

Nucléaire : énergie, environnement, déchets, société

Projet fédérateur Matériaux

Annexe 1 : programme scientifique

Les problématiques qui concernent les matériaux sont nombreuses dans le contexte du nucléaire du futur et la construction d'un réacteur nécessite un panel de matériaux considérable qui doivent répondre à des exigences très différentes suivant la fonction choisie pour ce matériau dans le système pour lequel ils ont été retenus. Le programme scientifique de ce projet fédérateur est donc large.

Des priorités seront établies dans les différents appels à propositions en fonction des verrous technologiques qui auront été identifiés pour l'ensemble des systèmes. Ces appels pourront comprendre des projets exploratoires (durée 1 an) pour des actions innovantes en termes de R&D sur les matériaux ou d'approches expérimentales et/ou théoriques et des projets pluriannuels regroupant plusieurs équipes axés sur les priorités qui auront été fixées par le conseil de projet. La part de ces deux types d'actions sera évolutive au cours des 5 ans d'existence du projet fédérateur.

1-Contexte du Projet : quels réacteurs concernés?

Le Projet Fédérateur NEEDS-MATERIAUX vise à soutenir le développement des matériaux pour les réacteurs de 4^{ème} génération. Par réacteurs de 4^{ème} génération, on entend les réacteurs à neutrons rapides :

- refroidis au sodium (RNR-Na)
- refroidis à l'hélium (RNR-G)
- à sels fondus (RSF)

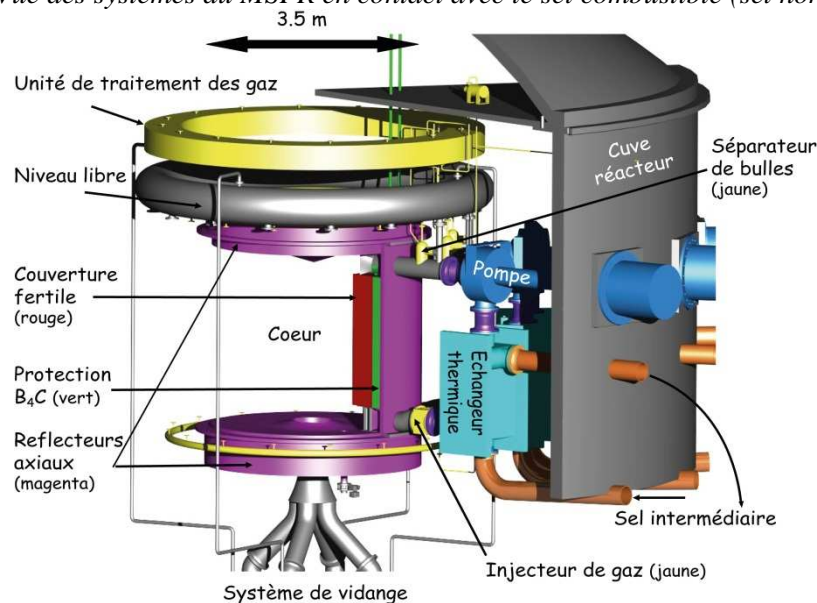
Le réacteur rapide au sodium ou RNR-Na, bien avancé technologiquement, constitue la filière de référence de la 4^{ème} génération de réacteur pour l'horizon 2040. Un premier prototype de cette filière (ASTRID) devrait diverger aux alentours de 2023. Il est basé sur un refroidissement du cœur par du sodium liquide à pression atmosphérique aux températures comprises entre 350 et 550°C. Par rapport à la génération précédente (Rapsodie, Phénix, Superphénix), il intègre des contraintes d'économies en ressources par une utilisation optimale de l'uranium et du plutonium, environnementales par la minimisation du volume et de la radiotoxicité des déchets (par la transmutation des actinides mineurs), de compétitivité et de sûreté accrues et de résistance vis-à-vis de la prolifération et des agressions externes. **Les études matériaux relatives à cette filière constituent clairement une priorité du Projet Fédérateur NEEDS-MATERIAUX. Elles aborderont l'ensemble des composants du réacteur.**

