

## Le combustible pour réacteurs à neutrons rapides à métaux liquides

Les ressources en uranium bon marché sont limitées, et le redémarrage du nucléaire actuellement observé dans le monde les consomme rapidement. Même en recyclant le combustible utilisé pour économiser au maximum les ressources naturelles, les systèmes nucléaires de deuxième ou de troisième génération ne sauraient être durables, car ils n'exploitent pas pleinement le potentiel énergétique des noyaux lourds. En pratique, seuls les réacteurs régénérateurs à neutrons rapides sont capables de transformer efficacement les noyaux **fertiles\*** en noyaux **fissiles\***.

À titre d'exemple, pour obtenir une énergie électrique de 1 GW.an, il faut fissionner environ 1,4 tonnes de matière. Pour cela, un réacteur à eau ordinaire (REP) a besoin de 140 tonnes d'uranium naturel, alors qu'avec un système régénérateur 1,4 tonnes de noyaux fertiles suffiraient. On voit que l'économie de matière première est significative !

Cependant, l'utilisation de neutrons rapides impose des contraintes bien particulières à la conception du réacteur et du combustible. Certaines contraintes sont d'origine neutronique. Les faibles **sections efficaces\*** neutroniques en spectre rapide doivent être compensées par une forte concentration de noyaux fissiles dans le cœur et par un fort flux neutronique. La première contrainte impose une géométrie aussi resserrée que possible pour les éléments combustible. À cause de la seconde, il faut attendre des dommages d'irradiation sur les matériaux de cœur et les structures, sous l'important flux de neutrons rapides.

D'autres contraintes sont de nature technologique et technico-économique. Les taux de combustion élevés sont nécessaires à la valorisation des coûts de fabrication et de traitement du combustible. L'inventaire en plutonium (et/ou en U 235) nécessaire pour installer un gigawatt électrique de puissance nucléaire doit être minimisé, au moins durant la montée en puissance du parc de réacteurs à neutrons rapides. Une telle minimisation suppose à la fois une puissance spécifique élevée en réacteur et un temps de cycle hors réacteur court.

Le type de réacteur rapide ainsi esquissé trouve une première mise en œuvre possible dans une filière qui dispose déjà d'un retour d'expérience, notamment en France : celle des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium.

Afin de démontrer la compétitivité de la filière des réacteurs à neutrons rapide (RNR) par rapport aux réacteurs à eau légère, les efforts de recherche se sont focalisés en permanence sur l'obtention de taux de combustion élevés dans le but de réduire le coût du cycle [1]. Parmi les matériaux combustibles susceptibles de remplir cette mission, le combustible oxyde mixte ( $UO_2$  ;  $PuO_2$ ) s'est rapidement révélé comme le matériau de référence et son développement a été la pierre angulaire des programmes conduits pendant trois décennies au CEA [2], mais également à travers le monde.

Concernant la France, la plupart des résultats en conditions nominales de fonctionnement émanent des programmes expérimentaux et de surveillance réalisés dans RAPSODIE (1967-1983) et dans le prototype industriel PHÉNIX (1973-...) et SUPERPHÉNIX (1985-1998) [3]. De nombreux essais de comportement en conditions incidentelles et accidentelles ont été réalisés dans un cadre international pendant plus de vingt-cinq ans dans les réacteurs CABRI et SCARABÉE de Cadarache [4].

Le comportement du combustible oxyde des RNR se distingue de celui des REP par ses conditions de fonctionnement plus sévères. La puissance spécifique élevée du combustible ( $\approx 2 \text{ kW/cm}^3$  pour PHÉNIX), associée à la faible conductivité thermique de l'oxyde mixte impliquent une température au centre des pastilles combustibles souvent supérieure à  $2\,000 \text{ }^\circ\text{C}$ . De fait, la microstructure initiale subit une évolution remarquable (fig. 94) marquée par une « restructuration » du combustible dans sa partie centrale provoquée par une migration vers le centre de la porosité de fabrication et par la « guérison » des fissures, avec la formation concomitante de grains colonnaires et d'une cavité centrale. Cette restructuration s'accompagne d'une redistribution notable de la concentration en plutonium avec une augmentation au centre.

Une grande partie des gaz de fission formés est relâchée dans le volume libre de l'aiguille combustible (les taux peuvent atteindre 90 % de la production) [fig. 95], ce qui constitue une grosse différence entre les combustibles REP et les combustibles RNR. Cependant, dans les seconds, on n'a jamais cherché à retenir les gaz de fission dans la céramique, et seule la partie externe de la pastille en retient une partie. Ce fort relâchement des gaz de fission ne constitue pas un problème en soi, comme pour le combustible des REP, car cet état de fait est pris en compte dès le dimensionnement avec la présence dans l'aiguille de grands volumes d'expansion : 2,7 m d'aiguille

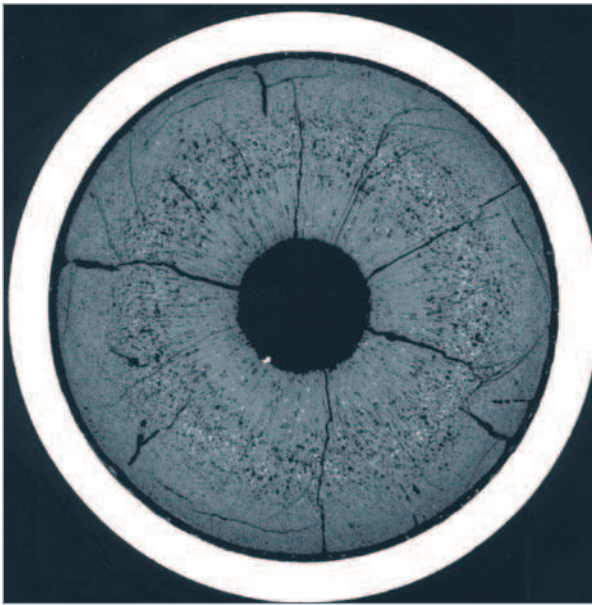


Fig. 94. Coupe métallographique transversale au plan de flux maximal d'une aiguille combustible PHÉNIX montrant la restructuration importante du combustible – Combustible :  $(U_{0,8}Pu_{0,2})O_2$ , Gaine : acier 15-15 Ti $\epsilon$ , taux de combustion max. : 13,3 % FIMA (125 GWj/tM), Dose max. : 115 dpa.

pour 1 m de colonne fissile. À forts taux de combustion (> 8 % FIMA\*), les produits de fission (PF) volatils (Cs, I, Te) ou même métalliques (Mo) sont partiellement relâchés hors du combustible et finissent par constituer un joint oxyde gaine (JOG) entre la périphérie de la pastille et la gaine.

