

**Pourquoi des réacteurs rapides
refroidis au sodium ?...**



Pourquoi des Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR) ?...

Neutrons rapides ou neutrons thermiques ?...

Le principe de fonctionnement des réacteurs nucléaires est d'entretenir et de contrôler une **réaction de fission en chaîne***. La fission est la faculté que présentent les noyaux d'éléments lourds de la famille des **actinides*** (uranium, plutonium...) de se scinder, sous l'impact d'un neutron, en deux noyaux plus petits appelés « **produits de fission*** ». Chaque fission s'accompagne d'une importante libération d'énergie et de l'émission de deux à trois neutrons qui pourront, à leur tour, provoquer une nouvelle fission et entretenir la réaction.

Ces neutrons produits lors de la fission ont une énergie moyenne d'environ 2 MeV. Ils n'ont pas été ralentis et sont donc appelés « **neutrons rapides*** ».

À ce niveau d'énergie, la probabilité que le neutron scinde un **isotope fissile*** est relativement faible. À titre d'exemple, la probabilité de fission (appelée « **section efficace*** ») du Pu 239 en fonction de l'énergie du neutron incident est indiquée sur la figure 7.

À 2 Mev, la probabilité de fission n'est que de l'ordre du **barn***, alors qu'à plus faible énergie, et au-delà de la région des **résonances*** nucléaires qui induisent des variations très importantes de la section efficace, la probabilité de fission atteint plusieurs centaines de barns, et même davantage pour les très faibles énergies, inférieures à l'électron-volt.

Une forte probabilité de fission a l'intérêt de minimiser la proportion de noyaux fissiles nécessaire dans le **cœur*** du réacteur. À l'origine du développement de l'énergie nucléaire, la

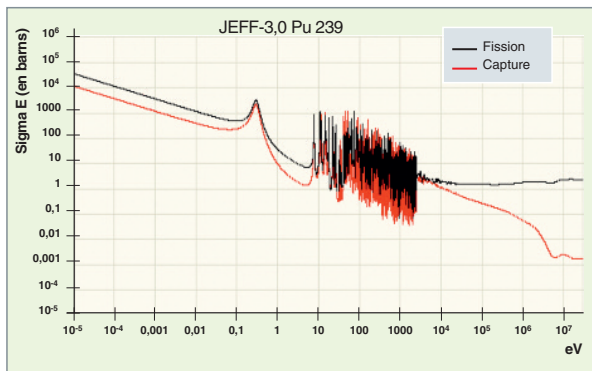


Fig.7. Variation des sections efficaces de capture et de fission du Pu 239, en fonction de l'énergie du neutron incident.

ressource en isotopes fissiles était rare. Seul l'U 235 présent à 0,7 % dans l'uranium naturel était disponible. Il a donc été privilégié la voie consistant à ralentir les neutrons issus de la fission pour les amener dans ce domaine des basses énergies. On les appela alors « **neutrons thermiques*** ».

Pour ralentir les neutrons, il faut introduire dans le réacteur un élément de masse atomique faible, afin que par collisions successives sur ce matériau les neutrons soient progressivement ralentis. Cela est illustré sur la figure 8.

Les matériaux répondant le mieux à ce cahier des charges sont l'eau lourde D₂O et le graphite. De fait, les deux premières **filiales*** de réacteurs nucléaires qui ont vu le jour sont les réacteurs utilisant de l'uranium naturel et refroidis à l'eau lourde (filiale des CANDU, toujours utilisée actuellement) et au gaz, avec modérateur graphite (typiquement, la filiale française des UNGG qui a été abandonnée). Ces filiales présentent l'avantage de ne pas nécessiter d'uranium enrichi et de fonctionner avec de l'uranium naturel.

L'eau H₂O, dite « légère » par opposition à l'eau lourde, est un excellent modérateur mais présente un niveau de capture parasite de neutrons élevé qui ne permet pas de faire fonctionner un réacteur avec de l'uranium naturel. C'est grâce aux progrès réalisés dans le domaine de l'enrichissement de l'uranium qu'il a été possible de développer cette filiale qui constitue aujourd'hui la grande majorité des réacteurs de puissance du parc mondial.

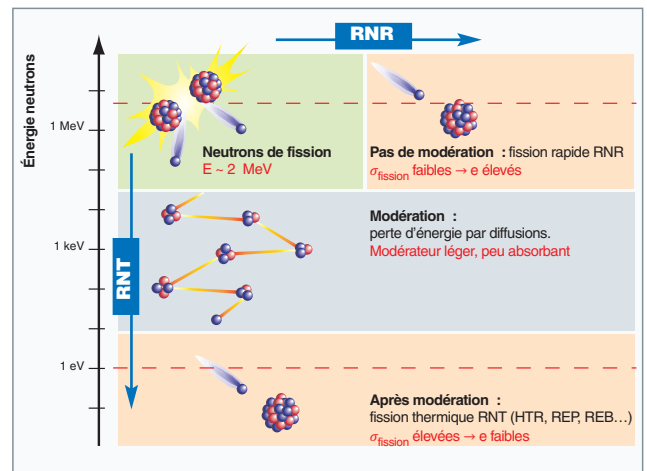


Fig. 8. Schéma de principe des filiales de réacteurs à neutrons thermiques et à neutrons rapides.

Le principe des réacteurs à neutrons rapides (**RNR***) est d'utiliser directement les neutrons issus de la fission. Cela nécessite alors de mobiliser un inventaire en matière fissile beaucoup plus important. Cet inventaire sera alors constitué soit d'uranium très enrichi, soit de plutonium. Comme nous le verrons par la suite, le plutonium qui est produit dans les réacteurs à neutrons thermiques constitue le combustible de choix pour les RNR. Nous voyons donc qu'une production de plutonium par des réacteurs à eau thermiques est nécessaire avant d'envisager le développement industriel de la filière des réacteurs à neutrons rapides.

Plutonium et réacteurs nucléaires

La production

Selon les données de l'AIEA, à fin août 2012, 435 réacteurs nucléaires étaient opérationnels au niveau mondial avec une puissance nette installée de 370 GWe. Ces réacteurs sont en grande majorité des réacteurs à neutrons thermiques fonctionnant avec de l'uranium enrichi.

Ce parc consomme chaque année environ 50 000 tonnes d'uranium naturel et produit du plutonium et des actinides mineurs (Np, Am et Cm) évalués respectivement à 70 tonnes et 8 tonnes.

La séparation*

La France a développé, depuis les années 70, des capacités industrielles de traitement des combustibles des réacteurs à eau légère permettant d'extraire le plutonium produit en réacteur. Ces capacités représentent le premier pas nécessaire, si l'on veut utiliser la ressource plutonium et ne pas la considérer comme un déchet. La France produit ainsi annuellement environ 10 tonnes de Pu.

Le recyclage* en réacteur à eau

Depuis 1987, EDF recycle, dans une vingtaine de réacteurs du parc, le plutonium issu du traitement de ses combustibles. Dans la même veine, EDF réutilise environ 60 % de l'uranium récupéré lors de ce traitement pour fabriquer, après enrichissement, le combustible des quatre réacteurs de la centrale de Cruas. Une telle stratégie permet déjà d'économiser 17 % de la consommation annuelle d'uranium naturel. Cette économie pourrait atteindre 20-25 % si tous les **combustibles*** UOX usés étaient traités et si l'intégralité des matières valorisables récupérées était réutilisée.

Néanmoins, ce principe de récupération des matières valorisables et de recyclage dans les réacteurs à eau présente des limites dues à la dégradation de leur qualité isotopique (baisse de la proportion des isotopes fissiles au profit de celle des isotopes absorbants) au fur et à mesure de leur utilisation. En raison de cette dégradation isotopique, il n'est pas possible de recycler plusieurs fois le plutonium dans les réacteurs à eau actuels.