Le réacteur rapide haute température et à caloporteur gaz ou RNR-G constitue une alternative plus lointaine aux RNR-Na. Il est basé sur un refroidissement du cœur par de l'hélium sous forte pression (70 bars) et à haute température (400-900°C). Le projet d'un démonstrateur à gaz (ALLEGRO) est actuellement en discussion dans un cadre européen. Ce démonstrateur, s'il voyait le jour, permettrait de tester les premiers éléments combustibles de cette filière. **Le développement de cette filière étant largement plus tardif que la précédente, le Projet Fédérateur NEEDS-MATERIAUX focalise les études matériaux préférentiellement sur le verrou technologique que constituent l'assemblage combustible et l'élément combustible, soumis à des températures et un flux rapide élevés.**

Le réacteur rapide à sels fondus (MSFR) est une autre alternative très innovante, proposée depuis une dizaine d'années par les équipes du CNRS. La principale caractéristique du système MSFR en comparaison des concepts de RSF étudiés auparavant est la suppression du graphite modérateur dans le cœur, conduisant à un réacteur régénérateur à spectre neutronique rapide avec un cycle de combustible thorium. Le MSFR a été reconnu comme une alternative de long terme aux systèmes à spectre rapide à combustible solide, grâce à ses excellentes propriétés (très bons coefficients de sûreté, inventaire fissile réduit, pas de réserve de réactivité à prévoir, cycle du combustible simplifié, ...). Le forum international génération IV l'a officiellement sélectionné, depuis 2008, parmi les systèmes dont l'étude doit être poursuivie.

Le MSFR de référence, retenu dans le cadre du projet européen EVOL (Evaluation and Viability of Liquid Fuel FastReactor System) du 7^{ème} PCRD génère une puissance nominale de 3000 MWth avec un volume total de sel combustible de 18 m³ et une température de fonctionnement qui se situe entre 650 et 750°C. Comme on le voit sur la figure 1, le cœur du MSFR est constitué d'un cylindre unique (dont le diamètre est sensiblement égal à la hauteur) dans lequel les réactions nucléaires se produisent, au sein du sel combustible en mouvement ascendant.

Figure 1 : Vue des systèmes du MSFR en contact avec le sel combustible (sel non représenté)



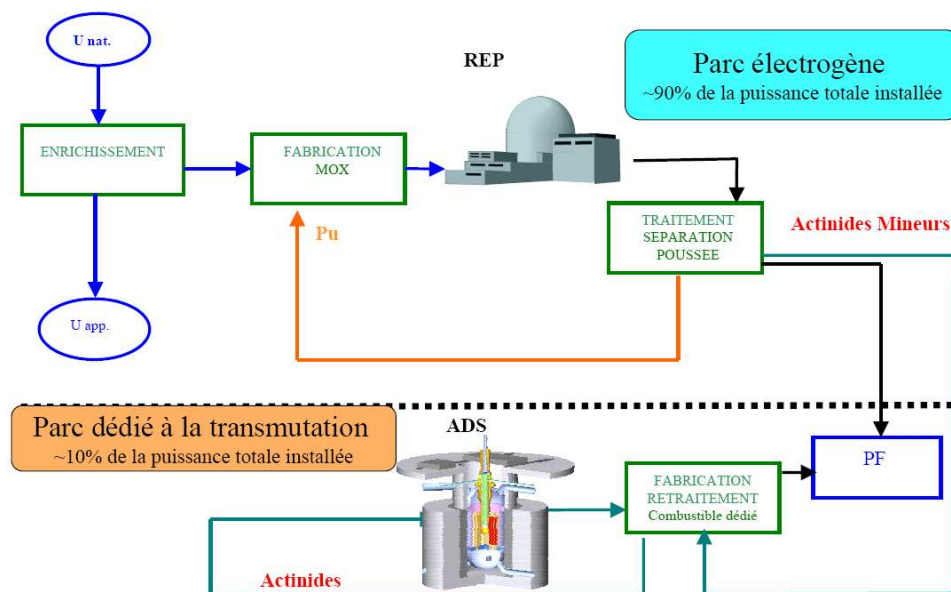
Les structures externes du cœur et les échangeurs de chaleur du combustible (contenus dans la cuve réacteur) sont protégés par des réflecteurs épais composés d'alliages de nickel conçus pour absorber plus de 99% du flux de neutrons sortants. Les réflecteurs sont eux-mêmes entourés d'une couche épaisse de B₄C qui les protège du reste des fuites de neutrons. Le réflecteur radial contient une couverture fertile (épaisse de 50 cm. - zone rouge dans la figure 1) afin d'augmenter le taux de régénération. Le sel fertile est composé de LiF-ThF₄ avec une proportion initiale de 22,5 % molaire de ²³²Th.

