE

Toute installation nucléaire de base (réacteurs nucléaires, laboratoires...) a une durée d'exploitation limitée. À l'arrêt de son utilisation, elle est assainie (élimination des substances radioactives) et démantelée (démontage des éléments), selon un référentiel de sûreté, puis déclassée pour servir à de nouveaux usages ou être démolie. Les opérations d'assainissement/démantèlement concernent l'ensemble des composants de l'installation, par exemple les cellules blindées qui équipent certains laboratoires.



• Caractérisation

Avant toute intervention, il faut élaborer le protocole du référentiel de sûreté et définir le scénario le plus approprié. L'environnement de la cellule blindée est donc inspecté pour quantifier et qualifier son état radiologique initial. Objectifs : dresser l'inventaire radioactif de ses équipements, catégoriser les déchets qui seront générés, déterminer les dispositions de radioprotection à mettre en œuvre. Cette caractérisation se fait notamment avec des outils de détection et de mesure comme les alpha ou gamma caméras, développées au CEA.

• Ménage nucléaire

Les travaux se poursuivent en vidant le contenu de la cellule blindée. Les divers équipements et matériels ayant servi aux expériences sont découpés et placés par téléopération dans une poubelle de 20 litres. Celle-ci est évacuée, via un sas étanche ouvert depuis l'intérieur par le téléopérateur, dans un « Padirac » (conteneur en plomb de 3 tonnes), accosté à l'extérieur de la cellule, qui est ensuite conditionné dans des colis de déchets.

• Assainissement

Le caisson de la cellule est vide mais une pellicule d'éléments radioactifs peut subsister sur ses parois. Le téléopérateur y applique un gel oxydant de décontamination et gratte les parois pour recueillir des copeaux qui sont introduits dans le « Padirac ».

► Démantèlement de la protection biologique

La protection biologique non contaminée de la cellule, enveloppe externe généralement en plomb pour empêcher les rayonnements bêta et gamma de la traverser, peut être démontée. Pour ce faire, un sas de vinyle ventilé est installé autour de la cellule pour la confiner et aspirer les poussières générées par la découpe des éléments par l'opérateur. Pour sa protection, ce dernier s'équipe d'une tenue blanche recouverte d'une blouse de « papier », avec gants et masque filtrant.

► Démantèlement du caisson

Le caisson contaminé par des radioéléments est découpé en morceaux, qui sont mis dans des colis et évacués, tout comme les débris de la protection biologique, par un sas propre au gros œuvre. Pour cette opération, l'intervenant met une tenue en vinyle ventilée en surpression, par laquelle il respire avec une adduction d'air, pour se protéger des éventuelles traces de radioactivité qui pourraient demeurer dans le caisson en inox de la cellule.