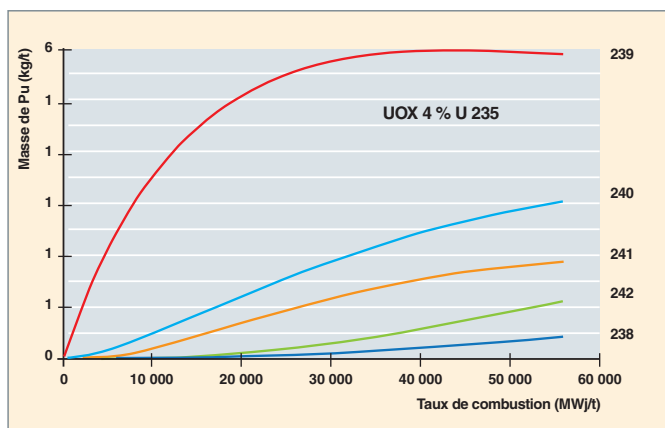


Fig. 9. Production des différents isotopes du plutonium en REP, à partir de combustible UOX et en fonction du taux de combustion.

C'est la principale raison pour laquelle le plutonium n'est actuellement recyclé qu'une seule fois dans les réacteurs à eau. Bien que les techniques de traitement des combustibles MOX usés existent, ces derniers sont aujourd'hui entreposés dans la perspective d'un traitement différé pour récupérer les matières valorisables, notamment le plutonium.

Les raisons de la limitation du recyclage du Pu dans les réacteurs à eau

Le plutonium est produit, en réacteur, à partir de l'U 238 qui, après une première capture neutronique suivie de deux désintégrations β^- se transforme en Pu 239. Le Pu 239 produit, à son tour, les isotopes supérieurs du Pu par **captures*** successives jusqu'au Pu 242. Cette chaîne de production est illustrée sur la figure 9 indiquant la production des isotopes du Pu dans un combustible d'oxyde d'uranium (UOX) irradié jusqu'à 60 GWj/t.

Les caractéristiques de physique nucléaire des isotopes du Pu sont très différentes. La comparaison de leurs sections efficaces de fission et de capture dans un spectre neutronique correspondant à celui d'un REP MOX est présentée dans le tableau 1.

Tableau 1.

Sections efficaces du Pu en REP MOX			
	Section efficace de fission (barns)	Section efficace de capture (barns)	Rapport fission sur capture
Pu 238	2	13	0,15
Pu 239	38	21	1,80
Pu 240	0,6	42	0,01
Pu 241	44	16	2,80
Pu 242	0,5	24	0,02

Les isotopes pairs du Pu, de par leur structure nucléaire, ne fissionnent pratiquement pas et sont essentiellement capteurs de neutrons. Ils représentent, à ce titre, des poisons neutroniques grevant le bilan neutronique du cœur du réacteur. Seuls les isotopes impairs, les Pu 239 et Pu 241, ont une probabilité de fission supérieure à celle de capture et sont donc à même d'assurer le maintien de la réaction de fission en chaîne.

L'accumulation, au cours de l'irradiation des isotopes pairs du Pu, dégrade le potentiel en réactivité du Pu. Pour compenser cette dégradation, il faut augmenter la masse de Pu dans le cœur, au fur et à mesure. C'est là qu'intervient une limitation physique liée à la sûreté du réacteur.

Le fonctionnement sûr du réacteur nécessite des coefficients dits de « contre-réaction » négatifs. Ces coefficients traduisent la réponse du cœur aux différentes perturbations pouvant survenir. Le coefficient traduisant la variation de la réactivité du cœur, en cas de réduction de la densité de l'eau, appelé « coefficient modérateur* », est un des coefficients structurants majeurs qui doit toujours rester négatif, y compris pour le cas extrême où l'eau disparaîtrait par ébullition (cas d'accident de perte de débit, par exemple).

Les variations du facteur multiplicatif du cœur en fonction de la densité de l'eau pour un combustible UOX et un combustible MOX, et ce pour différentes teneurs en Pu, sont indiquées sur la figure 10.

Le coefficient modérateur avec un combustible de type UOX est toujours négatif (courbe en bleu).

La baisse de la densité de l'eau réduit la modulation des neutrons. L'énergie moyenne de ceux-ci va augmenter (on parle de « durcissement du spectre neutronique »). La conséquence prépondérante est une augmentation de la capture des neutrons par l'U 238 qui induit une baisse de la réactivité du cœur.

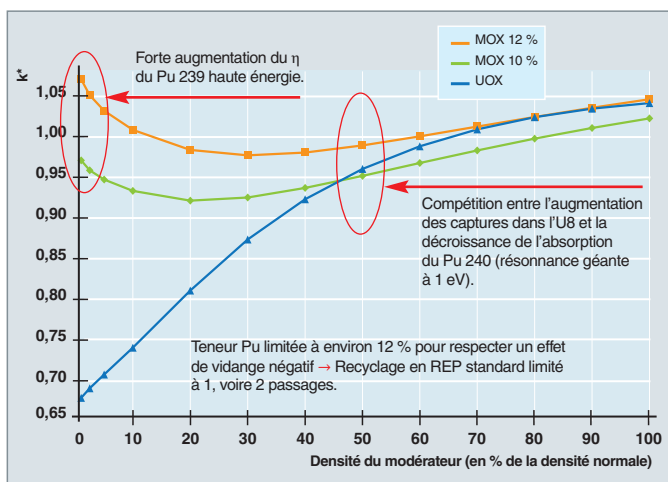


Fig. 10. Variation du facteur multiplicatif des neutrons selon la densité du modérateur en REP UOX et en REP MOX.

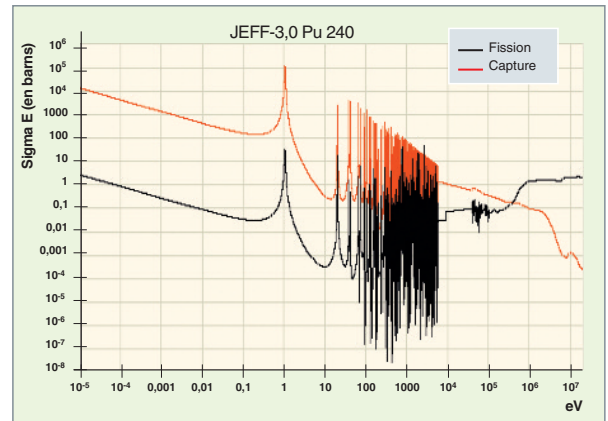


Fig. 11. Sections efficaces de capture et de fission du Pu 240 (origine bibliothèque JEFF).

Pour un combustible MOX, cet effet est compensé par la réduction de la capture neutronique du Pu 240 qui présente une résonance géante de près de 100 000 barns à 1 eV (fig. 11).

Ainsi, le coefficient modérateur du MOX a tendance à s'annuler pour les densités intermédiaires. Au-delà, pour les situations de cœur vidangé de son eau, le coefficient modérateur augmente, en raison du fort accroissement du nombre de neutrons produits par fission du Pu 239 à haute énergie.

Si l'allure de la variation du coefficient modérateur est identique, l'amplitude varie en fonction de la teneur en Pu. Au-delà de 12 % de teneur Pu dans le MOX, le coefficient modérateur devient positif, ce qui est inacceptable.

La teneur en Pu dans le MOX dépend des stratégies de gestion (**taux de combustion***) mais également de celles retenues pour le traitement des combustibles usés (taux de dilution des combustibles MOX avec les UOX). Pour un taux de combustion de 60 GWj/t et un niveau de dilution au retraitement de 70 % UOX/ 30 % MOX, après un ou deux multirecyclage, la teneur en Pu atteint les 12 %. Il n'est donc pas possible d'aller au-delà.

