

Le combustible : le « consommable » des réacteurs

Dans le cœur des réacteurs nucléaires, le combustible est le siège de la **fission*** des atomes lourds d'uranium ou de plutonium. Il constitue la source de la chaleur qui, *in fine*, va permettre la production d'électricité, voire celle d'énergie pour d'autres applications.

Le combustible est la partie consommable des réacteurs : il y séjourne quelques années avant d'avoir atteint ses limites de fonctionnement, alors que les réacteurs ont en eux-mêmes une durée de vie de plusieurs décennies. Au cours de la vie d'un réacteur, c'est le seul composant dont il est possible d'améliorer les performances, à l'occasion de nouvelles recharges. Il y a, en outre, un fort intérêt économique à en augmenter le temps de séjour puisqu'il fournira plus d'énergie pour un coût de **cycle*** voisin.

On appelle « élément combustible » l'ensemble constitué de la matière **fissile***, généralement sous forme d'un empilement de pastilles cylindriques, et de sa gaine qui forme la première barrière de confinement des matières radioactives. Toutes les études de conception et de dimensionnement des éléments combustibles ont pour objectif de garantir la tenue de cette première barrière dans les différentes situations de fonctionnement. En cas de situation accidentelle, les combustibles sont les principales sources potentielles de pollution radioactive de l'environnement ; cet aspect est donc systématiquement pris en compte dans les développements.

Comprendre et modéliser le comportement du combustible en réacteur fait appel à de très nombreux domaines de la physique : la **neutronique*** pour définir les réactions nucléaires de fission et de transmutation au sein du combustible, la physique des matériaux pour évaluer les dommages causés à la structure cristalline par les neutrons et surtout par la dissipation de l'énergie de fission, la thermique pour évaluer avec précision l'évacuation de la chaleur vers le fluide **caloporteur*** et calculer l'évolution des températures en chaque point ; la mécanique permet de calculer les déformations et contraintes dans les pastilles combustibles et dans la gaine ainsi que le risque de rupture de cette dernière ; le recours à la thermodynamique permet d'évaluer les différents composés susceptibles d'être formés par les éléments créés par la réaction nucléaire de fission (appelés « produits de fission » (PF) : plus de 10 % des atomes présents en fin d'irradiation n'existaient pas en début de vie) ; à la chimie du solide d'appréhender les cinétiques avec lesquelles le système, généralement hors d'équilibre, va évoluer en fonctionnement

nominal et lors des différents transitoires susceptibles d'intervenir.

La finalité des études sur les combustibles est de répondre à deux grandes séries de questions :

- Quelles sont les connaissances sur les combustibles actuels des réacteurs à eau sous pression (REP) ? Quelles sont les limites de ces combustibles et les développements pour améliorer leurs performances ?
- quels combustibles pour les réacteurs du futur ?

Différents matériaux ont été utilisés ou envisagés comme combustibles depuis le début du développement des réacteurs nucléaires. Les isotopes fissiles d'**actinides*** ont été intégrés soit dans des alliages métalliques stables, soit dans des céramiques réfractaires (oxydes, nitrures, carbures ou siliciures). D'autres matériaux plus complexes sous forme de composites CERCER –mélange céramique-céramique) ou CERMET (mélange céramique-métal) ont aussi été étudiés, et ces concepts sont aujourd'hui revisités pour certains réacteurs du futur. Ce sont essentiellement les oxydes d'actinides qui ont été employés à l'échelle industrielle dans le monde comme combustibles dans les réacteurs de puissance. Les alliages métalliques ont le désavantage d'une température de fusion basse, et de plus, ils forment des **eutectiques*** qui diminuent encore cette température, d'où une utilisation limitée à moins de 1 000 °C. Les oxydes sont par contre très stables et très réfractaires, avec une température de fusion au dessus de 2 500 °C. Malgré tout, même si ces oxydes répondent convenablement à leur fonction de combustible dans les différents réacteurs depuis plus de 40 ans, ils ne représentent pas les matériaux idéaux, en particulier à cause de leur conductivité thermique relativement faible. Les autres candidats comme les nitrures et les carbures, potentiellement meilleurs que les oxydes du point de vue de leur conductivité thermique, ont cependant beaucoup de mal à s'imposer car la connaissance de leur comportement en réacteur est généralement trop limitée pour garantir une amélioration significative par rapport aux combustibles oxydes.

Dans les REP, le cœur est constitué d'**assemblages*** de **crayons*** combustibles gainés d'un alliage de zirconium et contenant des pastilles d'oxyde d'uranium (avec uranium enrichi # 4 % U 235) ou de MOX (oxyde mixte uranium – plutonium, (U,Pu)O₂ avec une teneur en Pu de 5 à 10 %). Le choix

de l'oxyde comme matériau combustible s'est imposé dans les réacteurs à eau pour différentes raisons, et notamment pour son assez bonne compatibilité chimique avec le caloporteur, en cas de rupture de la première barrière de confinement.