La migration radiale et axiale [5] de certains PF : Te, I associée à une augmentation avec le taux de combustion du potentiel d'oxygène du combustible conduit de manière stochastique à l'apparition d'une corrosion interne de la gaine localisée dans le tiers supérieur de la colonne fissile (fig. 96).

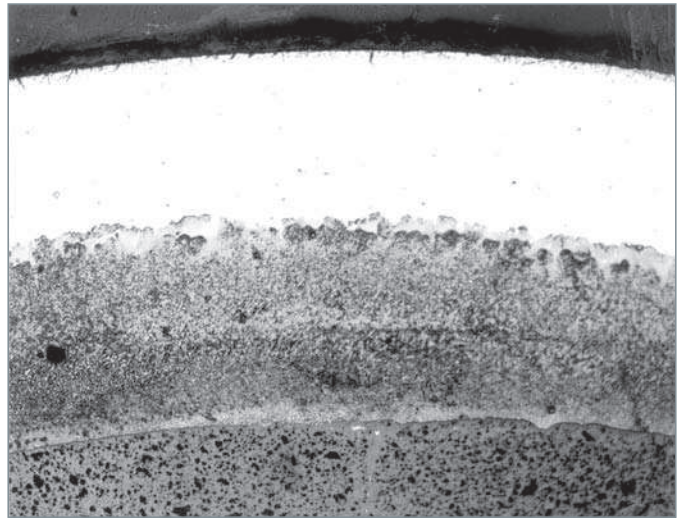


Fig. 96. Exemple d'une très importante corrosion interne de la gaine (~ 40% de l'épaisseur initiale) pour un élément combustible expérimental PHÉNIX à gaine en acier 15-15 Ti $\epsilon$  irradié à un taux de combustion élevé (16,9 % FIMA), correspondant à une dose de 155 dpa.

Ce phénomène est considéré comme un des facteurs limitants pour l'atteinte de taux de combustion élevés (15 % FIMA). Des remèdes tels que l'utilisation de pièges chimiques dans l'oxyde ou le recours à une couche protectrice de la paroi interne de la gaine peuvent différer la corrosion.

Un autre inconvénient majeur de l'oxyde est sa non-compatibilité avec le sodium. Néanmoins, de nombreuses études hors pile ainsi que le retour d'expérience de ruptures naturelles de gaine dans RAPSODIE et PHÉNIX ont permis de cerner les conditions thermiques, physico-chimiques et mécaniques d'évolution du défaut initial en rupture de gaine ouverte et ainsi de proposer une gestion adéquate par l'exploitant des assemblages défaillants.

Si l'oxyde mixte a prouvé son comportement satisfaisant jusqu'à des taux de combustion très élevés (> 15% FIMA) ainsi que pour les différentes étapes du cycle : fabrication, entreposage et retraitement, ses principaux inconvénients : faible densité en atomes lourds et mauvaise compatibilité avec le sodium ont conduit les équipes du CEA à s'intéresser à des combustibles « avancés » tels que des combustibles métalliques ou les carbures et nitrures [6].

Ces deux derniers combustibles réfractaires présentent les avantages d'une densité plus élevée en atomes lourds permettant un gain de régénération interne plus élevé (allongement de cycle et production accrue de Pu) et d'une compatibilité totale avec le sodium, évitant ainsi des arrêts intempestifs du réacteur pour décharger un assemblage ayant subi une rupture de gaine [1].

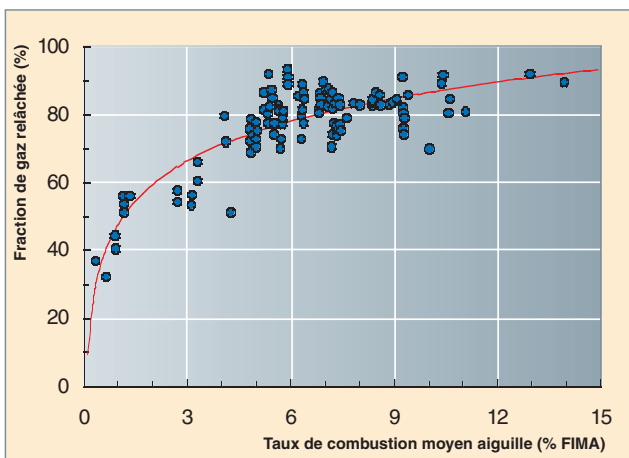


Fig. 95. Évolution en fonction du taux de combustion du taux de relâchement des gaz de fission d'aiguilles combustibles provenant d'assemblages standards et expérimentaux irradiés dans PHÉNIX.

Ces combustibles présentent aussi l'intérêt d'une conductivité thermique meilleure que celle de l'oxyde, autorisant des températures de fonctionnement plus basses permettant, au besoin, d'accroître les puissances linéiques de fonctionnement, tout en regagnant des marges significatives par rapport au risque de fusion à cœur des pastilles. Cependant, ces combustibles dits « froids » manifestent un gonflement 2 à 3 fois supérieur à l'oxyde ; en outre, le relâchement des gaz de fission, quoique restant inférieur à celui de l'oxyde, peut tout de même devenir significatif (> 50 %) pour des taux de combustion importants (10 % FIMA). La forte vitesse de gonflement associée à une viscoplasticité moindre de ces combustibles (un facteur 10 par rapport à l'oxyde), engendre une interaction mécanique forte entre combustible et gaine, une fois le jeu de fabrication rattrapé. L'expérience acquise indique qu'il est impératif de réduire à la fabrication leur densité de remplissage<sup>2</sup> ( $D_R < 75 \% D_{TH}$ ) pour espérer viser sans trop de risque de rupture de gaine les mêmes taux de combustion que l'oxyde. En comparaison de l'énorme expérience accumulée avec le combustible oxyde, le carbure, et plus encore le nitrure, laissent aujourd'hui beaucoup de questions sans réponse sur leur réel potentiel comme combustible des RNR sodium. Une nouvelle phase de réflexion et d'expérimentation devra être entreprise pour évaluer non seulement l'aptitude de ces combustibles à atteindre des taux de combustion élevées en conditions nominales, mais également les avantages potentiels (ou les inconvénients) de leur comportement en conditions accidentelles, ainsi que l'ensemble des problèmes du cycle associés à leur mise en œuvre. En particulier, ces combustibles sont-ils ou non mieux à même de recycler les actinides mineurs ?