L'intérêt des réacteurs rapides

La possibilité de multirecyclage du Pu

Dans un réacteur à neutrons rapides, tous les isotopes du Pu sont fissionnels. La figure 12 compare les rapports fission sur absorption des différents isotopes, respectivement en spectre thermique et rapide. En RNR, les isotopes pairs contribuent positivement au bilan neutronique et n'engendrent pas « **d'empoisonnement*** », comme dans le cas des réacteurs thermiques.

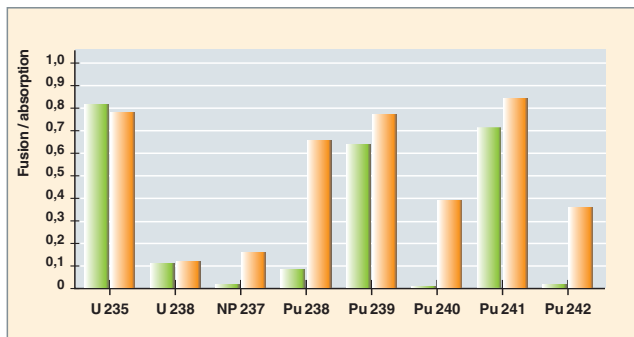


Fig. 12. Comparaison des rapports des section efficaces de fission sur absorption en REP (vert) et RNR (orange).

Ainsi, le potentiel de réactivité du Pu évolue peu en spectre à neutrons rapides. La teneur en Pu reste relativement stable, et le multirecyclage jusqu'à l'atteinte d'une situation d'équilibre, est possible (stabilisation de l'isotopie du Pu).

Cela est illustré sur la figure 13, montrant l'évolution du potentiel de réactivité du Pu au cours de son irradiation dans un RNR iso-générateur. La courbe du haut correspond à un Pu initial issu de combustibles UOX irradiés jusqu'à 60 GWj/t. La courbe du bas correspond à un Pu initial provenant de **MOX*** REP usés.

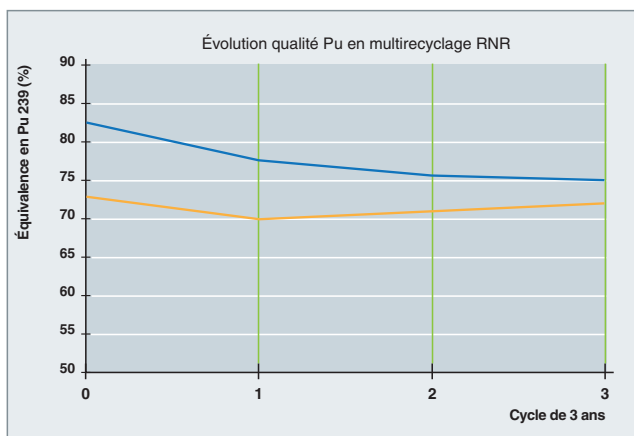


Fig. 13. Évolution du potentiel de réactivité du plutonium en RNR.

Possibilité d'utilisation de tout l'uranium naturel

L'uranium naturel est constitué à 99,3 % de l'isotope fertile 238 et de seulement 0,7 % de l'isotope 235 fissile. Comme nous l'avons vu précédemment, sous irradiation l'U 238 fertile se transforme en Pu 239 fissile. Il est ainsi possible d'utiliser tout le potentiel de la ressource naturelle. Pour cela, il faut disposer de suffisamment de neutrons.

La condition est que pour un neutron absorbé, le nombre de neutrons produits par fission soit supérieur à 2,3 : 1 neutron est nécessaire pour le maintien de la réaction en chaîne en

compensant celui absorbé, 1 neutron est nécessaire pour assurer la **transmutation*** de l'U 238 en Pu 239 et 0,3 sont nécessaires pour pallier aux disparitions stériles par capture dans les matériaux de structures et par fuite de neutrons hors du cœur.

Le tableau 2 indique, pour l'U 235 et le Pu 239, les valeurs de ce paramètre appelé η .

Tableau 2.

Valeurs du nombre de neutrons produit par absorption de l'U 235 et du Pu 239		
$\eta = \nu\sigma_f/\sigma_a$	Spectre thermique	Spectre rapide
U 235	2,07	1,9
Pu 239	2,10	2,4

Seul le Pu 239 en neutrons rapides offre donc la possibilité d'utiliser tout le potentiel énergétique de la ressource en uranium naturel.

À partir d'un combustible à base de plutonium et d'uranium appauvri ou naturel dans une proportion d'environ 20/80, lors de l'irradiation en réacteur, il y aura disparition d'une partie de l'uranium, mais création de plutonium, capable d'être le vecteur du prochain combustible. On peut donc brûler théoriquement 100 % de l'uranium, au lieu des 0,7 % utilisés dans les réacteurs à eau actuels.

Les conséquences sur le potentiel énergétique des ressources conventionnelles mondiales

L'uranium n'est pas un corps rare. Il y en a partout et en grande quantité, dans l'eau de mer, les rivières et le sol. La seule difficulté est de trouver des gisements suffisamment concentrés pour que le prix d'extraction soit faible. En fait, avec les réacteurs rapides, cet enjeu devient de peu d'importance. En effet :

- Avec des réacteurs à eau, le coût de l'uranium ne représente actuellement que 4 % du coût du kWh. Pour des réacteurs rapides, ce coût représentera encore cent fois moins, soit une fraction négligeable du coût du kWh. On pourrait donc accepter de payer encore cent fois plus cher l'uranium naturel, sans grever la compétitivité économique de la filière, ce qui rend les quantités disponibles quasi illimitées, en comparaison de la consommation ;
- l'**uranium appauvri*** déjà disponible, à la suite des activités d'enrichissement, permettrait à lui seul, avec un parc rapide, des milliers d'années de production électrique ;
- la reprise de la prospection, stoppée à cause des bas prix atteints par l'uranium, augmenterait les quantités disponibles, telles qu'elles ont été estimées dans le livre rouge de l'AIEA [1].

En conclusion, le passage progressif à un parc de réacteurs rapides permettrait de supprimer la contrainte « disponibilité d'uranium » et permettrait une production d'énergie sur une durée quasi infinie.

L'optimisation des déchets nucléaires

Les combustibles UOX usés après **irradiation*** en réacteurs contiennent de l'uranium non consommé, des produits de fission, du Pu produit sous irradiation, mais également des actinides dits « mineurs », car produits en faible quantité (neptunium, américium et curium) qui constituent des **déchets de haute activité et à vie longue (HAVL)***.

La **radiotoxicité*** (nocivité radiologique, en cas d'ingestion) d'un combustible UOX usé ayant atteint un taux de combustion de 60 GWJ/t et son évolution dans le temps sont présentées sur la figure 14. À titre d'illustration, son niveau de radiotoxicité est comparé à celui de la masse d'uranium naturel extrait de la mine et ayant servi à sa fabrication. On constate que la radiotoxicité du combustible usé décroît progressivement et finit par rejoindre le niveau de l'uranium naturel après environ 250 000 ans.