Dans ce réacteur, le combustible n'est pas solide, mais liquide. Il s'agit de fluorure de lithium, de thorium et d'uranium. Dans le cadre du Projet Fédérateur NEEDS-MATERIAUX, les études ne concernent donc pas le combustible lui-même, mais les éléments de structure allant des réflecteurs axiaux aux échangeurs de chaleur.

A ces réacteurs de 4^{ème} génération, s'ajoute le réacteur rapide sous-critique couplé à une source externe de neutrons ou ADS, dédié à la transmutation des déchets radioactifs à vie longue (principalement les actinides mineurs). Le concept retenu dans le cadre du projet européen EUROTRANS, est un cœur sans uranium et fortement chargé en actinides mineurs, refroidi au plomb à température comprise entre 400 et 480°C (ou Pb/Bi entre 300 et 350°C dans la perspective du prototype expérimental MYRRHA), muni d'une cible de spallation et couplé à un accélérateur. Ce type de réacteur ne répond pas aux critères de 4^{ème} génération : il serait intégré, avec son cycle dédié

de recyclage des actinides, dans une 2nde strate pour y incinérer ses propres déchets ainsi que les actinides mineurs produits par les réacteurs électrogènes de la 1^{ère} strate (figure 2).

Figure 2 : Scénario double strate



Le Projet Fédérateur NEEDS-MATERIAUX concentre ses efforts sur les verrous technologiques que constituent les matériaux de structure du cœur, compatibles avec le Pb et Pb/Bi et soumis à un flux rapide, les combustibles de transmutation et la cible de spallation.

2-Périmètre du Programme : quels matériaux considérés ?

Les matériaux associés à ces réacteurs comprennent, de manière générique :

