

Un outil pour les études sur le combustible : le réacteur Jules Horowitz (RJH)

Le comportement des combustibles nucléaires dans les réacteurs de puissance est un domaine de R&D très important, nécessitant des expériences instrumentées susceptibles de reproduire les fissions et endommagements de ces combustibles à l'échelle d'un ou quelques crayons. Ces expériences sont menées dans des réacteurs de recherche, connus aussi sous le nom anglais de « *Material Testing Reactor (MTR)* ».

Depuis l'arrêt du réacteur SILOE (Grenoble), fin 1997, la France dispose d'un seul réacteur de ce type : OSIRIS (Saclay) dont l'arrêt devrait intervenir au début de la décennie 2010, du fait de son obsolescence technique (il a divergé en 1966). C'est pourquoi le CEA étudie, en liaison avec ses principaux partenaires français et internationaux un nouveau réacteur de recherche : le réacteur Jules Horowitz (RJH), du nom du grand physicien. Ce réacteur sera construit à Cadarache et divergera fin 2013. Associé aux laboratoires de préparation et d'examen des échantillons de combustible (LEFCA et LECA-STAR), le réacteur RJH constituera une plate-forme de recherche essentielle pour l'optimisation et la sûreté des combustibles existants et le développement des combustibles innovants requis pour les systèmes du futur.



Jules Horowitz est l'un des grands scientifiques de ce temps. Tour à tour chercheur, politique et industriel, il a eu l'intuition des grands projets nucléaires français. Cet émigré polonais, devenu Français et passionné de l'indépendance énergétique de son pays d'adoption, a été une figure majeure du nucléaire au plan mondial. Dès 1948, physicien de haut vol, il publie la première étude théorique sur la désintégration du méson mu. Il crée ensuite de toutes pièces la physique des réacteurs, spécialement celle des réacteurs à neutrons thermiques. Il est à l'origine, avec d'autres ingénieurs du CEA et d'EDF, du développement de la filière uranium naturel-graphite-gaz carbonique. Il aura du mal, d'ailleurs, fidèle à ses premières amours, à accepter l'abandon de cette filière, mais il défendra vite les nouveaux choix avec le même enthousiasme.

Les expériences d'irradiation « combustibles » dans le RJH

Pour le développement et la qualification de combustibles, on peut distinguer deux types d'expériences. Le premier type concerne les matériaux inertes qui assurent le confinement de la matière fissile (gaine des combustibles REP, céramiques d'enrobage pour les combustibles particuliers). Le second type concerne le système constitué de la matière fissile avec les matériaux de confinement.

Expériences concernant les matériaux de confinement

Il s'agit d'établir les lois de comportement mécanique macroscopique des gaines métalliques ou des céramiques d'enrobage sous la triple sollicitation mécanique, thermique et d'irradiation.

Les progrès obtenus dans la compréhension des mécanismes mis en jeu permettent de compléter les essais macroscopiques par des expériences plus fines améliorant, en association avec la simulation numérique, la capacité à extrapoler les résultats.

Un enjeu industriel et scientifique important est l'étude du comportement viscoplastique sous irradiation de ces matériaux. Dans l'espace des paramètres vitesses de déformation, température et intensité du flux radiatif, le couplage des mécanismes de production et de diffusion des hétérogénéités et la dynamique des dislocations détermineront les lois de fluage qui sont importantes pour la durée de vie du combustible et la gestion des transitoires incidentels ou accidentels.

Les essais post-irradiation sont essentiels, mais la nature couplée des mécanismes impose également des expériences sous flux, en réacteur de recherche.