La stratégie de cycle semi-fermé mise en œuvre actuellement en France permet de traiter le combustible usé en séparant l'U et le Pu, d'une part des produits de fission (PF) et des actinides mineurs, d'autre part. Ces PF et les actinides mineurs, qui constituent les déchets ultimes, sont conditionnés dans des colis de verres. L'évolution naturelle de la radiotoxicité des colis de verres est également indiquée sur la figure 14. La réduction est très significative et permet de rejoindre l'indicateur « uranium naturel » plus rapidement, après environ 10 000 ans. Une stratégie de séparation-recyclage étendue aux actinides mineurs (Np, Am et Cm) permettrait de ne laisser en déchets ultimes que les produits de fission. La plupart de ces derniers présentant une durée de vie inférieure à trente ans, la radiotoxicité des colis de déchets ainsi « allégés »

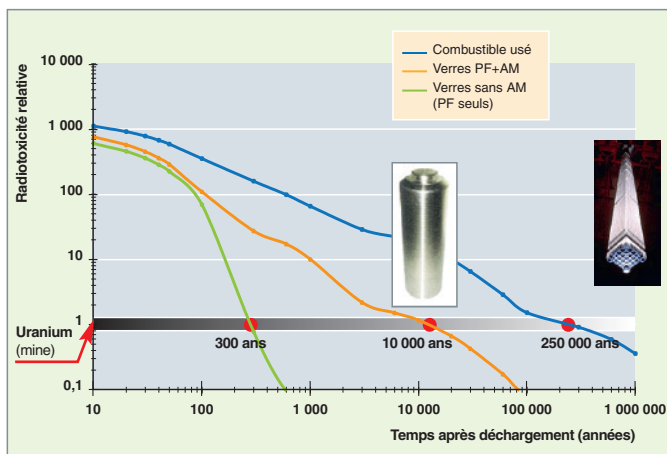


Fig. 14. Évolution dans le temps de la radiotoxicité des déchets HAVL, selon différentes stratégies

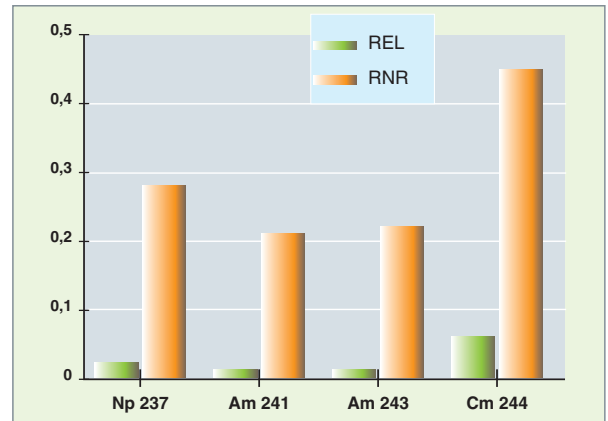


Fig. 15. Rapports des sections efficaces de fission sur capture des actinides mineurs.

décroit très rapidement et devient comparable au niveau de l'uranium naturel après seulement 300 ans.

Un autre avantage qui s'est fait jour, au cours des études menées avec l'ANDRA sur la stratégie de transmutation, est la diminution de la charge thermique séculaire des colis de déchets HAVL, pour laquelle le contributeur essentiel est l'américium. La transmutation de cet américium pourrait permettre, pour un concept de stockage analogue à celui qu'étudie aujourd'hui l'ANDRA dans l'argile, de diminuer l'emprise du stockage de ces déchets jusqu'à un facteur variant entre 5 et 10, suivant la durée d'entreposage préalable des colis vitrifiés.

Si les actinides mineurs disparaissent des déchets, ils doivent être recyclés en réacteur afin de les transmuter, le but ultime étant de les fissionner.

Là encore, les caractéristiques neutroniques des différents isotopes jouent un rôle clé. Les rapports des sections efficaces de fission sur capture des principaux isotopes constituant les actinides mineurs sont indiqués sur la figure 15.

Si ces isotopes sont essentiellement capturant en spectre de neutrons thermiques, ils représentent un rapport fission sur capture beaucoup plus favorable en spectre rapide.

Le recyclage des actinides en RNR permet donc de limiter la production d'éléments supérieurs pouvant aller jusqu'au californium ou le berkélium (très forts émetteurs de rayonnement *gamma* très énergétique) et de favoriser leur destruction par fission (ce qui est l'objectif et permet parallèlement de contribuer à la production d'énergie).

La flexibilité des RNR dans la gestion des matières nucléaires

Dans une perspective de développement durable, la technologie des RNR-Na apporte une dimension de flexibilité qui apparaît essentielle, en offrant la possibilité d'adapter la gestion des inventaires de matières aux stratégies du moment.

Pour un objectif de stabilisation des matières fissiles, le RNR peut fonctionner en mode iso-générateur (c'est-à-dire qu'il produit autant de matière fissile qu'il en consomme) ; cela lui permet, une fois le réacteur amorcé avec du plutonium, de fonctionner uniquement avec un appoint d'uranium naturel ou appauvri, sans apport complémentaire de matière fissile.

Si l'on décidait d'arrêter un tel parc de réacteurs rapides, il serait possible de faire évoluer les cœurs des RNR vers le mode « sous-générateur » ou « brûleur » : on pourrait alors réduire rapidement l'inventaire en plutonium.

Si, au contraire, un besoin de développement supplémentaire de puissance installée venait à apparaître, il serait possible de faire évoluer les réacteurs du parc vers un mode « surgénérateur », pour produire la matière fissile nécessaire à l'amorçage de nouveaux réacteurs. La capacité à répondre à un tel besoin se caractérise par la notion de « temps de doublement » (voir encadré ci-après : « le temps de doublement »).

Le temps de doublement

Le temps de doublement linéaire (TDI) est le temps nécessaire à un seul réacteur pour produire la masse de plutonium suffisante pour mettre en service un nouveau réacteur identique. Cette grandeur dépend de trois paramètres :

- Le **gain de régénération*** du réacteur, défini comme le bilan entre la production et la consommation de Pu comptabilisé en Pu 239 équivalent ramené à une fission ;
- la puissance spécifique, exprimée en MWth/kg de Pu, traduisant l'inventaire en Pu du réacteur ;
- la durée du cycle du combustible cumulant la durée d'irradiation en réacteur et celles pour refroidissement, avant traitement et pour re-fabrication.

Le paramètre prépondérant dans le calcul du temps de doublement est le gain de régénération. Les pays actuellement les plus ambitieux dans ce domaine, tels que l'Inde ou la Chine visent des gains de régénération très élevés de l'ordre de 0,4 ou 0,5, ce qui, associé à des durées de cycle réduites autorisent des temps de doublement très faibles, inférieurs à la vingtaine d'années.

Remarque : si l'on considère un parc de réacteurs, il faut tenir compte du fait que plusieurs réacteurs permettent de produire plus rapidement l'inventaire de Pu nécessaire au démarrage d'un nouveau réacteur. Le temps de doublement dit « composé TDc » est donc plus faible que celui dit « linéaire TDI » ($TDc = TDI * Ln2$).

Les réacteurs rapides : le complément des réacteurs à eau pour un nucléaire durable

La très grande majorité des quelque 435 réacteurs nucléaires actuellement en service dans le monde n'utilise qu'une partie infime de l'uranium naturel, c'est-à-dire l'isotope fissile U 235 qui n'est présent qu'à hauteur de 0,7 % dans l'uranium naturel. La question de la durabilité des ressources en uranium devient alors une question centrale si l'on veut apprécier le rôle que peut jouer le nucléaire dans l'approvisionnement en énergie de la planète au cours du temps. En permettant de valoriser la quasi-totalité de l'uranium, les RNR multiplient par un facteur de l'ordre de 100 l'énergie que l'on peut extraire d'une masse donnée d'uranium naturel et multiplie d'autant la durée de capacité de production. Si l'on ajoute l'utilisation de l'uranium appauvri disponible, ainsi que les possibilités ultérieures d'extraction à des coûts beaucoup plus élevés, si nécessaire, on arrive à des durées de production quasi infinies. La gestion du plutonium produit dans les réacteurs actuels est un autre attendu conditionnant le développement de l'énergie nucléaire. Le plutonium constitue une matière énergétique extrêmement concentrée : la fission d'un gramme de plutonium libère presque autant d'énergie que la combustion de deux tonnes de pétrole. Contrairement aux réacteurs de technologie actuelle, les RNR peuvent utiliser sans limitation le plutonium produit par le parc nucléaire et assurer ainsi sa totale valorisation. Sans les RNR, le plutonium deviendrait un déchet à vie longue.