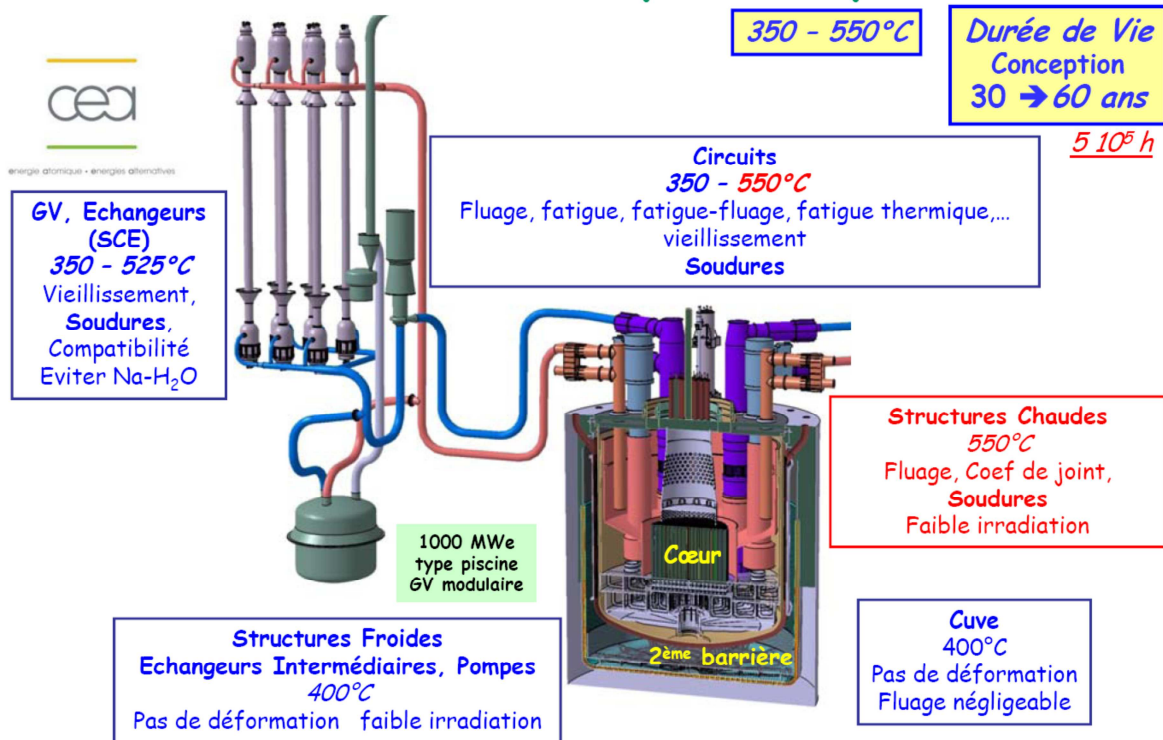
- les matériaux de structure (alliages métalliques ou céramiques ou composites) du cœur (gaine, assemblage,...) et hors cœur (structures fixes : cuve, échangeurs, GV, système de vidange pour le MSFR ...),
- les matériaux céramiques à base d'uranium, de plutonium pour le combustible nourricier et les couvertures fertiles, les deux chargés ou non en actinides mineurs à transmuter selon les scénarios de transmutation étudiés,
- les matériaux absorbants, modérateurs ou réflecteurs (alliages métalliques ou céramiques) à base de bore, d'hafnium ou d'europium pour les barres de commande et d'arrêt, les protections neutroniques supérieures et latérales et les réflecteurs.

Ces matériaux sont soumis à des conditions extrêmes de fonctionnement, dépendantes des filières considérées : ils fonctionnent à température plus ou moins élevée, sous flux de neutrons rapides ; ils peuvent être endommagés par divers projectiles (neutrons, produits de fission, particules alpha...)

selon leur position dans le réacteur et travaillent en milieu plus ou moins agressif, subissant corrosion et érosion.

La nature des matériaux rencontrés dans un réacteur nucléaire et leurs conditions d'opérabilité sont très variées, les défis technologiques associés également. La figure 3 ci-dessous illustre ce point sur la base du réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium (RNR-Na).

Figure 3 : Les matériaux et leur condition de fonctionnement du RNR-Na



Le tableau 1 ci-dessous synthétise les choix de matériaux définis aujourd'hui (en bleu les options de référence, en rouge les options alternatives) sur lesquels porte le Projet Fédérateur NEEDS-MATERIAUX. On notera que les études matériaux couvrent l'ensemble des composants du réacteur lorsqu'il s'agit du RNR-Na, promis à un développement à moyen terme, alors qu'elles ne couvrent que les constituants assimilés à des verrous technologiques pour les RNR-G, MSFR et ADS, dont les développements sont reportés à plus long terme.