Concernant le combustible métallique, après les tentatives décevantes des années 50-60, seuls les Américains de l'*Argonne National Laboratory* ont poursuivi une R&D significative jusqu'au début des années 90. De nombreuses études d'alliages combustibles leur ont permis d'obtenir *in fine*, avec des alliages du type U-Pu-Zr, des performances comparables en termes de taux de combustion au combustible oxyde. De plus, cette expérimentation repose sur une base conséquente d'environ 150 000 aiguilles irradiées dans le réacteur EBR II. Bien entendu, ce combustible présente aussi des inconvénients dont les deux principaux sont un risque de réaction chimique avec la gaine, au-dessus de 600 °C (formation potentielle d'un eutectique), ce qui impose de réduire de fait la température maximale admissible du caloporteur en fonctionnement nominal et, par voie de conséquence, le rendement du réacteur, ainsi qu'un cycle du combustible par procédé électrochimique, jugé par les américains non proliférant avec intégration sur site, mais dont la démonstration à l'échelle industrielle (recyclage du Pu et des actinides mineurs, gestion des déchets) reste à faire...

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

## ► Références

- [1] H. BAILLY, D. MENESSIER ET C. PRUNIER, « *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides* », série Synthèses Eyrolles (1996), chapitres III et VI.
- [2] R. LALLEMENT, H. MIKAILOFF, J.P. MUSTELIER, J. VILLENEUVE, *Fast Breeder Reactor fuel design principles and performance*, Nuclear Energy, **28**, 1 (1989).
- [3] J.-L. RATIER, A. CHALONY, G. CLOTTES, P. CHANTOIN, P. COURCON, *Behaviour of PHENIX standard fuel*, International Conference on Reliable Fuels for Liquid Metal Reactors, Tucson (1986).
- [4] I. SATO, F. LEMOINE AND D. STRUWE, « *Transient fuel behavior and failure condition in the CABRI-2 experiments* », Nuclear Technology 145 p. 115-137 (2004).
- [5] M. TOURASSE, M. BOIDRON, B. PASQUET, *Effect of clad strains on fission product chemistry in PHENIX pins at high burn-up*, Material Chemistry'92, Tsukuba, Japan (1992).
- [6] J.-L. FAUGÈRE, M. PELLETIER, J. ROUSSEAU, Y. GUÉRIN, K. RICHTER, G. LEDERGERBER, *The CEA Helium nitride fuel design*, ANP'92 - International Conference on design and safety of advanced nuclear power plants, Tokyo, Japan (1992).

**Michel PELLETIER,**

*Département d'études des combustibles*

# Dégâts d'irradiation par les neutrons rapides dans les matériaux de structure

## Dégâts induits dans les métaux par les neutrons rapides

Comme souligné au chapitre précédent, l'obtention de **taux de combustion\*** élevés passe par un temps de séjour dans le cœur du RNR de plusieurs années soumettant de la sorte les matériaux de structure de l'assemblage, tube de gaine des aiguilles combustibles et boîtier hexagonal des assemblages à de très fortes **fluences\*** de neutrons rapides<sup>3</sup> (quelques  $10^{27}$  n/m<sup>2</sup>)<sup>4</sup>.

Ce flux très élevé rencontré dans le cœur des RNR refroidis au sodium (quelques  $10^{19}$  n/[m<sup>2</sup>.s]) est la principale source de dommages créés dans les gaines et les tubes hexagonaux (TH) qui rassemblent et enferment les aiguilles des assemblages combustibles [1].

Sous l'action des neutrons rapides, les noyaux sont éjectés de leur site d'équilibre et engendrent par collision le déplacement de nombreux noyaux, créant ainsi une cascade de déplacements ; il en résulte des échanges d'atomes entre sites du réseau cristallin mais également la création de **défauts ponctuels\*** de type paires de Frenkel constituées de lacunes et atomes en position interstitielle en nombre égal. De plus, certains éléments peuvent capturer des neutrons et donner lieu à des réactions nucléaires. Ainsi, les réactions (n,  $\alpha$ ) et (n, p) conduisent à la formation respectivement d'hélium et d'hydrogène qui vont, soit en précipitant pour former des bulles, soit en modifiant la composition chimique du matériau, changer ses propriétés au cours de l'irradiation.

Les **paires de Frenkel\*** créées ne restent pas stables ; des recombinaisons immédiates ou différées se produisent. Les défauts intrinsèques du matériau (dislocations, joints de grains, porosité) jouent, sur ce point, un rôle important ; interstitiels comme lacunes peuvent s'y éliminer. L'élimination des défauts ponctuels sur ces « puits » modifie dans le temps la microstructure du matériau : évolution du réseau de dislocation, migration des joints de grains. Par ailleurs, ces défauts ponctuels peuvent s'agglomérer en amas : la coalescence d'**interstitiels\*** crée des boucles de **dislocation\***, tandis que

la coalescence de **lacunes\*** peut soit conduire à des boucles, soit initier une cavité. Ce dernier processus de germination et croissance des cavités conduit à une augmentation de volume cumulative du matériau bien supérieure à la valeur de saturation due aux défauts isolés.

La température d'irradiation a une implication déterminante sur l'ensemble de ces phénomènes. Les basses températures ( $< 0,3 T_f$ , où  $T_f$  est la température de fusion de la gaine) favorisent la sursaturation des défauts dans le matériau et un gonflement à saturation ne dépassant pas 1 %. Les températures moyennes (entre  $0,4$  et  $0,5 T_f$ )<sup>5</sup> favorisent les processus de germination et de croissance des cavités, donc un gonflement du matériau. Les hautes températures ( $> 0,6 T_f$ ) conduisent à un recuit permanent des défauts ponctuels créés par les neutrons rapides.