Enfin, la question de la gestion des déchets nucléaires apparaît comme une préoccupation majeure de l'opinion publique vis-à-vis de l'acceptabilité à long terme du nucléaire. Le traitement actuel des combustibles usés, tel que mené en France, permet déjà de minimiser ces déchets. Les RNR offrent, de plus, la possibilité de transmuter les actinides mineurs en des éléments à vie beaucoup plus courte et donc d'optimiser encore la gestion de ces déchets.

En conclusion, les neutrons rapides sont le complément idéal des réacteurs à eau actuellement en opération, pour assurer conjointement un nucléaire durable, capable de fournir l'énergie pendant des dizaines de milliers d'années, tout en optimisant le cycle du combustible et la gestion de l'ensemble des déchets.

Alain ZAETTA,

Département d'étude des réacteurs

► Références

[1] AIEA redbook, « Ressources en uranium », 2011.

Pourquoi le sodium ?...

Le cahier des charges d'un caloporteur* de réacteurs rapides

Pourquoi choisir le sodium comme fluide caloporteur d'un réacteur à neutrons rapides ? D'autres options sont possibles : plomb, sels fondus, hélium... Observons les critères de choix du caloporteur, ainsi que les enjeux et problèmes scientifiques ou techniques associés.

Le premier enjeu dans le choix du caloporteur d'un réacteur nucléaire est celui de l'évacuation efficace de la chaleur produite dans le cœur du réacteur. À ce titre, le fluide choisi doit posséder une forte capacité calorifique et une bonne conductivité thermique. Il ne doit pas être trop visqueux, afin de ne pas nécessiter une puissance de pompage trop importante. Enfin, ses transitions de phase doivent être maîtrisées : s'il s'agit d'un liquide, il faut savoir éviter à la fois sa solidification, qui provoquerait une obstruction, et sa vaporisation, qui entraînerait une modification importante de ses propriétés de transport de chaleur.

D'autres contraintes, d'ordre neutronique, doivent être prises en considération : le caloporteur primaire circulant dans le cœur du réacteur se trouve en présence du flux de neutrons. Le caloporteur ne doit pas absorber lesdits neutrons, ce qui restreint de façon drastique la composition chimique et isotopique du caloporteur; dans le cas d'un réacteur à neutrons rapides, il ne doit pas non plus les ralentir, ce qui exclut les éléments légers. De plus, le réacteur doit être stable : sa **réactivité*** doit baisser si la température du cœur augmente, ou si le caloporteur se vaporise. Enfin, le caloporteur ne doit pas se décomposer sous irradiation, ni s'activer outre mesure, afin de permettre la maintenance puis le démantèlement du réacteur dans des conditions radiologiques acceptables. Bien souvent, les problèmes d'**activation*** viennent des impuretés du caloporteur. Il est donc important de pouvoir se le procurer suffisamment pur pour pouvoir l'utiliser en réacteur, puis de savoir maintenir ce niveau de pureté par des techniques chimiques adéquates.

Le caloporteur est en contact avec les structures du réacteur, et avec son combustible. Ce contact se traduit par des interactions thermo-mécanico-chimiques qui doivent être maîtrisées : les interactions structure-fluide en écoulement turbulent se traduisent par des vibrations, éventuellement de la cavitation, qu'il faut savoir éviter. Les fluctuations de température



Fig. 16. Dépôt d'un mélange d'oxyde de plomb et de fer dans un circuit caloporteur plomb (réf. V.V. Ulyanov, Colloque de l'Académie des Sciences sur les fluides caloporteurs, 2013).

imposées en paroi par un fluide turbulent non isotherme peuvent déboucher sur la **fatigue thermique*** des matériaux. L'un des points de préoccupation majeurs concerne la maîtrise des interactions chimiques avec le caloporteur : il s'agit d'éviter la corrosion, les colmatages, la fragilisation des structures, le **wastage***. Cette thématique inclut la dissolution-précipitation des aciers dans les métaux liquides impurs (fig. 16), et la fragilisation par les métaux liquides.

Le thème de la sécurité du caloporteur comporte des enjeux de maîtrise du risque de toxicité (anoxie, dans le cas d'un gaz) et du risque incendie, en cas de fuite; Il s'agit aussi de s'assurer de la maîtrise des accidents : risques de bouchons, d'où la nécessité de savoir mesurer température, pression et débit dans le caloporteur; risques de fuite, qu'il faut savoir prévenir, mais aussi détecter rapidement, afin d'éviter incendies et explosions. En cas d'accident grave, il faut avoir la connaissance du comportement du caloporteur en interaction avec le **corium***.

Par ailleurs, le caloporteur doit permettre la maintenance et l'inspection en service du réacteur. Il faut pouvoir détecter une rupture de gaine de combustible, soit par détection chimique

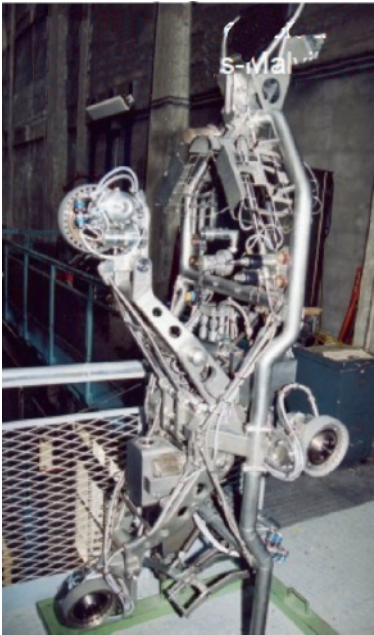


Fig. 17. Photographie d'un robot d'inspection en service.

de traces de produits de fission, soit par détection acoustique ; il faut pouvoir détecter déformations et fissures dans les structures du cœur, dans un milieu pas forcément transparent, et donc par des méthodes pas forcément optiques (fig. 17).

Enfin, il faudra un jour démanteler le réacteur, ce qui demande en particulier la maîtrise des techniques d'inertage du caloporteur.

À tout cela, on doit encore ajouter la nécessité de disposer à l'échelle industrielle des composants du circuit caloporteur, en particulier des pompes et des échangeurs de chaleur, ainsi que de l'instrumentation de contrôle associée.