À titre d'illustration, dans le cas des gaines de combustibles, les études sur le fluage d'irradiation conduisent à proposer sur le RJH, en complément des essais classiques qui seront toujours nécessaires, un dispositif expérimental permettant :

- La mise en place, sous flux, d'une contrainte bi-axiale (rendue nécessaire par la nature anisotrope des matériaux tels que le zirconium) ;

- le contrôle en ligne de cette contrainte mécanique ; il s'agit de modifier et mesurer en ligne la contrainte pour explorer les différents états de microstructure par lesquels passe le matériau ;
- un contrôle rigoureux des gradients thermiques, condition nécessaire à la bonne interprétation des données. Cette maîtrise des gradients est un enjeu technologique fort, du fait des taux d'irradiation importants qui sont visés (une quinzaine de dpa, « déplacements par atome » par an), compte tenu des échauffements parasites dus au flux gamma ambiant. Une technologie de circulation forcée de caloporteur NaK, embarquée dans le dispositif même, est en cours de développement (fig. 130).

Pour les réacteurs à eau pressurisée et à eau bouillante, la corrosion est un paramètre de couplage supplémentaire dont la prise en compte requiert le contrôle précis de la tempéra-

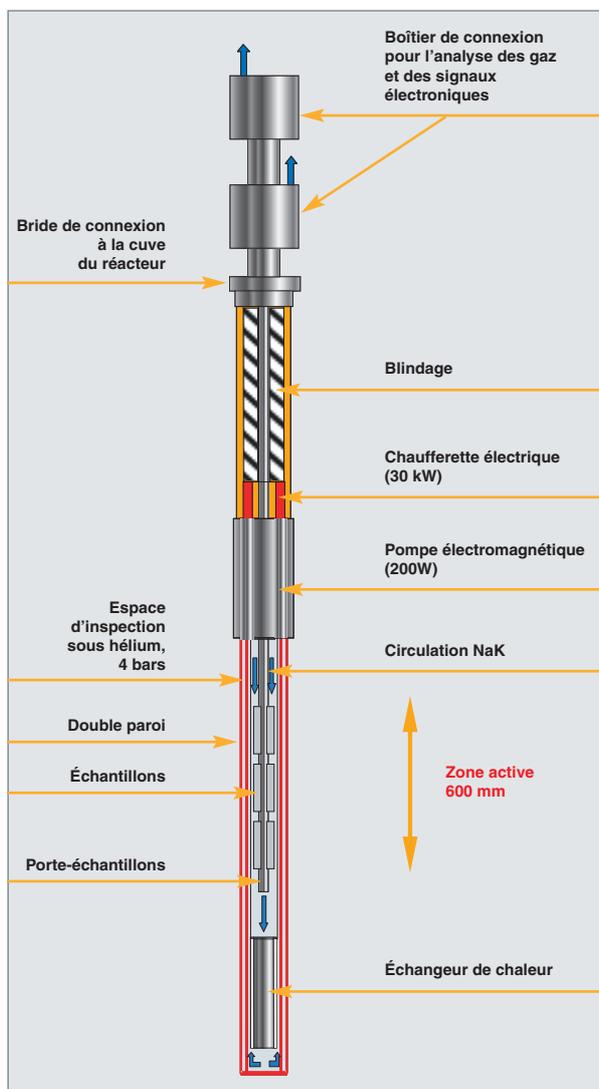


Fig. 130. Expérience de viscoplasticité avec contrôle en ligne des contraintes mécaniques bi-axiales.

ture, des conditions d'irradiation (sur l'échantillon comme sur le caloporteur à cause des effets de la radiolyse) et des contraintes mécaniques. La définition de protocoles pertinents, le développement d'une instrumentation pour mesurer la chimie locale et la propagation de fissures font l'objet de collaborations européennes.

Dans le domaine des matériaux à haute température (par exemple, des céramiques SiC-SiC), il s'agit d'abord de mener des essais dans des gammes de températures élevées (1 000 °C et plus), ce qui implique des développements technologiques en instrumentation. À terme, des expériences avec contrôle en ligne des contraintes mécaniques seront aussi nécessaires.