Pour la filière en combustible liquide les matériaux à considérer sont l'enveloppe du cœur, les tuyaux d'injection et d'extraction du combustible, les échangeurs de chaleur vers le circuit intermédiaire et les pompes (cet ensemble sera assimilé à une gaine combustible dans la suite). Dans les zones chaudes (haut du cœur), des protections thermiques peuvent être envisagées.

Tableau 1.a : Liste des matériaux considérés dans le PF MATERIAUX et les domaines d'étude à considérer (température, interfaces chimiques)

Réacteur>	RNR-Na			RNR-G			RSF			ADS			
Composant>	Domaine de température considéré	Interfaces	Matériaux	Domaine de température considéré	Interfaces	Matériaux	Domaine de température considéré	Interfaces	Matériaux	Domaine de température considéré	Interfaces	Matériaux	
Gaine combustible (forte irradiation)	nominal : 400-700°C	externe : caloporteur sodium	Acier austénitique 15-15Ti (AIM1, AIM2) Acier FM ODS 9, 14Cr Alliages Vanadium	nominal : 500-900°C	externe : caloporteur hélium	SiC/SiC sandwich+liner Ta? ou Nb? Buffer : tresse C/SiC ou SiC/SiC en interface pastille/gaine	550 à 650°C	interne : fluide intermédiaire - externe : sel combustible (fluorure)	Hastelloy	T _{gaine} : 400-550°C en nominal	externe : caloporteur Pb ou Pb/Bi	T91 avec traitement de surface (type GESA) AISI 316L si besoin plus hte T°C : 15/15 ou ODS (peu/pas d'étude)	
	transitoire : 700-950°C	interne : combustible oxyde		transitoire : 1600°C	interne : combustible carbure		500 - 750 °C	interne : Hastelloy - externe : sel combustible (fluorure)		SiC/SiC (protection thermique)	T _{gaine} : 885°C en transitoire (sur une courte période)		interne : combustible composite oxyde
				Maintien de la géométrie gaine à 2000°C en accidentel				Tenue à 800°C quelques heures (transitoires normaux) et à 1000°C pendant quelques minutes (avant vidange - en accidentel)			Hastelloy + SiC/SiC		Pb-Bi entrée/sortie : 300-350°C Pb entrée/sortie : 400-480°C
Gaine absorbant (forte irradiation)	Idem gaine combustible	externe : sodium interne : sodium+absorbant	Idem gaine combustible ODS Fe Cr										
TH (forte irradiation)	idem gaine combustible	interne/externe : sodium	Acier FM EM10 voire T91-92 Tube en SiC/SiC + Squelette en EM10	nominal : 400-880°C	interne/externe : hélium	SiC/SiC + Squelette en alliage réfractaire (Ta?, Nb?)	nominal : 500 - 750°C	interne/externe : sel combustible / fluide intermédiaire	Hastelloy	380-530	interne/externe : Pb ou Pb/Bi	T91	
Pied	≤400°C	sodium	316Ti										
Tête	≤570°C	sodium	316Ti										
Combustible nourricier	500<T<T _{fusion}	gaine sodium en cas de rupture de gaine	(U,Pu)O _{2+x} (U, Pu, AM)O _{2+x} Pu/U+Pu=10-20% AM/U+Pu+AM<5% +UO ₂ (U,Pu)C Pu/U+Pu<20%	500<T<T _{fusion}	gaine hélium en cas de rupture de gaine	(U,Pu)C Pu/U+Pu<20%	625-800°C	Hastelloy SiC/SiC	sels fluorés	500<T<T _{fusion} ou eutectique	gaine Pb ou Pb/Bi en cas de rupture de gaine	CERCER : (Pu _{0,5} AM _{0,5})O ₂ +MgO (50-60 vol%) CERMET : (Pu,MA)O ₂ + ⁹² Mo (50-60 vol%)	
Couverture	500<T<T _{fusion}	idem combustible	(U,MA)O _{2+x} AM/U=10-20%				600°C	Hastelloy	sels fluorés				
Absorbant (forte irradiation)	350<T<800°C Exploration jusqu'au point de fusion intéressant	gaine sodium	¹⁰ B ₄ C HfB ₂ TiB ₂ Hf HfH _x AlB ₁₂ β-Eu ₂ O ₃ Eu ₂ TiO ₅ Eu ₂ Hf ₂ O ₇										
Barre de commande (forte irradiation)	350-800	Na/absorbant	- chemise int.: 316LN - liaisons mobiles: (i) 316Ti + stellite (ou autre revêt. dur) (ii) EM10										
Réflecteur	350<T<800°C Exploration jusqu'au point de fusion intéressant	sodium gaine	EM10 et F17 ¹¹ B ₄ C SiC dense MgO MgAl ₂ O ₄ Y ₃ Al ₅ O ₁₂				500°C	Gaz neutre	¹¹ B ₄ C Acier				
Composants hors cœur (>30 ans)	struct chaudes 550°C	Na	316 LN alliage Ni										
	GV, SCE 350-525°C	Na/eau ou Na/gaz	316 LN 800H										
	circuit/tuyaux 350-550°C	Na	316LN 9Cr										
	struct froide, cuve 400°C	Na	316 LN										
Cible de spallation													