Les options possibles pour le caloporteur

Au vu de ce cahier des charges très contraignant, on comprend que le choix du caloporteur puisse être si structurant dans la conception d'un réacteur nucléaire et que les options possibles soient peu nombreuses. Dans la pratique, les caloporteurs crédibles pour les réacteurs à neutrons rapides sont le sodium et ses eutectiques (Na-K), le plomb et son eutectique (Pb-Bi), le gaz (hélium ou CO_2), les sels fondus (fluorures). Force est de reconnaître qu'il n'y

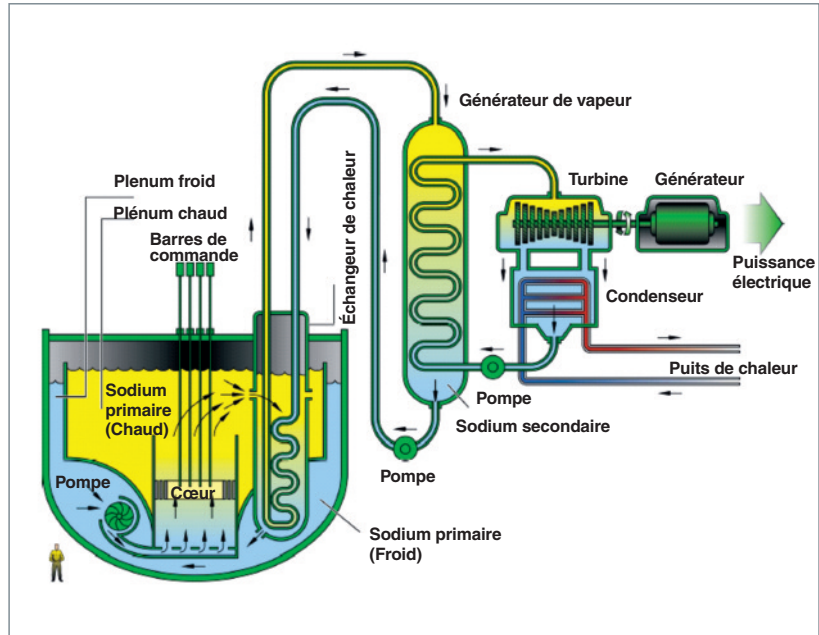


Fig. 18. Le RNR-Na.

a pas de caloporteur idéal dans cette liste et que les choix sont encore ouverts, puisque toutes ces options sont toujours à l'étude dans les concepts de réacteurs rapides retenus par le *Generation IV International Forum* (fig. 18-21).

Le concept de réacteur à neutrons rapides à caloporteur sodium a connu un fort développement et bénéficie d'un retour d'expérience notable. Dans sa version de référence (fig. 18), il repose souvent sur un combustible de type oxyde à base d'uranium et de plutonium (MOX), additionné éventuellement

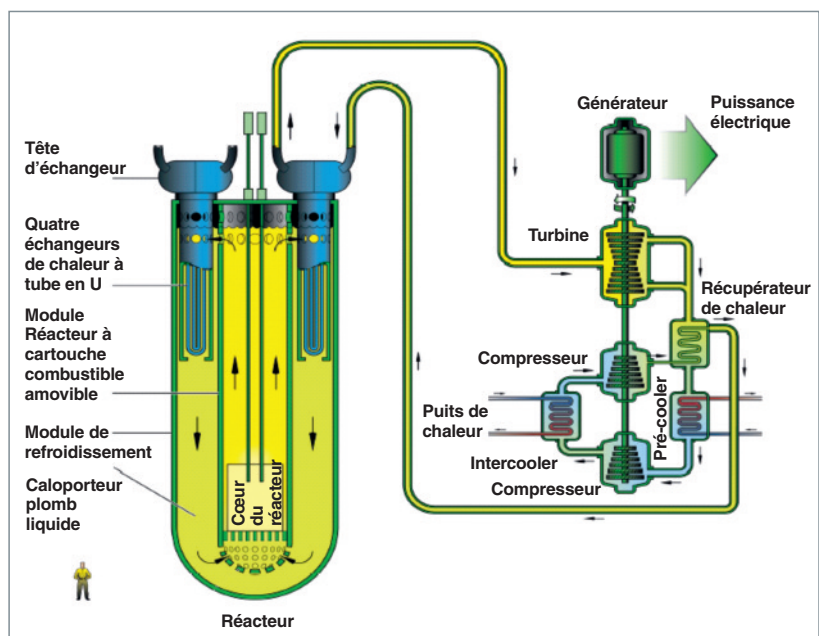


Fig. 19. Le RNR-Pb.

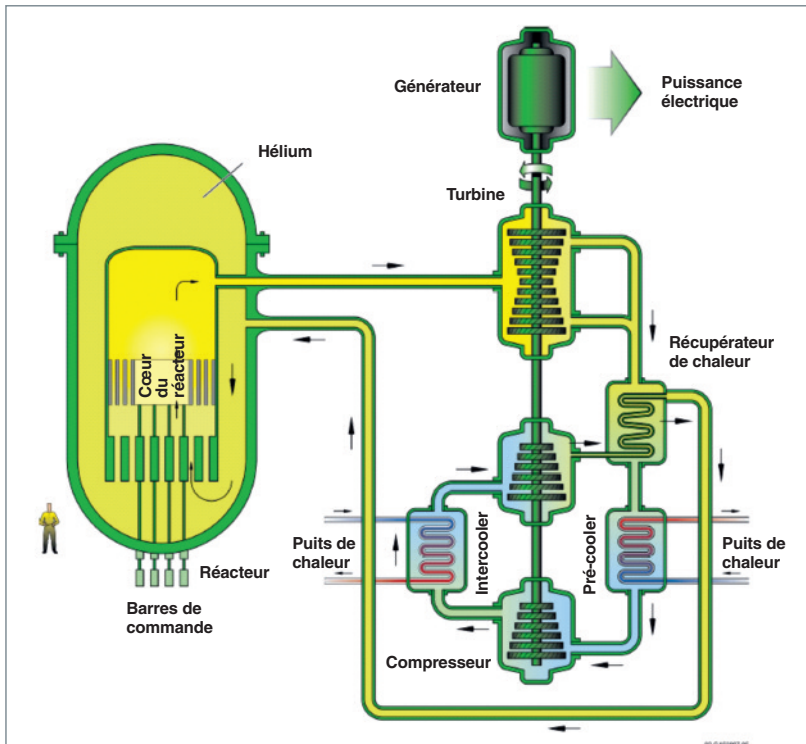


Fig. 20. Le RNR-gaz.

d'actinides mineurs. Le fluide utilisé pour les circuits primaires et secondaires est le sodium.

Le concept de réacteur rapide à caloporteur plomb-bismuth (fig. 19) a connu un développement en URSS pour la propulsion navale. Le caloporteur envisageable est du plomb métal ou un eutectique plomb/bismuth, transparent aux neutrons rapides. Le combustible est MOX ou nitré et peut contenir des transuraniens.

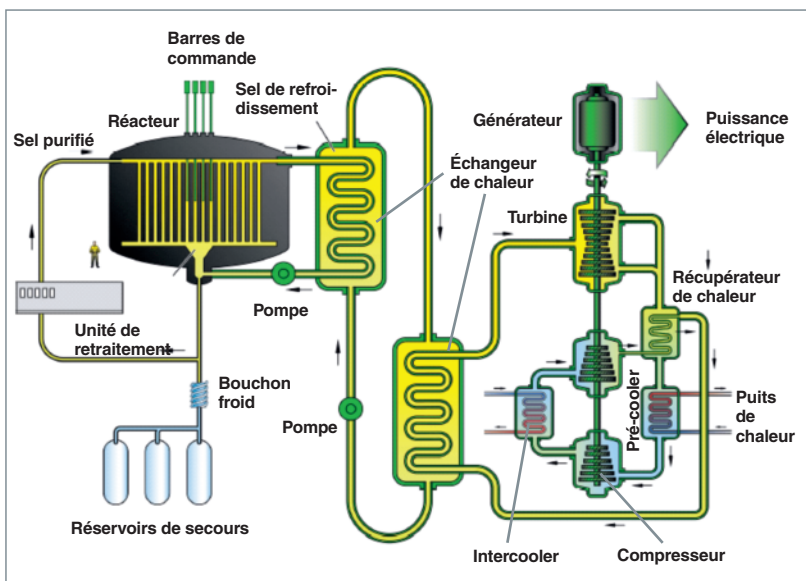


Fig. 21. Le réacteur à sels fondus.

Les concepts de réacteur rapide à caloporteur gaz (fig. 20) reposent sur différentes configurations de combustible (crayons, plaques, prismatique), différentes formes physico-chimiques du combustible (notamment à base de céramique) et un caloporteur hélium. La température en sortie de cœur est environ de 850 °C ; la production électrique est réalisée par une turbine à gaz qui assure une bonne efficacité thermique.