Expériences concernant le système combustible

Il s'agit ici d'acquérir la connaissance du comportement du combustible en fin de vie (forts **taux de combustion***) et lors des différents transitoires incidentels et accidentels.

Les dispositifs et les charges expérimentales utilisés pour effectuer les irradiations de combustibles dans le RJH seront notamment conçus pour :

- Accueillir du combustible pré-irradié en réacteur et re-conditionné en charge expérimentale. Ce combustible et son porte-échantillon peuvent être instrumentés (thermocouples, capteurs de pression, mesures de profil...);
- accélérer les expériences, afin d'atteindre rapidement les taux de combustion ou de **fluence*** visés, sans perturber l'importance relative des phénomènes physiques gouvernant l'évolution de la matrice fissile. Pour la physique des matériaux, plus que la représentativité du spectre neutronique, c'est bien le taux de fission des actinides et le taux d'endommagement des matériaux inertes (**dpa***) qu'il s'agit de reproduire. Dans de nombreuses situations pour les REP, RTHT ou RNR-G, il est critique d'assurer le bon rapport taux de fission *versus* dpa pour que l'expérience soit représentative de l'interaction entre les matières fissile et inerte. Le contrôle de ce rapport impose l'emplacement expérimental dans le RJH et la conception du dispositif. Des dispositifs convertisseurs peuvent être utilisés pour modifier localement le spectre neutronique « vu » par la charge expérimentale ;
- reproduire au niveau de la charge expérimentale la plage de conditions environnementales que peut voir le combustible en réacteur (flux et spectre neutronique, puissance volumique et/ou température, chimie, nature, pression et vitesse du caloporteur, etc.). Cette plage sera reproduite au niveau de l'échantillon par des variations programmées et progressives de ces paramètres (transitoires, cyclages...). Là encore, la qualité des expériences passe par un contrôle extrêmement précis, par exemple des gradients thermiques au niveau de l'échantillon combustible ;

- favoriser l'instrumentation en ligne (températures, pressions, suivi des gaz de fission issus du crayon combustible...). Ce suivi en ligne des mesures est un élément essentiel de la conception du RJH qui disposera d'une salle de contrôle réservée aux expérimentateurs.

Selon le type de combustible, l'irradiation sera conduite dans le réflecteur du réacteur (le réflecteur, constitué de blocs de béryllium, entoure le cœur pour en limiter les fuites de neutrons) ou dans le cœur (par exemple, pour des études concernant les filières à neutrons rapides, lorsqu'un nombre élevé de dpa est requis). La puissance pourra être ajustée soit par déplacement de la charge par rapport au cœur, soit par un écran absorbant. Cet écran pourra également rééquilibrer le spectre neutronique pour respecter le ratio dpa / taux de fission.

Les expériences « combustible » dans le RJH s'appuieront sur des moyens d'analyse spécifiques, complémentaires des moyens d'essais sous irradiation, tels que le laboratoire d'analyse des produits de fission, les bancs d'examen par scrutation gamma et par neutronographie et la cellule chaude d'examen (non destructif) du combustible.

Dans l'exemple des réacteurs à eau, ces moyens permettent de mener efficacement les expériences décrites ci-après.

La distribution et le relâchement des gaz de fission

La connaissance des mécanismes gouvernant la migration des produits de fission (et notamment des gaz), permettant ensuite une approche mécaniste des phénomènes, est un point-clé dans l'optimisation de l'utilisation des combustibles en réacteur, et plus spécialement de leur durée de vie. La mesure des quantités de gaz de fission stables et radioactifs relâchées hors de la matrice en fonctionnement stable, ainsi que des cinétiques d'émission lors de transitoires ou de cycles (puissance et/ou température), sont les outils privilégiés pour obtenir soit un « instantané » de l'état de la microstructure, soit une horloge cadencant les phénomènes.

Ces mesures sont utilement complétées par des examens destructifs post-irradiations (relâchement des gaz contenus dans la matrice lors de traitements thermiques, analyses à la micro-sonde, etc.).