Ce phénomène de gonflement des aciers par germination et croissance de cavité a été clairement mis en évidence par microscopie électronique en transmission en 1967 sur les gaines des éléments combustibles du réacteur DFR (Grande Bretagne) [2]. Des observations similaires ont été faites presque simultanément aux États-Unis (EBR-II) et en France (RAPSODIE). Compte tenu des conséquences du gonflement en termes de durée de vie des assemblages, d'importants programmes de R&D ont alors été lancés pour mieux appréhender les mécanismes et proposer des solutions.

## Quels matériaux utiliser ?

Au CEA, durant les trente dernières années, les études se sont focalisées sur trois grandes familles de matériaux compatibles avec le combustible oxyde et le sodium : Les aciers austénitiques basés sur la nuance AISI 316, les alliages de nickel de la famille des Inconels et les aciers ferritiques-martensitiques au chrome-molybdène [3, 4].

Le premier acier utilisé dans RAPSODIE, puis pour la première charge de PHÉNIX, pour les TH et les gaines, a été l'acier 316 à l'état hypereffluant qui a permis d'atteindre des doses de l'ordre de 50 **dpa\***. À cette dose, le gonflement volumique dépasse 10 %, ce qui est incompatible avec les critères fonctionnels de l'assemblage. Il convenait de trouver une parade à l'instabilité métallurgique des aciers austénitiques entre 500 et 600 °C. La première évolution a été un écrouis-

3. Sont considérés comme neutrons rapides les neutrons dont l'énergie est supérieure à 0,1 MeV.

4. Des codes basés sur le modèle des collisions binaires ont permis d'établir un coefficient d'efficacité de déplacement en prenant en compte les effets de réseau. Ils sont à l'origine de l'unité de dommage la plus utilisée : le dpa (pour l'acier :  $1 \text{ dpa} \approx 2 \cdot 10^{25} \text{ n/m}^2 \text{ E} > 0,1 \text{ MeV}$ ). Suivant le spectre neutronique du réacteur, cette correspondance entre dpa et fluence neutronique varie.

5. Soit 500 à 600 °C pour un acier inoxydable austénitique de type AISI 316.

sage des tubes avant utilisation d'environ 15 à 20 %. L'augmentation de la densité de dislocations par ce traitement mécanique favorisait l'élimination des défauts ponctuels et augmentait quelque peu la dose d'incubation du gonflement. Malgré tout, un gonflement à haute température (~ 600 °C) subsistait. La présence d'éléments d'addition, en faible concentration (< 1 %), modifie la mobilité des défauts ponctuels, du fait de l'interaction attractive ou répulsive entre impureté et défaut ponctuel. Parmi les éléments d'addition bénéfiques, le choix du titane associé à une optimisation du rapport Ti/Si s'est imposé et a amélioré la résistance au gonflement dans tout le domaine de fonctionnement des gaines et TH, sans entraîner de fragilisation rédhibitoire du matériau. La nuance « 316 Ti écroui » a permis d'atteindre des doses de l'ordre de 90 à 100 dpa. Mais pour obtenir ces bons résultats, il faut que ces éléments d'addition conservent toute leur efficacité ; pour cela, ils doivent se présenter sous la forme d'une fine précipitation qui ne peut être obtenue que par des traitements thermomécaniques bien contrôlés durant toutes les phases de fabrication, depuis l'aciériste jusqu'au tubiste. Des spécifications précises ont dû être rédigées pour parvenir à un produit reproductible à l'échelle industrielle.

En jouant aussi sur les éléments d'addition majeurs de l'acier (Ni et Cr), on est passé à la nuance « 15-15 Ti écroui », plus riche en nickel et plus pauvre en chrome que l'acier 316 qui est ainsi devenue la référence française pour le matériau de gaine. Des recherches réalisées sur cette nuance est née une spécification optimisée pour le projet européen de RNR : EFR,

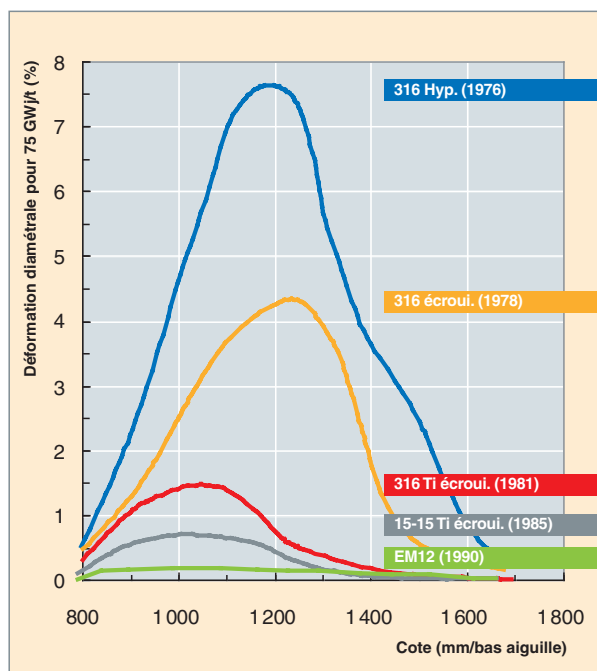


Fig. 97. Réduction à taux de combustion constant de la déformation diamétrale maximale des gaines des assemblages combustibles irradiés dans PHÉNIX grâce aux améliorations métallurgiques apportées aux aciers inoxydables austénitiques – Comparaison avec l'acier ferrito-martensitique EM12.

dénommée « *Austenitic Improved Material* » nuance 1 (AIM1) ; elle équipe actuellement les aiguilles de la dernière campagne de fabrication pour PHÉNIX et est apte à atteindre une dose maximale de 130 dpa. La figure 97 illustre cette évolution de la résistance au gonflement des gaines en acier austénitique des aiguilles PHÉNIX.