Plusieurs variantes de réacteurs à caloporteurs sels fondus (fig. 21) ont été étudiées et quelques prototypes construits. La plupart des concepts actuellement étudiés se basent sur un combustible dissous au sein d'un sel fluoré. Ce concept associe au réacteur une usine de retraitement en ligne qui permet d'extraire en continu les produits de fission.

En Europe, ces quatre options de caloporteur sont explorées en parallèle, avec les projets ASTRID (RNR sodium, proposé par le CEA), MSFR (RNR Sels fondus, étudié par le CNRS), ALLEGRO (RNR hélium, étudié par un consortium de pays d'Europe de l'Est), MYRRHA (ADS* refroidi au plomb, proposé par la Belgique) et ALFRED (RNR plomb, projet européen).

On trouvera ci-après une grille résumant les avantages-inconvénients de ces caloporteurs.

Des quatre caloporteurs envisagés ici pour les RNR, c'est le sodium qui bénéficie du plus grand retour d'expérience. Pour les trois autres caloporteurs (SF, Pb, He), on est encore bien plus loin de la maîtrise industrielle. À titre d'exemple, l'encadré, p. 22, résume l'état des connaissances et des difficultés liées au choix de matériaux pour le caloporteur plomb.

Tableau 3.

	Eau	Sodium
Coût et disponibilité du fluide caloporteur.	Disponible à un coût négligeable.	Disponible à coût faible.
Température à laquelle le caloporteur peut fonctionner. Cette température influe directement sur le rendement du système de conversion d'énergie.	Mauvais. Les limitations en température sont dues à l'ébullition et à la corrosion.	Bon.
Figure de mérite du point de vue du transfert thermique : capacité calorifique, conductivité thermique.	Très bon.	Excellent.
Aspects neutroniques, transparence aux neutrons.	Médiocre. L'eau légère absorbe les neutrons ; le fort pouvoir modérateur de l'eau liquide limite son usage aux réacteurs à spectre thermique.	Bon. Le sodium absorbe peu les neutrons. Très faiblement modérateur, il est compatible avec un spectre rapide. Le sodium s'active très peu.
Corrosion, érosion, colmatages.	Médiocre. L'eau à haute température est corrosive.	Bon. Le sodium est très peu corrosif pour les structures du réacteur.
Technologie : purification et contrôle de l'état physico-chimique du caloporteur.	Nous savons faire.	Nous savons faire.
Technologie : Joints, étanchéité, détection de fuites.	Moyen.	Moyen. Les réacteurs au sodium fonctionnent à pression quasi atmosphérique, ce qui est un atout.
Technologie : gros composants.	La technologie est au point !	Échangeurs* de chaleur à développer, si choix d'un caloporteur tertiaire gaz.
Technologie : Inspectabilité du réacteur.	Excellent. Des inspections visuelles sont possibles lors des arrêts dans certaines zones.	Mauvais. Certes, le réacteur est faiblement activé, mais le sodium n'est pas transparent. L'inspection périodique des surfaces en milieu opaque est difficile.
Sûreté.	Bonne. Risque de vaporisation, avec forte modification des caractéristiques neutroniques et de transfert thermique du caloporteur eau.	Bonne, au plan neutronique (très peu de risque d'accident de réactivité) et thermohydraulique (forte marge avant ébullition) ; Mauvaise, au plan de la physicochimie (s'enflamme à l'air et réagit violemment avec l'eau).

Hélium	Plomb	Sels
Cher.	Le plomb est disponible à coût faible ; le bismuth est moins facilement disponible.	La Lithium est une ressource rare et chère. La nécessité d'enrichir le lithium en Li 7 alourdit la facture.
Excellent.	Bon.	Bon.
Mauvais. Le transfert thermique solide-gaz est médiocre, ce qui oblige à faire travailler le caloporteur à fort débit et sous forte pression et limite la puissance volumique du cœur. La circulation du caloporteur gaz est coûteuse en puissance de soufflage.	Moyen. Pas de problème de changement de phase.	Moyen. Pas de problème de changement de phase.
Très bon. La capture neutronique dans le gaz est très faible. Son pouvoir modérateur est inexistant et il est compatible avec un spectre thermique ou rapide.	Très bon. La variante Pb Bi s'active (production de Po 210), d'où des problèmes de radioprotection et de gestion du caloporteur, lors du démantèlement.	Bon, mais on ne peut avoir un spectre très dur. Nécessité d'un LiF enrichi en Li 7, sous peine de voir le réacteur produire beaucoup de tritium.
Risque de corrosion par les impuretés de l'hélium. Risques d'abrasion par les poussières entraînées par un flux de gaz à haute vitesse.	Très mauvais. La maîtrise de la corrosion dépend du contrôle du potentiel redox et de la température (trop oxydant, on oxyde le plomb ; trop réducteur, on dissout les aciers). Saura-t-on maîtriser aussi finement le potentiel redox dans un réacteur industriel ? Risques de corrosion, mais aussi d'érosion et de colmatage par des oxydes mixtes PbFeO (slag). Risques de fragilisation par les métaux liquides.	Mauvais. Le sel est corrosif, principalement du fait de ses impuretés. Le contrôle du redox est crucial.
Technologie à développer.	Technologie balbutiante (le contrôle du redox est crucial).	La technologie n'existe pas. Nettoyer le sel par bullage est un défi majeur, dont dépend la viabilité du concept de MSFR.
Le gaz pose des problèmes d'étanchéité. L'hélium est un caloporteur rare et cher... surtout s'il fuit !	À développer.	À développer.
Beaucoup de développements à prévoir (échangeurs de chaleur, calorifuges, turbines).	Les pompes à plomb restent à développer.	Les échangeurs de chaleur à plaques seront difficiles à concevoir (corrosion) et peu performants (grosse chute de température, du fait de la médiocre conductivité thermique du sel) cela amène le sel secondaire très près de sa température de solidification.
Excellent. Le réacteur est faiblement activé. La transparence du gaz facilite maintenance et interventions dans le réacteur.	Mauvais. Le plomb n'est pas transparent. L'inspection périodique des surfaces en milieu opaque est difficile.	Mauvais. Certes, les sels sont transparents (le sont-ils encore après irradiation?), mais aucun hublot ne résiste aux fluorures...et les instruments eux-mêmes (thermocouples, chambres à fission...) vont souffrir. Le cœur sera très fortement activé (le combustible n'étant pas gainé), ce qui le rend difficilement inspectable.
Bonne, au plan neutronique (très peu de risque d'accident de réactivité). Bonne, au plan physico-chimique (absence de changement de phase et de réactivité chimique). Mauvaise au plan thermohydraulique : une forte baisse de pression lui fait perdre ses capacités de caloporteur. En cas de brèche, l'évacuation de la puissance résiduelle pose problème.	Bonne, au plan neutronique. Moyenne, au plan thermohydraulique (la température de fusion élevée entraîne des risques de bouchage par solidification aux points froids) ; Mauvaise aux plans de la physicochimie, (problèmes de corrosion-érosion-colmatage) et de la mécanique (vulnérabilité au séisme, du fait de la forte densité du plomb).	Bonne, au plan neutronique. Moyenne au plan thermohydraulique (la température de fusion élevée entraîne des risques de bouchons par solidification aux points froids) ; Mauvaise au plan de la physico-chimie (risques de corrosion-colmatage). L'absence de première barrière (si combustible liquide) permet aux PF de se balader dans le circuit primaire, avec risque d'accumulation aux endroits froids. Risques de précipitation d'oxy-fluorures, en cas d'entrée d'air.