La thermomécanique de la charge expérimentale

Les phénomènes physiques gouvernant l'évolution de la matrice fissile sous irradiation à l'échelle microscopique dépendent, en général, beaucoup de la température. L'accumulation aux joints de grains du matériau et le relâchement dans les volumes libres des gaz de fission en sont des exemples clés. La distribution de gaz résultante conditionne l'évolution macroscopique de la géométrie au cours du temps due à la densification, les gonflements gazeux et solide et, *in fine*, l'interaction avec la gaine (ou l'enrobage) constituant la première barrière de confinement des produits de fission.

L'interaction combustible-caloporteur et le relâchement des gaz de fission en cas de perte d'intégrité de la première barrière

L'enjeu de cette thématique est avant tout opérationnel. Cette thématique conditionne l'exploitation d'un réacteur de puissance, au travers des spécifications techniques d'exploitation relatives à l'activité du circuit caloporteur primaire. La connaissance des niveaux d'activité en produits de fission qui seront atteints dans ce circuit est, en effet, d'une importance capitale pour la conduite du réacteur : dosimétrie du personnel, conditions d'intervention en arrêt de tranche, maîtrise des activités rejetées dans les effluents et, *in fine*, démantèlement des installations.

En outre, la compréhension du comportement des volumes libres internes de l'« élément » combustible (crayon, particule...) en situation d'interaction avec le caloporteur permet également de définir les réactions physico-chimiques survenant à la surface du combustible et de quantifier une éventuelle cinétique de dégradation, pouvant s'accompagner d'un relâchement de matière fissile (en phase d'irradiation ou de stockage).

Le comportement lors de certaines situations incidentelles (« rampes » de puissance) ou accidentelles (accident de perte de réfrigérant...)

Des expériences à effets séparés permettent de mener les études nécessaires pour la sûreté des réacteurs industriels. Il s'agit de reproduire les mécanismes impliqués dans les transitoires de réactivité et/ou d'échauffement. Même si les paramètres de l'incident ou de l'accident ne sont pas totalement reproduits, ces essais permettent d'activer un nombre limité de mécanismes physiques, afin de quantifier leurs effets individuels et de mettre en évidence les différents couplages. L'interaction entre le combustible et la première barrière, ainsi que la cinétique de relâchement des gaz de fission et son éventuel effet sur la résistance mécanique du combustible, sont des études privilégiées à conduire à travers ce type d'expérience.

Dans le cas des réacteurs à gaz, la mesure en ligne des produits de fission est l'outil central pour développer et qualifier les combustibles à particules qui imposent des approches statistiques sur la perte de confinement.

Pour les réacteurs rapides refroidis au gaz, des expériences de combustibles particulières en cœur du RJH permettent de simuler à la fois le bon niveau de flux rapide et thermique. Cela nécessitera l'ajout d'écrans pour limiter l'intensité du flux de neutrons thermiques.

Apport d'un laboratoire des produits de fission pour l'étude du comportement des combustibles nucléaires

La disponibilité en ligne d'un laboratoire des produits de fission est un complément essentiel à la capacité expérimentale du RJH.

Le combustible nucléaire, quelle que soit la filière de réacteur, est un produit qui évolue profondément au cours de son séjour dans le flux neutronique. Les produits de fission sont des éléments chimiques très variés (gazeux, solides volatils et non volatils), atteignant des teneurs largement supérieures à ce qu'on peut appeler des impuretés. Parmi ceux-ci, les gaz rares (xénon et krypton) jouent un rôle particulier, tant en raison de leur abondance (environ 1/3 de tous les produits de fission) que de leur comportement dans le combustible. Ils diffusent, en effet, facilement dans le matériau, en raison des conditions thermiques locales et créent soit des nano- ou micro-bulles au sein des grains, soit des bulles aux joints de grains. Une faible part s'échappe du combustible et devient disponible dans les porosités ouvertes et les volumes libres internes de l'élément combustible.