► Assainissement final

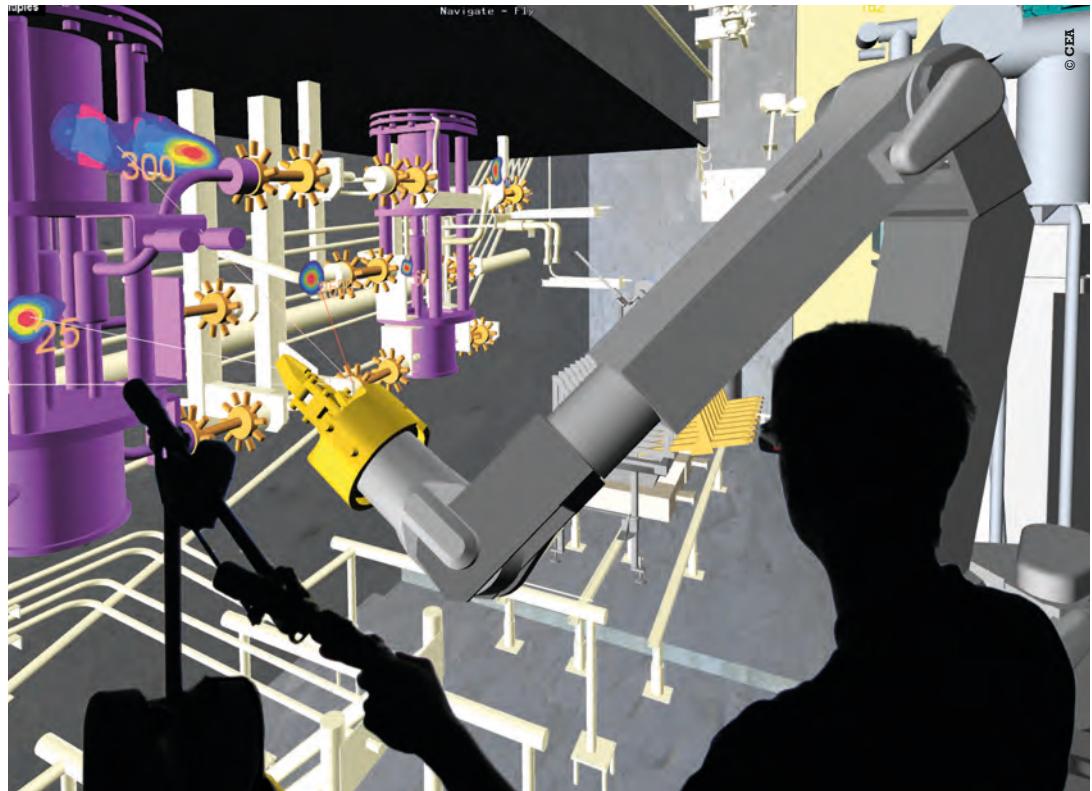
Toujours dans le sas en vinyle, il reste à démonter la semelle en béton qui supporte la cellule blindée. Une fois cette surface du sol détruite au marteau-piqueur, l'installation décontaminée peut être « déclassée » après contrôles radiologiques, et le bâtiment l'abritant peut être démoliti ou servir à de nouveaux usages.

À SAVOIR

Le référentiel de sûreté

Le référentiel de sûreté correspond à l'ensemble des règles qui encadrent l'exploitation d'une installation. En entrant en phase d'assainissement/démantèlement, ces règles sont modifiées. Le nouveau référentiel, qui fait l'objet d'une autorisation par l'Autorité de sûreté nucléaire [ASN ou ASND], précise et cadre alors les grandes étapes du chantier, les délais, l'état final visé, les moyens mis en œuvre, les risques induits (rejets, dosimétrie...), les déchets produits et les filières de traitement associées.

Simulation d'une intervention téléopérée sur une cellule blindée avec visualisation des points chauds, dans la salle immersive de Marcoule.



LA RECHERCHE ET L'INNOVATION AU SERVICE DU DÉMANTÈLEMENT

Maître d'ouvrage sur ses projets d'assainissement-démantèlement, le CEA consacre également une forte activité de recherche et développement (R&D) afin de diminuer les délais, les coûts et les déchets des programmes actuels et futurs, tout en améliorant leur sûreté. Les innovations qui en découlent donnent souvent lieu à des transferts industriels.

« Nos développements portent sur l'ensemble des étapes de l'assainissement et démantèlement afin de les optimiser » commence Christine Georges, chef de Programme¹ au CEA-DEN. Ces efforts de R&D portent en premier lieu sur l'évaluation de l'état radiologique des installations, dès le début du chantier puis tout au long des opérations. Il s'agit de localiser les **points chauds**², d'identifier les radioéléments et d'estimer l'activité physique et radiologique des matériaux pour les trier en fonction de leur catégorie [voir encadré p.58]. Cette tâche est loin d'être aisée car, parfois, les plans d'architecte des installations construites dans les années soixante ne sont pas aussi précis qu'aujourd'hui, omettant par exemple le tracé de certaines canalisations qu'il faut à tout prix prendre en compte. De même, des incertitudes peuvent demeurer sur l'état des substances radioactives

contenues depuis des dizaines d'années dans les cuves, retardant d'autant le début des opérations qui ne peuvent commencer sans une caractérisation globale.