3-Programme de recherches

3.1- Les thématiques

Les enjeux de ce Projet Fédérateur sont, pour chacun des matériaux considérés dans leur domaine de fonctionnement respectif (température, flux d'irradiation, durée) dans les installations nucléaires :

- d'acquérir une meilleure connaissance relative :
 - o à leur procédé de fabrication ou d'élaboration et leur structure et microstructure associée,
 - o à leur mise en forme et assemblage (soudage, collage,...),
 - o à leurs propriétés thermiques et thermomécaniques en relation avec leur structure et microstructure et leur évolution sous flux,
 - o aux études de diagramme de phases des systèmes pertinents (notamment en lien avec les études de compatibilité avec l'environnement réacteur : caloporteur et matériaux du proche voisinage ou stockage : eau, air) et aux grandeurs thermodynamiques de base associées,
 - o à la caractérisation des défauts élémentaires des matériaux (intrinsèques ou créés par l'irradiation) et leurs propriétés de transport (mécanismes élémentaires de diffusion et migration)
 - o à l'évolution microstructurale sous irradiation : caractérisation des défauts d'irradiation, impact de l'irradiation sur la formation et la mobilité de ces défauts, germination et croissance sous irradiation, apparition de nouvelles phases sous irradiation,, phénomènes de recristallisation ou d'amorphisation.
 - o à la mobilité sous irradiation : accélération sous irradiation des phénomènes de transport, diffusion à fortes concentrations et/ou en présence de défauts étendus ou d'agrégats, ségrégation sous irradiation.
- de développer les parades nécessaires à l'amélioration de leurs propriétés et comportement sous flux
 - o optimisation des nuances et compositions, microstructures,...
 - o revêtements, protections et procédé de dépôt associé,
 - o ...

Cette production de connaissances a pour objectif de :

- garantir et démontrer le bon fonctionnement des composants du réacteur en toutes circonstances (conditions normales ou transitoires) et sur toute la durée de leur vie,
- améliorer les performances des matériaux actuels (en termes de limite de dose admissible, taux de combustion, ou de résistance mécanique ou chimique en température, par exemple),
- améliorer et prévoir le comportement du réacteur en condition accidentelle grave.

3.2-La démarche

La démarche générale d'acquisition de connaissances s'appuie sur deux composantes indissociables : la première expérimentale ayant pour objectif la reproduction et la quantification des phénomènes physiques aux échelles pertinentes et la seconde théorique ayant pour objectif le développement de modèles physiques validés sur les données expérimentales.