La quantité et la distribution de ces gaz de fission sont des facteurs déterminants limitant la durée de vie des combustibles en réacteur. Leurs effets concernent surtout :

- La création de barrières thermiques, du fait de leur fort pouvoir isolant (accumulations de bulles, ouvertures de jeux), provoquant une augmentation de la température du combustible ;
- une augmentation de la pression interne, conduisant à des contraintes mécaniques sur la première barrière ;
- la constitution d'un terme source, en cas d'accident, en raison du caractère immédiatement disponible et radioactif d'une fraction de ces gaz rares.

L'optimisation des combustibles nucléaires (augmentation de la durée de vie, meilleure rétention des produits de fission, en cas d'accident...) passe, en priorité, par une meilleure maîtrise des mécanismes régissant le comportement des gaz de fission (distribution et migration). Une stratégie expérimentale privilégiée pour accéder à la compréhension de ces mécanismes consiste à provoquer une sollicitation externe sur le matériau combustible, comme un transitoire de puissance ou thermique, et d'analyser la réponse du matériau à cette sollicitation. La mesure repose alors :

- Soit sur le caractère radioactif de certains d'entre eux, qui constitue une horloge naturelle. La loi de dépendance entre le niveau de relâchement et la période radioactive permet, en effet, d'identifier les mécanismes en cause ;

- soit sur les fractions relâchées globales des gaz de fission stables, permettant d'identifier la nature des « réservoirs » de gaz qui se vident au cours de la sollicitation (fig. 131).

Le laboratoire des produits de fission associé au RJH offre ainsi un ensemble des moyens d'analyse, nécessaires à l'acquisition de ces connaissances, placés en cellules dans les casemates du bâtiment réacteur. L'échantillon en cours d'irradiation est équipé d'une ligne courte de balayage interne qui permet de récupérer les gaz radioactifs dégagés dont la période excède quelques minutes. La composition du mélange en ses différents nucléides est alors accessible soit par spectrométrie gamma (en ligne sur la tuyauterie ou différée, à partir de pièges), soit par chromatographie et spectrométrie de masse.

Ce laboratoire permet, en outre, la mesure des produits de fission relâchés, autres que les gaz, ainsi que des produits d'activation, dans la mesure où une partie du fluide caloporteur du dispositif d'irradiation transite par cette installation. Les mesures sont essentiellement basées sur la spectrométrie gamma de ce fluide. Des moyens d'épuration des circuits permettent de séparer les produits de fission selon leur nature physico-chimique et de les stocker en vue d'analyses complémentaires ultérieures (spectrométrie bêta ou alpha, spectrométrie d'absorption...). Des domaines d'études aussi variés que le relâchement d'activité hors d'un combustible en situation de perte d'étanchéité, la corrosion de composants sous flux neutronique, la mesure d'éléments spécifiques (tritium, hélium...), ou bien les bilans d'activité dans un dispositif après une séquence accidentelle appliquée à la charge expérimentale, deviennent accessibles grâce au laboratoire des produits de fission.

Les expériences menées dans le réacteur RJH et ses laboratoires associés relèveront, pour une part, de programmes de recherche internationaux d'intérêt commun et, pour une part, de programmes au profit d'industriels européens ou étrangers.

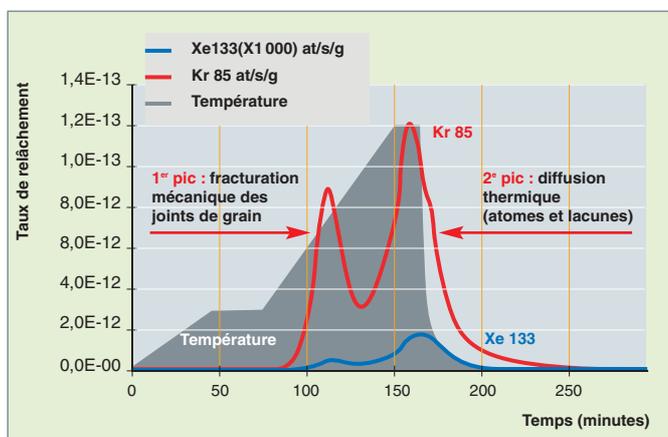


Fig. 131. Taux de relâchement des gaz de fission relâchés en fonction de la température du combustible.