La deuxième classe de matériaux est celle des alliages de nickel. Des essais d'irradiation systématiques réalisés dans les années 60 ont montré le rôle important du nickel sur la résistance au gonflement ; le CEA comme ses homologues aux États-Unis et en Grande-Bretagne a ainsi étudié différents alliages parmi lesquels l'Inconel 706 et le Nimonic PE16. Si les irradiations ont bien confirmé le faible gonflement de cette famille d'alliages pour des doses supérieures à 120 dpa, elles ont aussi mis en évidence une forte tendance à la fragilisation à l'état irradié ; la fragilité excessive de l'Inconel 706 par précipitation de phase  $\eta$  aux joints de grains induite par l'irradiation a provoqué des ruptures de gaine très étendues sur des aiguilles combustibles soumises à une interaction mécanique combustible gaine, lors d'une remontée à puissance nominale du réacteur ; cet état de fait a conduit le CEA à abandonner les études sur ces matériaux, seule la Grande-Bretagne a persévéré avec des nuances optimisées du PE16.

La structure cubique centrée de la classe des aciers ferritiques-martensitiques leur confère une grande stabilité structurale sous irradiation et une bonne résistance au gonflement. Cependant, leur tenue en fluage thermique inférieure à celle des aciers austénitiques s'accommode mal de leur utilisation comme matériau de gaine mais convient bien pour le TH dont la température maximale de fonctionnement reste inférieure à 600 °C. Comme attendu, de faibles gonflements (1 à 3 %) selon la composition et l'état structural des aciers ont été observés jusqu'à 150 dpa. L'acier EM10 (9Cr-1Mo) s'est révélé le plus stable sur tout le domaine de température d'irradiation et l'acier EM12 (9Cr-2Mo-Nb-V), utilisé pour les gaines, le plus résistant au fluage thermique. Une attention particulière a été portée sur l'évolution sous irradiation de la température de transition ductile fragile (TTDF) caractéristique de ces matériaux ferritiques. Contrairement à la nuance F17 (17 %Cr) qui voit sa TTDF atteindre 250 °C sous irradiation, température incompatible avec les opérations de manutention des assemblages, l'EM10 conserve une TTDF inférieure à la température ambiante jusqu'à 100 dpa (fig. 98).

Le point faible des aciers ferritiques-martensitiques reste leur tenue mécanique à haute température. Pour les utiliser comme matériau de gaine pour les très fortes doses (200 dpa) visées pour les RNR de 4<sup>e</sup> génération, un renforcement de la microstructure par une microdispersion de phase durcissante tels que des nano-précipités d'oxydes a été étudiée. Des premières nuances d'alliages ODS (*Oxide Dispersion Strengthened*), sur la base d'un acier ferritique à 13 %Cr contenant des nano-précipités d'oxydes de titane ou d'yttrium, ont été irradiés dans PHÉNIX comme gaine d'aiguilles

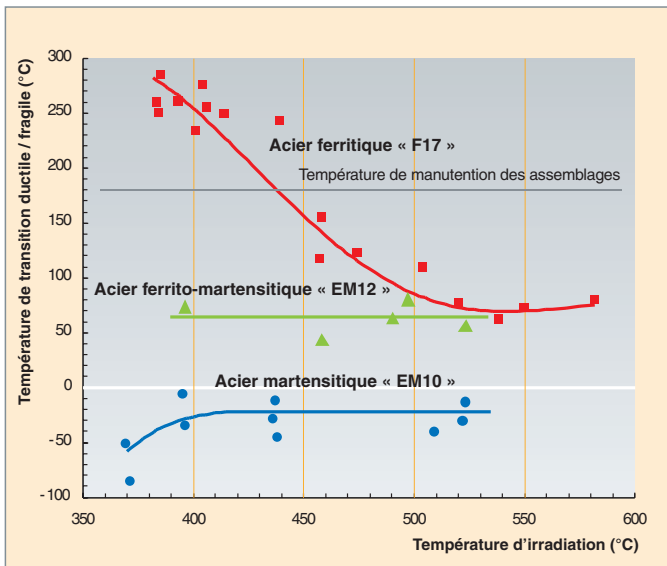


Fig. 98. Évolution de la température de transition ductile/fragile d'aciers ferritiques martensitiques : nuances F17, EM10 et EM12, utilisés comme matériau de tube hexagonal (TH) d'assemblages RNR.

combustibles dans les années 80, en collaboration avec Belgonucléaire. Si les examens ont confirmé leur bonne stabilité dimensionnelle autour de 80 dpa, ils ont aussi révélé une fragilisation intolérable induite par la précipitation d'une phase fragilisante. Néanmoins, les études sur des ODS de types martensitique (9 % Cr) et ferritique (> 12 % Cr) continuent d'être menées aujourd'hui au CEA avec, en particulier, une collaboration bilatérale avec le Japon (JAEA) pour disposer,

*in fine*, d'un matériau de gaine à très hautes performances. Cependant, la mise au point de ces nouveaux ODS sera longue avant de parvenir à un matériau industrialisable.

En conclusion, les améliorations constantes apportées aux aciers austénitiques et le recours à certains aciers martensitiques pour le TH expliquent l'augmentation des performances des assemblages, tout au long de ces trente dernières années d'exploitation du réacteur PHÉNIX (fig. 99), en termes de taux de combustion et de dose.

De plus, les études sur les matériaux ont été accompagnées d'une analyse des règles de dimensionnement des matériaux de structure dans cet environnement hostile qu'est le cœur d'un RNR. La méthodologie RAMSES II [5], basée sur le standard RCC-MR et prenant en compte les spécificités des matériaux irradiés (dommages, fragilisation, modes de rupture) avait ainsi été proposée par le CEA dans un cadre européen pour l'ex-projet de réacteur rapide au sodium EFR et pourra être appliquée au dimensionnement des assemblages du prototype de RNR de 4<sup>e</sup> génération.

#### ► Références

- [1] H. BAILLY, D. MENESSIER ET C. PRUNIER, « *Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides* », série Synthèses Eyrolles (1996), chapitre III.
- [2] J. H. KITTEL, B. R. T. FROST, J.-P. MUSTELIER, K. Q. BAGLEY, G. C. CRITTENDEN AND J. VAN DIEVOET, « *History of fast reactor development* » Journal of Nuclear Materials, 204 (1993) 1-13.