Il sera donc fait largement appel à la simulation numérique et à la modélisation, dans le but d'obtenir une description plus physique qu'empirique du comportement des matériaux aux échelles pertinentes (de l'échelle atomique à l'échelle macroscopique). Cette simulation/modélisation doit être confrontée à l'expérience, seul moyen d'obtenir les données nécessaires pour les modèles et de valider leurs résultats. Il convient d'insister sur l'absolue nécessité d'avoir déterminé avec la meilleure fiabilité possible les grandeurs primaires indispensables lorsqu'il s'agira, en terme de sûreté, de valider les nouveaux composants. Cette détermination peut nécessiter le développement de nouveaux outils expérimentaux et la mise au point de nouvelles approches méthodologiques, parties intégrantes de la démarche.

3.2.1 – Modélisation/simulation

Dans le cadre des matériaux métalliques, les modélisations sont présentes à différentes échelles :

- le calcul ab initio du comportement des défauts ponctuels et solutés dans l'objectif d'alimenter en données robustes les modélisations aux échelles supérieures ;
- la modélisation par simulation en dynamique moléculaire du dommage primaire créé dans les cascades d'irradiation, dans l'objectif de revisiter les résultats à partir des nouveaux potentiels récemment disponibles ;
- la modélisation en « Binary Collision Approximation » pour évaluer le dommage primaire afin d'assurer la préparation et l'interprétation des expériences d'irradiation (JANNUS ou d'autres conditions d'irradiations spécifiques visant à étudier un paramètre particulier), mais aussi d'assurer le transfert de ces résultats expérimentaux aux cas d'application industrielle ;
- la modélisation en potentiel empirique et théorie élastique du comportement des nano et micro-amas de défauts ainsi que des dislocations pour identifier les mécanismes élémentaires à introduire aux échelles supérieures ;
- la modélisation des chemins cinétiques à l'aide des modèles de type Monte Carlo cinétique afin de décrire les évolutions nanostructurales à court terme ;
- la modélisation de l'évolution à long terme de la nanostructure d'irradiation sous et après irradiation et de la ségrégation/précipitation induite ou accélérée, en particulier au niveau de la dynamique d'amas ;
- le développement de la dynamique des dislocations servant à décrire leur comportement collectif et son utilisation pour l'analyse de la plasticité et de l'endommagement des matériaux vieillis ou irradiés, dans l'objectif de contribuer à la compréhension des mécanismes de plasticité et à l'établissement de lois de plasticité cristallines ;
- la modélisation du comportement en plasticité des agrégats cristallins et leur caractérisation expérimentales (EBSD, RX, neutrons...) ainsi que leur endommagement (amorçage de fissures, rupture intergranulaire,...) dans l'objectif de déduire le comportement mécanique macroscopique.

Pour les matériaux céramiques, la modélisation physique reste un défi ambitieux qui devra tirer parti des avancées réalisées pour l'étude des matériaux métalliques et qui demandera d'importants développements complémentaires et spécifiques (traitement des défauts chargés, traitement des actinides,...). On vise à développer également une approche multiéchelle. Les résultats de la simulation atomistique représentent les clés et les principes directeurs pour l'établissement des échelles méso et macro. Ainsi le programme prévoit une part de modélisation atomistique, pour les calculs de structure et de domaines de solutions solides, de perturbations structurales dues aux irradiations internes et de certaines propriétés. Ces études concerneront surtout les matériaux pour lesquels les données sont souvent anciennes et/ou peu fiables, lorsqu'elles existent. Une attention particulière sera portée à :

- l'étude des processus de diffusion sous irradiation (He, gaz de fission, actinides), rôle et évolution des joints de grain (piégeage des défauts),
- les évolutions de structure sous irradiation,
- l'estimation ab-initio de paramètres physiques et thermodynamiques (paramètres de maille, énergie de cohésion, chaleurs spécifiques),
- la modélisation de diagrammes de phases,

- la modélisation des échanges thermiques dans une matrice ou une cible évoluant dans le temps.