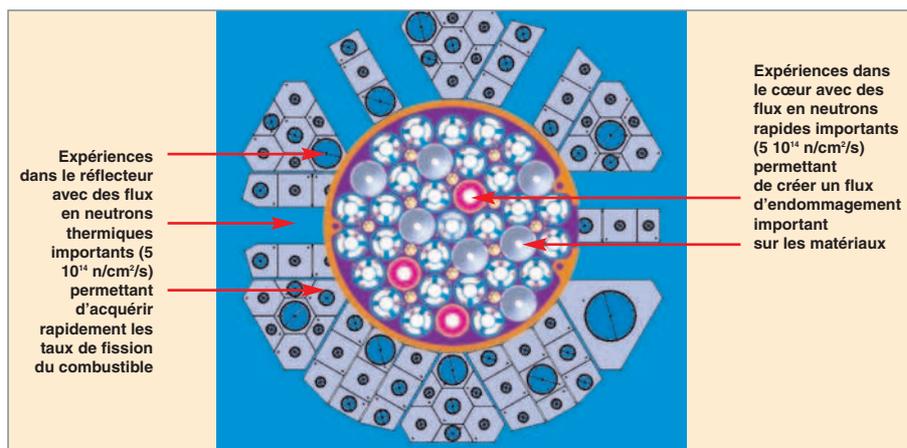


Fig. 132. Le cœur du RJH est contenu dans un cylindre d'une soixantaine de cm de diamètre et de hauteur.

Le RJH, outil flexible

Le RJH, dont la divergence est prévue en 2013, est un réacteur de type piscine, à caisson. Sa puissance thermique sera de 100 MW. Le cœur, très compact (cylindre d'une hauteur et d'un diamètre de 60 cm), est constitué d'un caisson enfermant un casier contenant une quarantaine d'éléments combustibles. Ces derniers sont des cylindres de 600 mm de hauteur et de 95 mm de diamètre et sont constitués de plaques cintrées (3 fois 8 par élément), assemblées entre elles et ménageant les canaux nécessaires à la circulation de l'eau de refroidissement. Le cœur, modéré par l'eau, sera garni de réflecteurs en béryllium (fig. 132).

L'eau de refroidissement, circulant de bas en haut, est injectée à la pression de 14 bars et à la température de 25 °C et ressort à la pression de 5 bars et à la température de 35 °C.

Pour obtenir les performances en utilisant un uranium faiblement enrichi, le combustible, en cours de développement, sera un combustible à plaques à base d'alliage uranium-molybdène (à 8 % de Mo), dispersé dans une matrice en aluminium et gainé en alliage d'aluminium.

Le cœur est capable de produire des flux élevés de neutrons rapides (énergies supérieures à 1 MeV) et de neutrons thermiques (énergies inférieures à 1 eV), pouvant atteindre chacun $5 \cdot 10^{14}$ n/cm²/s. Localement, un ajout de matière fissile nourricière permet de modifier et d'augmenter le flux de neutrons reçu par la charge expérimentale.

Le RJH peut accueillir une vingtaine d'expériences simultanées portant sur l'optimisation des matériaux et combustibles en usage ou en développement pour les systèmes nucléaires du futur.