Des technologies innovantes pour quantifier à distance la radioactivité

Pour faire face à ces imprévus, les chercheurs du CEA ont dû innover. Ainsi est née la technologie de « gamma caméra » qui permet de repérer, situer et quantifier les points chauds dans des zones inaccessibles, enjeu majeur pour établir le plan des opérations de démantèlement. Son principe : amplifier l'émission des rayons gamma par les radioéléments sous la forme d'un signal électrique qui est détecté et transformé en image. Afin d'aboutir à une version industrielle compacte et sensible de cette caméra, le CEA a su exploiter toute son expertise², allant de la

• **Point chaud** : source où le niveau de radioactivité est supérieur à un seuil déterminé.

conception d'un détecteur jusqu'à l'utilisation experte d'un système final. Les ingénieurs du CEA-DEN ont également mis au point, en partenariat avec la société IVEA, une technologie d'analyse à distance de la matière : la Libs³. Installé sur un drone ou manipulé par un opérateur, son dispositif focalise un faisceau laser par impulsion sur le matériau à analyser pour créer un plasma qui émet, en se refroidissant, un rayonnement lumineux caractéristique des éléments du matériau. Un système optique, couplé à un spectromètre, permet ensuite de collecter cette lumière, de l'analyser et de renseigner sur la composition élémentaire. Inédite, cette technologie a aussi été mise en œuvre à bord du rover Curiosity de la Nasa pour déterminer la composition du sol de Mars. Mais revenons sur Terre...

Choisir le scénario le plus adapté grâce à la simulation du chantier

Un chantier d'assainissement-démantèlement ne saurait toutefois commencer sans un minimum de préparation. Là, la modélisation et la simulation numérique sont essentielles, tant pour valider un scénario que pour entraîner ou former les opérateurs sur une intervention. En 2008, le CEA-DEN s'est doté à Marcoule d'une salle de réalité virtuelle, la « salle immersive », équipée d'un grand mur d'images simulant des opérations à l'échelle 1 pour qu'un utilisateur puisse répéter virtuellement l'ensemble des opérations qu'il aura à mettre en œuvre. Par exemple, il a été approché par la start-up Oreka Sud qui commercialise un simulateur 3D d'aide à la décision qui donne la vision globale d'un projet de démantèlement. « *Le logiciel Demplus est capable d'établir techniquement plusieurs scénarios d'intervention et d'évaluer les principaux paramètres associés : bilan déchets, bilan dosimétrique, estimation du budget et planning. Le CEA-DEN nous a apporté son retour d'expérience pour pouvoir intégrer des données de terrain et avoir des simulations au plus près de la réalité* » témoigne Luc Ardellier, directeur d'Oreka Sud. Quel avantage pour le CEA ? Avec cet outil, les réponses des industriels à ses

propres appels d'offres pourront être standardisées et leur comparaison, de fait, plus facile pour choisir le dossier le plus adapté aux besoins.

Assainir et démanteler sans s'exposer

« *Notre R&D se concentre également sur la décontamination radioactive des surfaces, des sols... avant leur démontage et destruction* » souligne Frédéric Charton, responsable de projets de R&D au CEA-DEN. C'est ainsi que des procédés chimiques inédits ont vu le jour. Présentés sous forme de mousses ou de gels contenant des éléments actifs, ils sont injectés dans des zones complexes difficiles d'accès, comme des circuits de ventilation ou des cuves de stockage, pour y capturer les radioéléments et se liquéfier à leur contact. Les liquides sont ensuite récupérés pour être traités comme des effluents⁴. On parle de mode d'élimination « par transfert » de la radioactivité. Dans la décontamination toujours, les chercheurs s'attellent aussi à concevoir des techniques mécaniques ou par laser. Par ailleurs, pour faciliter les opérations de démantèlement en milieux hostiles et protéger les intervenants, de nouveaux outils de téléopérations⁵ sont conçus. Ces systèmes robotisés « prolongent » la main de l'opérateur, comme le bras Maestro développé en partenariat avec la société Cybernétix et mis en service en 2015 au sein du chantier de l'Atelier Pilote de Marcoule (APM). À Saclay, les scientifiques ont également créé DELIA, plateforme pour développer des procédés de découpe laser immergée ou dans l'air.

• **Effluent**: liquide usé pollué ou contaminé.