3.2.2 – Outils expérimentaux et approches méthodologiques

Les groupements de recherche NOMADE et MATINEX ont permis de développer des nouveaux outils pour :

- Les caractérisations structurales de matériaux radioactifs (Synchrotron, RMN, PAS, Diffraction X aux petits angles, RAMAN, MEB en mode environnemental,...)
- L'étude (radiolyse, lixiviation, corrosion, perméation) in-situ des interfaces solide/liquide ou solide/gaz sous irradiation (couplage RAMAN/cyclotron).

Certains de ces équipements sont désormais implantés sur ATALANTE (RMN, PAS) ou sur les lignes chaudes de SOLEIL (MARS), ESRF, CASIMIR (Labo Pierre Sue) ou à l'ICSM.

L'expérience acquise par ses équipes dans ces domaines et les méthodologies développées (irradiations externes à bas flux, électrochimie et Raman in situ par exemple) devraient faciliter les études sur les interfaces solide/liquide et solide/gaz rencontrées en réacteur (voir tableau 1) afin de comprendre les phénomènes de corrosion (rôle des impuretés, interactions avec les défauts, influence des méthodes d'élaboration des solides...).

Par ailleurs, l'étude du comportement des matériaux sous irradiation est maintenant le plus souvent abordée au moyen d'expériences à effet séparés d'irradiation avec des accélérateurs d'ions, couplant différents types d'irradiation à des techniques d'analyses fines et spécifiques nucléaires ou plus classiques : TEM, DRX, EXAFS, sonde atomique,... Cette approche paramétrique complémentaire à l'approche intégrale d'irradiation neutronique en réacteur permet de décorrélérer les effets des rayonnements et contribue à développer des modèles physiques de comportement sous irradiation. Le réseau EMIR « Etudes de matériaux sous irradiation » pourra être mis à profit pour faciliter l'accès aux différents accélérateurs du CEMHTI, du CSNSM, de la plateforme JANNUS (CEA-Saclay), du GANIL, et du LSI offrant la possibilité de réaliser de nouveaux couplages de moyens d'irradiation et de techniques de mesures susceptibles de générer de nouvelles approches méthodologiques.

4-Structuration du programme

Le Programme Fédérateur MATERIAUX est structuré en 6 axes :

- Axe 1 : Matériaux de structure métallique du cœur
- Axe 2 : Matériaux de structure métallique hors cœur
- Axe 3 : Matériaux de structure céramique du cœur
- Axe 4 : Matériaux combustible à base d'actinides (U, Pu et actinides mineurs)
- Axe 5 : Matériaux absorbants du cœur
- Axe 6 : Activités transverses

Pour les cinq axes « Matériaux », les études seront classées selon la nomenclature suivante :

- 1^{er} chiffre correspondant à l'axe concerné
- Trois lettres indiquant le type de réacteur concerné SFR, RCG, ADS, RSF
- Suivies d'un chiffre identifiant la thématique de l'étude :
 1. Mise au point de procédés d'élaboration, de fabrication, de mise en forme et d'assemblage. Lien avec la microstructure des matériaux. Modélisation/simulation.
 2. Mesures de propriétés thermiques, mécaniques, thermochimiques, thermodynamiques,...Lien avec la microstructure. Evolution sous irradiation. Modélisation/simulation.
 3. Etude des compatibilités thermochimiques avec l'environnement, interfaces, diagramme de phases. Lien avec la microstructure, effet de l'irradiation. Modélisation/simulation.

4. Etude de l'évolution microstructurale sous irradiation : étude des défauts ponctuels et étendus, transport/migration des espèces PF, He, précipitation, recristallisation, amorphisation,, mobilité sous irradiation Modélisation/simulation.

Exemple : 5-SFR-1 pour l'élaboration de frittés de carbure de bore.

L'axe transverse 6 intègre les développements de méthodes, outils expérimentaux ou théoriques, applicables à l'ensemble des matériaux.