Par le choix de l'emplacement de l'expérience et par des dispositions locales dans le cœur ou dans le réflecteur, le flux

de neutrons thermiques induisant les fissions et le flux de neutrons rapides et donc l'endommagement des matériaux confinant la matière fissile sont adaptés pour simuler le comportement du combustible dans les différentes filières technologiques. La densité de puissance du cœur du RJH permet de produire un flux de neutrons rapides très largement supérieur à celui créé dans les réacteurs à neutrons thermiques, du

même ordre de grandeur que celui des réacteurs rapides refroidis au gaz. Pour la technologie des réacteurs rapides refroidis au sodium, les expériences très instrumentées menées dans le RJH compléteront celles, plus globales, menées dans des réacteurs de la « filière » comme PHÉNIX ou MONJU. Les boucles d'essai (en eau pressurisée, en conditions bouillantes, en gaz, en sodium) permettent de représenter localement les conditions d'environnement des différentes filières de réacteurs de puissance.

La conception du bâtiment réacteur (fig. 133) privilégie une zone expérimentale importante pour conduire les expériences d'irradiation. Le comportement des combustibles dans des expériences simulant des situations normales mais aussi incidentelles et accidentelles est suivi grâce à une instrumentation importante. Couplée à la modélisation, cette instrumentation permet d'extrapoler les résultats pour les situations inaccessibles à l'expérimentation directe. Le RJH est conçu pour mener en standard la mesure en ligne des produits de fission émis par les charges expérimentales combustibles.

Les mesures en ligne et la mise en œuvre de conditions d'environnement réalistes pour différentes filières imposent un ensemble de casemates disposé sur trois niveaux dans le bâtiment réacteur, au plus près de la zone d'irradiation.

L'unité nucléaire (fig. 134) est constituée du bâtiment réacteur associé à un bâtiment des auxiliaires nucléaires permettant de mener l'ensemble de l'expérimentation : préparation de la charge dans le dispositif expérimental, irradiation, gestion de l'aval de l'expérience (mesures non destructives, extraction de la charge expérimentale – éventuellement sollicité jusqu'à sa rupture – pour envoi aux laboratoires d'analyse (LECA-STAR...)).

Daniel IRACANE,
Direction de la simulation et des outils expérimentaux
et Daniel PARRAT,
Département d'études des combustibles

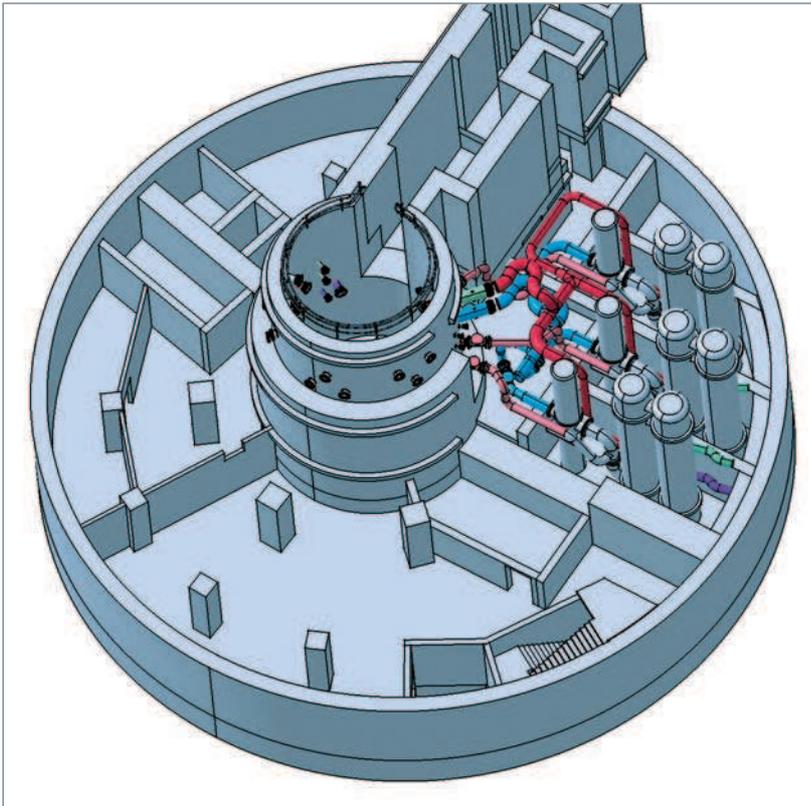


Fig. 133. Le bâtiment réacteur.