• **Téléopération**: intervention qui s'effectue à distance, et non pas au contact direct des éléments à démanteler.

Des installations pour traiter les déchets et effluents générés

Tous ces travaux génèrent des déchets, en plus de ceux issus des activités nucléaires passées du CEA. Là encore la R&D prend tout son sens pour minimiser leur volume et leur toxicité, optimiser leur traitement et conditionnement, comprendre et démontrer les mécanismes de comportement à long terme, tout en s'assurant que les colis ►



Notes:

1. Programme R&D pour l'assainissement-démantèlement.
2. Collaboration avec la direction des Sciences de la matière (CEA-DSM) et CEA Tech.
3. Laser Induced Breakdown Spectroscopy.

◀ Mise au point de mousses et de gels de décontamination chimique.

- **Casemate**: abri enterré, souvent en béton.

Note:

4. Programme Gestion des flux de déchets et matières.

finaux auront une filière de stockage à l'Andra. Des installations spécialement adaptées à la nature des déchets ont vu le jour comme, en 1978, l'atelier de vitrification dédié au traitement des solutions de produits de fission de haute activité de Marcoule (AVM), puis, avant sa fermeture fin 2012, à la vitrification des effluents de rinçage décontaminants de l'usine UP1. Sur le même site, depuis 1966, la Station de traitement des effluents liquides (STEL) permet notamment de bitumer des effluents de faible et moyenne activité issus des opérations de traitement de combustibles usés. Une contrainte toutefois avec cette matrice organique : sous l'effet des rayonnements, le bitume évolue par radiolyse et génère de l'hydrogène gazeux à l'entreposage. Des programmes de R&D sont ainsi en cours pour renforcer les démonstrations de maîtrise du comportement de tels colis, notamment en vue de leur futur stockage en milieu géologique en condition de sûreté maîtrisée. « *La STEL devient aujourd'hui "STEMA" pour remplacer ce bitume par une matrice minérale, en ciment* » explique Thierry Advocat, chef de Programme⁴ au CEA-DEN. Des chercheurs du CEA ont déterminé la formule optimale de compatibilité physico-chimique entre le déchet et ce

nouvel enrobage puis ont évalué le vieillissement du produit final. Pour les effluents organiques de faible activité, une autre technique a été développée pour les minéraliser : l'oxydation hydrothermale qui leur impose des conditions de température et de pression supercritiques pour que la « métamorphose » opère.

Quant aux déchets plus anciens, héritages du passé du CEA, il faut parfois les reconditionner. À Marcoule, cette opération a été entamée dans les années 2000, sur les 60 000 fûts de bitume anciens entreposés en fosse et **casemates**⁵. À ce jour, 10 000 fûts ont déjà été reconditionnés et entreposés dans des entreposages intermédiaires polyvalents (IEP). Objectif : les caractériser pour connaître leur nature et la quantité de matière fissile qu'ils contiennent, puis les catégoriser pour qu'ils soient acceptés par l'Andra en vue de leur expédition et stockage dans Cigéo. Pour ce faire, le CEA-DEN a recours aux mêmes dispositifs d'analyses non destructives que ceux utilisés pour la cartographie radiologique d'un chantier, et d'analyses destructives, comme les techniques de mesures nucléaires des émetteurs bêta à vie longue. ●