Le **taux de combustion*** ou énergie extraite des assemblages combustibles au moment de leur déchargement est passé en vingt ans de 33 GWj/t à 52 GWj/t. Cette énergie demeure faible en regard du potentiel énergétique de la matière fissile contenue dans le combustible. Les limites sont principalement d'ordre technologique et la R&D en cours permet progressivement de les repousser : ainsi le développement et la qualification d'un nouvel alliage de zirconium (le M5®, un alliage zirconium – niobium), en tant que matériau de gainage plus résistant à la corrosion que le Zircaloy-4, va permettre de porter le taux de combustion maximal de 52 à 60 GWj/t. De même, la mise au point et la qualification d'un combustible UO₂ dopé à l'oxyde de chrome qui lui confère de meilleures propriétés visco-plastiques tout en augmentant fortement la taille des grains du cristal devrait permettre, à terme, d'améliorer la souplesse d'exploitation des réacteurs et d'accroître encore les taux de combustion.

La R&D sur les combustibles, menée au CEA en collaboration étroite avec les partenaires industriels EDF et AREVA, s'attache à vérifier que toute évolution du combustible constitue un progrès en fonctionnement nominal, mais également dégage des marges vis-à-vis du fonctionnement en situation accidentelle. Les progrès en question passent par une compréhension approfondie des mécanismes physiques et chimiques qui gouvernent le comportement du combustible en réacteur. Cette compréhension s'appuie sur une modélisation, dûment validée par des expériences.

La R&D sur les combustibles des réacteurs du futur correspond à une étape plus lointaine, la nature du combustible étant étroitement associée au type de réacteur et au cycle du dit combustible. Dans le cadre du forum international Génération IV, qui a lancé l'étude de nouveaux systèmes nucléaires, sont recherchés en priorité des combustibles capables de recycler une partie de leurs déchets (voire ceux des générations antérieures), en particulier les **actinides mineurs*** (neptunium [Np], américium [Am], curium [Cm]) créés par transmutation de l'uranium et du plutonium pendant le séjour en réacteur. À cet effet, les réacteurs à neutrons rapides qui favorisent la fission de ces actinides mineurs sont privilégiés.

Dans ces réacteurs à neutrons rapides (RNR), les conditions de fonctionnement imposées au combustible sont plus sévères que dans les REP : la densité de matière **fissile*** doit

être élevée, d'où une forte puissance spécifique dans les pastilles combustibles, des températures de fonctionnement supérieures à celles des REP, et un endommagement important engendré par les neutrons rapides dans les structures métalliques, en particulier les gaines des éléments combustibles.

La situation est aujourd'hui très ouverte : les céramiques oxyde restent un combustible envisageable, l'oxyde étant un matériau robuste qui a fait ses preuves, notamment dans les RNR sodium. Mais le cahier des charges imposé par les RNR, en particulier avec caloporteur gaz, pousse à rechercher un matériau plus dense et meilleur conducteur tels que les céramiques carbures ou nitrures ou des alliages métalliques. Ces matériaux présentent des avantages par rapport à l'oxyde mais également des inconvénients qu'il importe de peser. Des matériaux composites céramique – céramique (CERCER) ou céramique – métal (CERMET) apparaissent également comme des candidats potentiels mais nécessitent des développements importants. De même pour les matériaux de gainage et de structure soumis à un puissant bombardement de neutrons, la recherche de fortes températures conduit aux limites de fonctionnement des alliages connus et nécessite des innovations.

Pour ces combustibles du futur, ces innovations touchent non seulement à la nature des matériaux, mais aussi aux concepts et amènent à examiner les avantages qui pourraient résulter d'une rupture avec les concepts classiques basés sur le principe d'une pastille combustible dans une gaine cylindrique. En particulier, l'idée du combustible à particules utilisé dans les réacteurs HTR a été revisitée ; et les études de dimensionnement pour les réacteurs rapides à gaz mettent en avant certains concepts très innovants tels que les plaques macrostructurées dans lesquels le matériau fissile est inséré dans une céramique en forme de nid d'abeille.

Nombreux sont les défis qui touchent aux combustibles nucléaires. Est résumé dans cette monographie l'état des connaissances sur le comportement en réacteur, les limites d'utilisation et les pistes de R&D en vue d'améliorer les performances des combustibles actuels et développer de nouveaux combustibles pour les réacteurs du futur.

Sans prétendre à l'exhaustivité, la présente monographie illustre également les recherches en cours par la présentation de quelques résultats marquants, obtenus récemment.

Yannick GUÉRIN,
Département d'études des combustibles