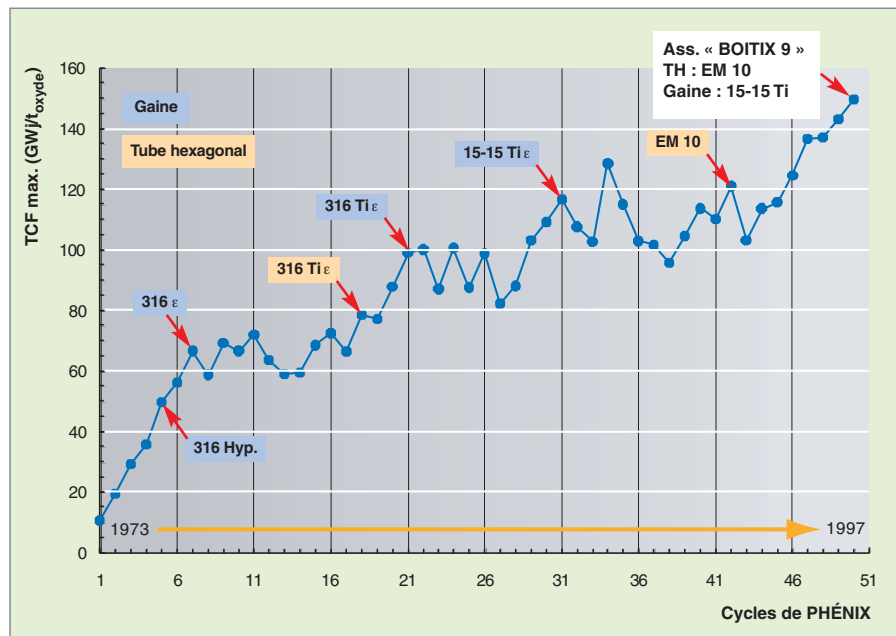


Fig. 99. Évolution des performances en taux de combustion des assemblages combustibles, en fonction des cycles d'irradiation du réacteur PHÉNIX, due au passage progressif vers des matériaux de structure (TH et gaine) à meilleure résistance au gonflement sous irradiation.

- [3] J.L. SERAN et al., *Behaviour under neutron irradiation of the 15/15 Ti and EM10 steels used as standard materials of the PHENIX fuel subassembly*, 15th international symposium on effects of radiation on materials, Nashville, USA (1990).

- [4] A. MAILLARD, M. TOURON, J.-L. SERAN, A. CHALONY, *Swelling and irradiation creep of neutron irradiated 316 Ti and 15-15 Ti steels*, Effects of Radiation on Materials, 16th International Symposium, ASTM, STP 1175, Philadelphia (1993).

- [5] Groupe de Travail RAMSES 2, « *Règles d'analyse mécanique des structures irradiées* », rapport CEA-R-5618.

**Michel PELLETIER,**  
Département d'études  
des combustibles

# Combustibles et cibles pour la transmutation en RNR

Un des axes de recherche du CEA sur la gestion des déchets de haute activité à vie longue (essentiellement les actinides mineurs : neptunium, américium et curium, ainsi que certains produits de fission comme le technétium) consiste en l'étude de leur transmutation, c'est-à-dire leur transformation, sous un flux de neutrons, en éléments non radioactifs ou à durée de vie beaucoup plus courte.

La transmutation d'un radionucléide par les neutrons peut se réaliser soit par réaction de fission, soit par réaction de capture neutronique. Dans le cas d'une disparition par fission, le noyau atomique est transformé en produits de fission, majoritairement à vie courte (inférieure à cinquante ans). Dans le cas d'une disparition par capture, le noyau est transformé en un autre radionucléide, ne permettant pas nécessairement une réduction significative de la radiotoxicité à moyen ou long terme. Pour une transmutation efficace, on cherche donc naturellement à favoriser les réactions de fission plutôt que celles de capture.

## Les RNR : des réacteurs capables de transmuter efficacement les actinides

Le spectre rapide des RNR offre de meilleures conditions pour une transmutation par fission que le spectre thermique des REP. Le tableau ci-dessous donne, pour chaque radionucléide à transmuter, les **sections efficaces\*** moyennes de capture  $\sigma_c$  et de fission  $\sigma_f$ , ainsi que le rapport  $\alpha$  de ces sections, pour trois spectres neutroniques caractéristiques : un spectre REP avec combustible UOX, un spectre REP avec combustible MOX et un spectre RNR avec un combustible MOX. Le rapport  $\sigma_c/\sigma_f$  est un indicateur des probabilités de disparition par capture (section  $\sigma_c$ ) plutôt que par fission (section  $\sigma_f$ ) à la pre-

mière interaction neutronique. On voit qu'il est réduit d'un facteur 5 au moins pour la majorité des radionucléides, quand on passe du spectre de neutrons d'un REP (thermique ou épithermique) à celui du RNR.

## Recyclage : homogène ou hétérogène ?

Différentes méthodes de transmutation en RNR sont actuellement étudiées. Pour les actinides mineurs, deux modes de transmutation existent, chacun avec ses avantages et ses inconvénients. Le premier consiste à diluer les actinides mineurs dans le combustible standard des RNR. La transmutation a lieu au sein du combustible : c'est le mode homogène. On profite, dans ce cas, de la grande similitude cristalline qui existe entre les différents oxydes d'actinides (structure cubique de type fluorine) et de leur mutuelle solubilité. Pour minimiser l'impact de l'introduction des actinides mineurs sur les paramètres de sûreté du RNR, la teneur en actinides mineurs dans le combustible reste relativement faible (moins de 5 % des atomes lourds). Dans ces conditions, on n'attend pas d'évolution significative des performances du combustible, dont les propriétés thermo-mécaniques restent très proches de celles du combustible standard. L'expérience d'irradiation SUPERFACT dans Phénix [1] en est une bonne démonstration (fig. 100). L'impact est toutefois beaucoup plus important sur les usines de fabrication du combustible. Les fortes émissions neutroniques et puissance thermique de l'américium, et surtout du curium, engendrent des contraintes supplémentaires d'exposition pour le personnel, de **criticité\*** ou de nouveaux risques liés au dégagement thermique. La fabrication doit se concevoir en cellules blindées avec télémanipulateurs, ce qui nécessite de repenser les procédés (compacité des installa-