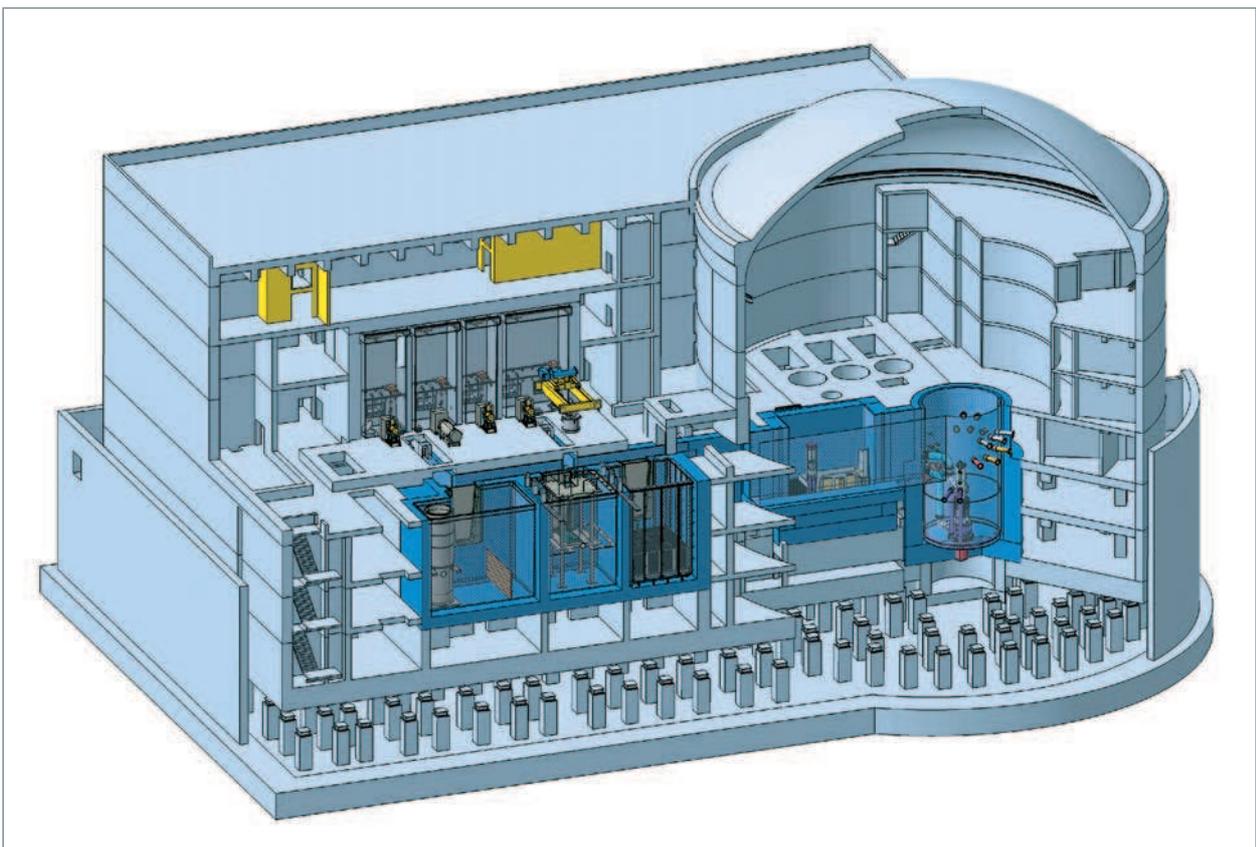


Fig. 134. L'unité nucléaire.