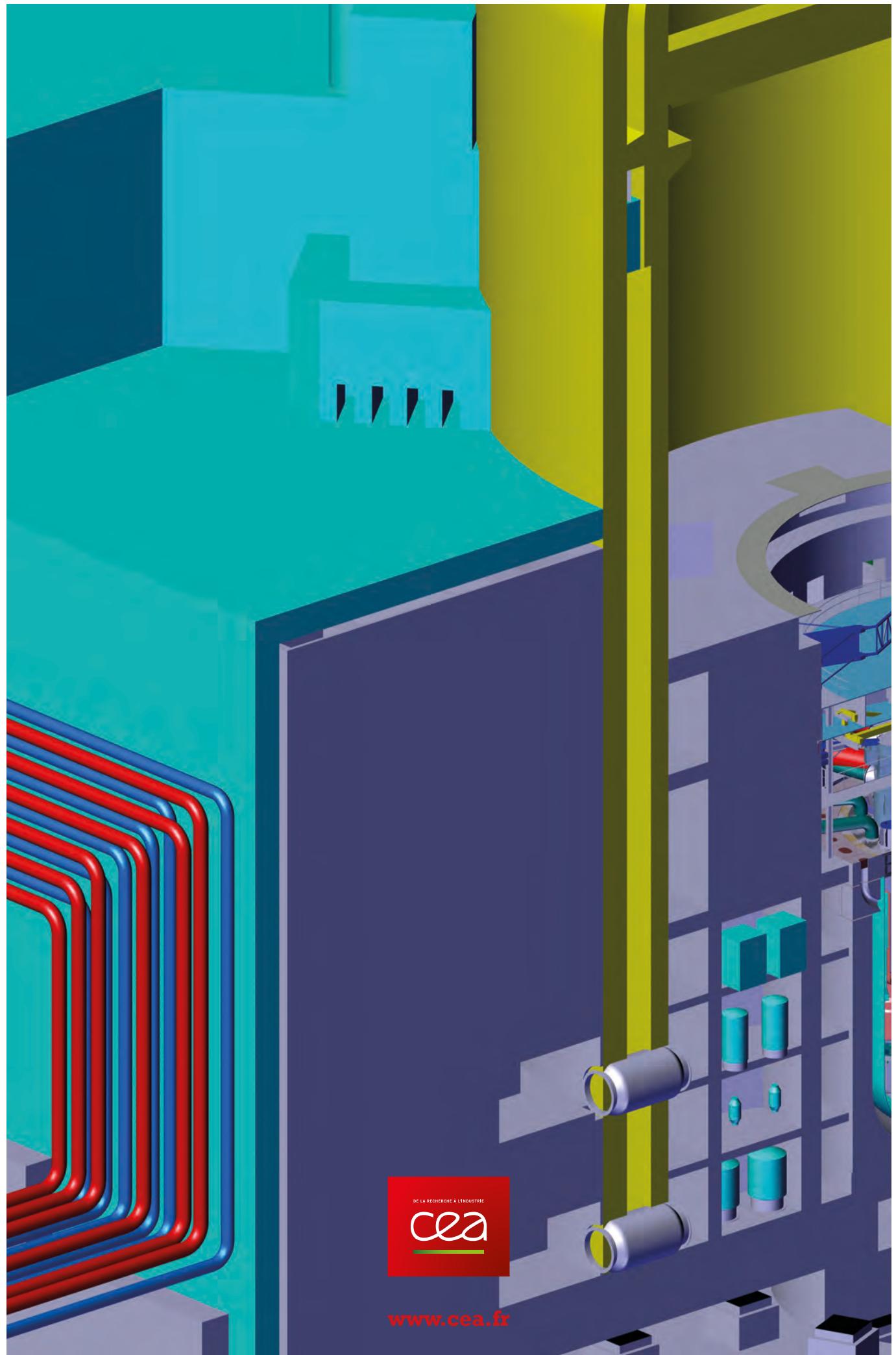
Bras esclave du système Maestro avec tête de découpe laser, permettant des opérations de découpe téléopérées.

CINQ CATÉGORIES DE DÉCHETS RADIOACTIFS

Il existe cinq grandes catégories de déchets radioactifs, en fonction de leur niveau de radioactivité et de leur durée de vie :

- TFA, très faible activité (27 % du volume des déchets radioactifs produits en France) ;
- FMA-VC, faible et moyenne activité à vie courte (63 % de ce volume) ;
- FA-VL, faible activité à vie longue, (7 %) ;
- MA-VL, moyenne activité à vie longue (3 %) ;
- HA-VL, haute activité à vie longue, représentant 96 % de la radioactivité totale des déchets mais seulement 0,2 % de leur volume.

Un chantier de démantèlement génère très majoritairement des TFA. Par exemple, celui des INB du centre CEA de Grenoble a produit 96,1 % de TFA, 3,7 % de FA, 0,1 % de MA et 0,03 % de HA.



www.cea.fr