Sections efficaces (exprimées en barns*) des radionucléides à transmuter									
Isotope	Réacteur à neutrons lents (REP-UOX)			Réacteur à neutrons épithermiques* (REP - MOX)			Réacteurs à neutrons rapides (RNR)		
	$\sigma_f$	$\sigma_c$	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$	$\sigma_f$	$\sigma_c$	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$	$\sigma_f$	$\sigma_c$	$\alpha = \sigma_c / \sigma_f$
Np 237	0,52	33	63	0,6	18	30	0,32	1,7	5,3
Am 241	1,1	110	100	0,8	35,6	44,5	0,27	2,0	7,4
Am 243	0,44	49	111	0,5	31,7	63,4	0,21	1,8	8,6
Cm 244	1,0	16	16	1	13,1	13,1	0,42	0,6	1,4
Cm 245	116	17	0,15	33,9	5,4	0,2	5,1	0,9	0,18
Tc 99	-	9	-	-	-	-	-	0,5	-

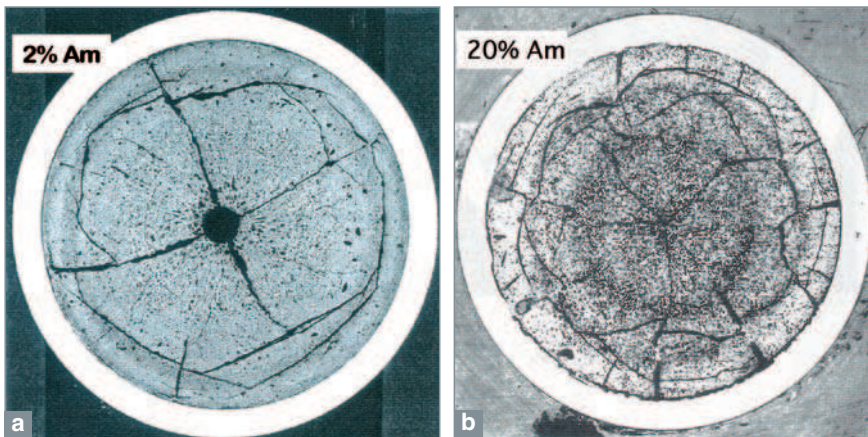


Fig. 100. Combustible de l'expérience SUPERFACT après irradiation. Le combustible contenant 2 % d'américium (à gauche) a subi une restructuration typique d'un combustible RNR standard, alors que le combustible contenant 20 % d'américium présente un gonflement important lié à la création d'un nombre élevé de bulles d'hélium, produit de la décroissance alpha du curium 242, lui-même formé par capture neutronique de l'américium 241.

tions, robustesse et simplicité des procédés, gestion intégrée des déchets et rebuts) afin de les adapter à une manipulation et une maintenance plus lourdes et délicates et minimiser le surcoût économique qui en résulte.

La seconde méthode, appelée recyclage hétérogène, consiste, au contraire, à séparer la gestion des actinides mineurs de celle du plutonium et de l'uranium. Le combustible standard et, par conséquent, les usines de fabrication, ne sont pas affectés par la gestion des actinides mineurs. Ces derniers sont concentrés dans des assemblages spécifiques du cœur du réacteur, appelés « cibles », et sont fabriqués voire retraités dans des usines dédiées. Le flux de métal lourd (actinides) dans les usines est ainsi limité aux seuls flux d'actinides mineurs, ce qui permet de concevoir des usines plus compactes et mieux adaptées aux problèmes technologiques liés à la manipulation de l'américium et du curium. *A contrario*, un gros effort de R&D est nécessaire pour concevoir ces nouveaux objets et les qualifier au même niveau que le combustible standard.

Les études réalisées en France sur la gestion des déchets radioactifs à vie longue ont fait une place prépondérante aux cibles composites [2]. Les actinides mineurs, toujours sous leur forme oxyde, la plus stable et la plus facile à manipuler, sont mélangés à une matrice inerte, du point de vue neutronique, mis en forme et frittés sous forme de pastilles (fig. 101), comme pour un combustible standard. L'optimisation du composite est une étape longue, requérant des essais d'élaboration et de compatibilité des matériaux, des mesures de propriétés, des tests en réacteur destinés à maîtriser et mieux comprendre son comportement sous irradiation. Pour ne citer que les phénomènes ayant un impact significatif sur le dimensionnement des cibles et leur performance, on notera :

1. La forte production d'hélium, produit de la décroissance alpha du curium 242, pouvant engendrer un fort gonflement s'il reste occlus dans la matériau, ou une pression additionnelle de gaz dans le **plenum\*** s'il est relâché ;

2. l'endommagement de la matrice par les neutrons rapides, le recul des fragments de fission et les particules alpha produites par les réactions nucléaires de décroissance, d'où une modification des propriétés du combustible, notamment une forte dégradation des propriétés thermiques ;

3. l'interaction chimique combustible/gaine ;

4. l'interaction mécanique combustible/gaine.

Après avoir exploré une large palette de matériaux pouvant jouer potentiellement le rôle de matrice inerte, telles que des nitrures (ZrN, TiN) ou des métaux réfractaires (Mo, Cr), on oriente aujourd'hui le choix des matrices inertes vers des matériaux oxydes, à structure cubique, comme le spinelle, la magnésie, le YAG ou la zircone stabilisée à l'Yttrium, offrant globalement des propriétés thermo-mécaniques et chimiques et un comportement sous irradiation acceptables. Les composés d'actinides, quant à eux, évoluent vers des solutions solides cubiques complexes, telles que  $(An,Zr,Y)O_{2-x}$  ou  $Am_2ZrO_7$ , présentant potentiellement une meilleure stabilité sous irradiation et un moindre pouvoir corrodant que les dioxydes simples de structure fluorine. Enfin, la microstructure du composite à « macro-masses » pour laquelle les composés d'actinides mineurs sont répartis de façon homogène

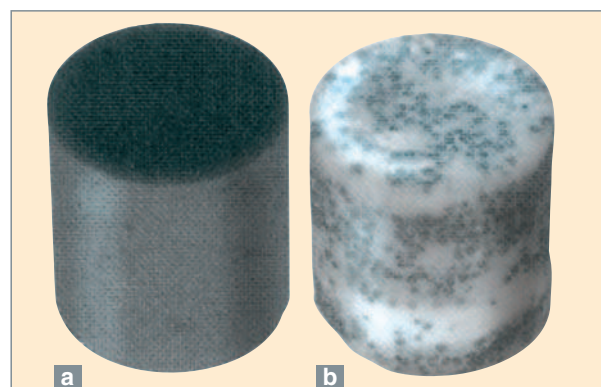


Fig. 101. pastille de combustible standard (a) et de combustible composite (b) pour la transmutation. Le combustible composite est ici composé d'une matrice inerte de spinelle (en blanc) et de macro-masses de composé d'oxyde d'actinides (en noir).



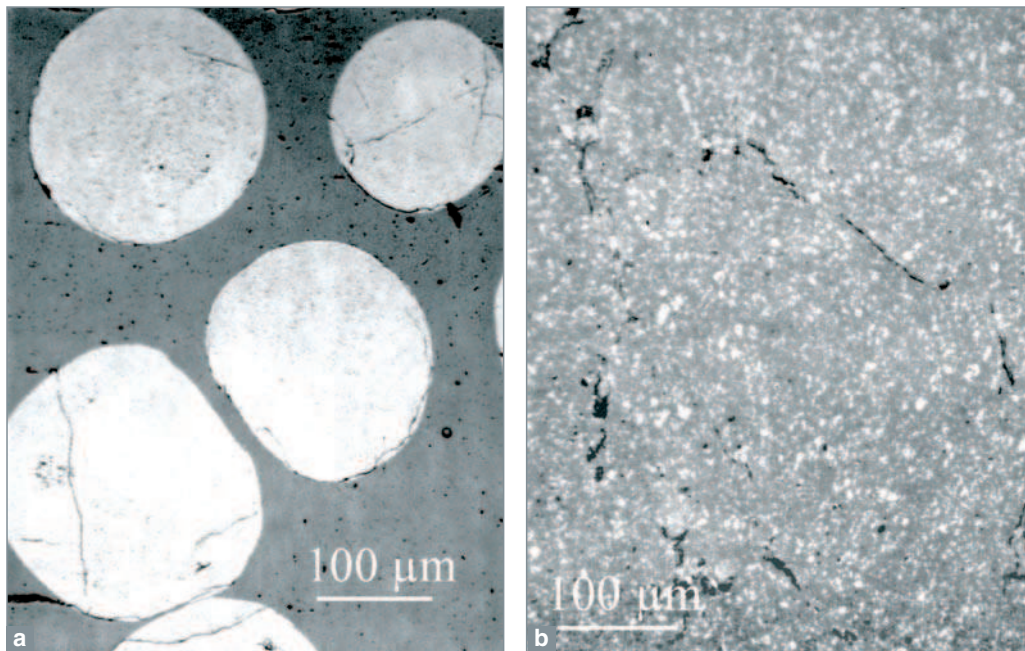


Fig. 102. Microstructures comparées d'un combustible composite à « macro-masses » (a) et « micro-dispersé » (b). La matrice inerte (en gris) du composite à macro-masse subit un moindre endommagement par les fragments de fission. La zone d'endommagement est localisée sur une dizaine de microns seulement en périphérie des microsphères, alors qu'elle recouvre l'ensemble de la matrice pour le composite microdispersé.

dans la matrice inerte sous forme de microsphères d'une centaine de microns environ permet de limiter les dégâts d'irradiation de la matrice à quelques microns autour des microsphères (fig. 102).

Le comportement sous irradiation de ces différentes matrices a d'abord fait l'objet d'études par des irradiations aux ions et aux neutrons. Le comportement en réacteur de ces cibles est ensuite étudié par plusieurs irradiations expérimentales à Phénix ou dans des réacteurs thermiques expérimentaux, ce qui a permis d'identifier et d'observer les principaux phénomènes intervenant en pile dans ces cibles, notamment le comportement des produits de fission et de l'hélium et les interactions entre le composé d'actinide et la matrice inerte, en fonction des matériaux utilisés, des quantités d'actinides contenues, de la gamme de température dans laquelle on le fait fonctionner, et du taux de combustion ou de transmutation visé.

Ce programme se poursuit ; on attend de ces structures optimisées une bonne stabilité dimensionnelle, même sur de très longues durées d'irradiation, ce qui permettrait d'envisager des taux de transmutation très élevés, supérieurs à 90-95 %. Dans ces conditions, on pourrait imaginer un stockage définitif des cibles brûlées directement en sortie de réacteurs et éviter leur multirecyclage. Le cycle des cibles en serait grandement simplifié.

Dans le cadre de la nouvelle loi du 26 juin 2006 sur les déchets nucléaires, les études s'orientent désormais vers le recyclage homogène des actinides mineurs dans les RNR du futur à caloporteur gaz ou sodium, mais avec un combustible nourricier qui, suivant les types de réacteur, pourrait être un oxyde, un carbure ou un nitrure d'actinides, ces deux derniers présentant une meilleure densité en atomes lourds que le combustible standard MOX.

En parallèle, de nouvelles cibles sur support d'oxyde d'uranium plutôt que de matrice inerte sont également à l'étude. Ces cibles, placées dans la couverture fertile du réacteur, permettraient à la fois la transmutation des actinides et un bon contrôle de la physique du cœur, tout en réduisant les risques de prolifération.

#### ► Références

- [1] J.-F. BABELOT ET N. CHAUVIN, « *Joint CEA/ITU synthesis report of the experiment SUPERFACT 1* », rapport JRC-ITU-TN-99/03, 1999.
- [2] *Les déchets radioactifs à haute activité et à vie longue – Recherche et résultats : Axe 1 – Séparation et transmutation des radionucléides à vie longue* (dossier final décembre 2005 diffusé en mars 2006 par DEN/DDIN/DPRGD).

**Sylvie PILLON,**  
Département d'études des combustibles