Quelques difficultés liées à la recherche de matériaux compatibles avec le caloporteur plomb

Le plomb a un pouvoir corrosif très fort sur l'ensemble des matériaux métalliques habituellement utilisés dans les réacteurs : matériaux austénitiques, ferritiques ou martensitiques. Il dissout, en particulier, le nickel des alliages.

La seule protection contre cette dissolution est l'établissement d'une couche d'oxydes en surface en maintenant dans le plomb un niveau d'oxygène précis par injection contrôlée. Par contre, si ce niveau est mal contrôlé et devient localement trop élevé, des oxydes de plomb insolubles se forment et peuvent conduire à des désordres divers (c'est ce phénomène qui a conduit à des incidents par obstruction du cœur sur les sous-marins nucléaires russes qui utilisaient ce caloporteur depuis abandonné).

Le rôle protecteur de cette couche d'oxydes a deux limites : la température, avec une limite aux environs de 480 °C, et la vitesse du fluide avec une limite aux environs de 2 m/s. On voit donc que cette protection ne suffit pas pour certaines zones du réacteur, et en particulier, pour les matériaux des gaines et des pompes, où les vitesses de circulation sont importantes. Des procédés de protection par dépôt d'alumine

ont été développés et permettent d'obtenir de bons résultats pour les gaines, dans certains tests, mais ne suffisent pas pour les pompes où d'autres matériaux sont en développement.

En outre, cette présence d'oxydes conduit à des dépôts cumulatifs dans les tubes d'échangeurs et de générateurs de vapeur qui diminuent le coefficient d'échange de manière progressive. L'utilisation de dépôts protecteurs à base d'alumine semble aussi nécessaire à ce niveau.

D'autres problèmes, assez complexes, ont aussi été découverts lors des essais, comme des variations de composition des couches d'oxyde protectrices dans le temps, ou des corrosions rapides dans les zones de frottement entre les gaines et les fils espaceurs des assemblages combustibles.

Les recherches et essais se poursuivent dans ces domaines pour tenter de trouver des solutions acceptables tant au niveau faisabilité industrielle, qu'au niveau de la sûreté de conception d'un tel réacteur.

Bernard BONIN,
Direction scientifique

Les propriétés physiques et chimiques du sodium

Un métal bien connu

Le sodium est le plus commun des métaux alcalins. Il est répandu dans la nature, mais seulement sous la forme de composés (sel de mer, sel gemme, carbonates et nitrates de sodium) et il est le sixième élément le plus abondant dans la croûte terrestre (environ 2,8 % de la roche terrestre). Il est également présent en grande quantité dans l'eau de mer, en tant que chlorure de sodium, associé au bromure de sodium et à l'iodure de sodium.

Le sodium est connu depuis la Haute Antiquité. L'étymologie du mot « sodium » et le symbole « Na » remontent à travers les âges. Le mot « neter » se trouve dans la Bible, le mot « natrium » existe en latin et le mot « natron » en égyptien ancien, où il a été utilisé pour désigner le carbonate de sodium déca-hydraté, un composé chimique utilisé pour conserver les momies. Par ailleurs, le mot « natron » a persisté au cours du

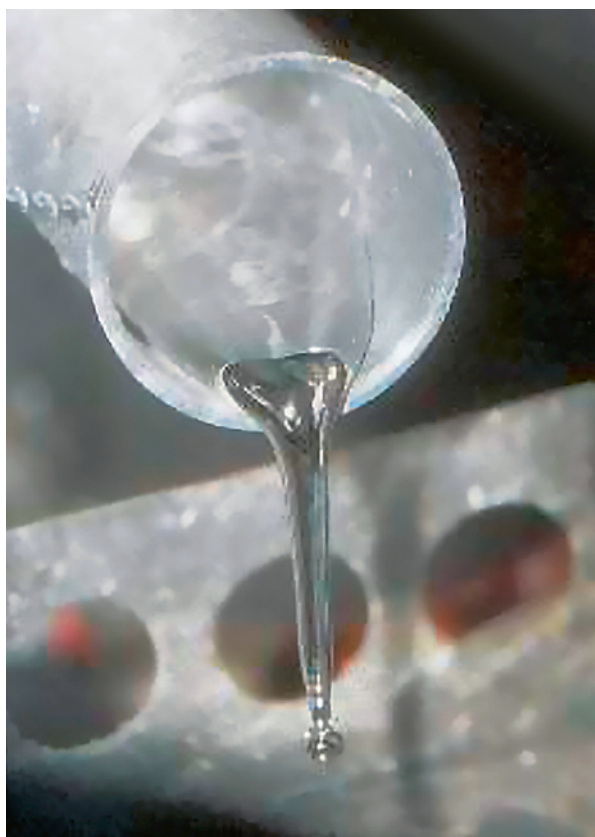


Fig. 22. Sodium liquide.



Fig. 23. Le sodium primaire du réacteur PHÉNIX, vu par une traversée de la dalle.

Moyen Âge et le mot « natrium » est encore utilisé pour désigner le sodium en allemand. Enfin, aujourd'hui, on utilise toujours le symbole chimique Na pour désigner le sodium.

Le sodium, sous sa forme métallique, peut être utilisé pour affiner certains métaux, tels que le zirconium, le potassium, le silicium, le tantale... D'autres utilisations sont pour la médecine, la chimie (purification du styrène, préparation du méthylate de sodium...), le blanchiment de la pâte à papier, les lampes à vapeur de sodium... En raison de sa large utilisation dans l'industrie, son coût est faible. Il peut être utilisé comme fluide caloporteur dans les réacteurs à neutrons rapides, dans certaines centrales solaires, ou dans certains procédés chimiques afin d'apporter la chaleur requise pour la mise en œuvre de réactions chimiques endothermiques.

Le sodium est un métal alcalin mou, gris argenté. L'atome de sodium a pour symbole ${}_{11}^{23}\text{Na}$, ce qui signifie qu'il est constitué d'un noyau constitué de 11 protons et 12 neutrons, entouré de 11 électrons répartis selon la formule $1s^2 2s^2 2p^6 3s^1$.

La masse atomique du sodium, pour lequel le seul isotope naturel est ${}_{11}^{23}\text{Na}$, a une masse de 22,9898 g. Comme tous les autres métaux alcalins, le sodium est un élément très réactif (réducteur) qui perd facilement son électron externe. Dans la majorité de ses composés, il se trouve sous forme de cation Na^+ , qui est clairement sa configuration la plus stable.

En raison de sa très grande réactivité, le sodium n'existe pas dans la nature sous la forme d'élément métallique pur. Les

sels de sodium sont les sels minéraux les plus couramment utilisés, du fait de leur grande solubilité et de leur prix modéré. Certains existent dans la nature. La plupart des autres, y compris l'hydroxyde de sodium, peuvent être préparés sans revenir à l'état métallique. Le métal lui-même, qui est un réducteur fort, est très difficile à obtenir par des moyens chimiques : ainsi, Humphrey DAVY, le chimiste et physicien britannique, l'a d'abord isolé en 1807 par électrolyse de l'hydroxyde de sodium fondu. Le sodium est maintenant produit par l'électrolyse du chlorure de sodium liquide : il est préparé dans une cellule d'électrolyse dans laquelle le chlorure de sodium NaCl (40 %) est mélangé avec du chlorure de calcium (60 %), afin d'abaisser le point de fusion jusqu'à 580 °C. Les ions Na⁺ sont attirés par la cathode où se forme le sodium. Dans la mesure où le calcium est moins électropositif que le sodium, le calcium ne se forme pas à l'anode.

Propriétés physiques

Pour chaque propriété physique, nous donnons la référence d'origine d'où ont été extraites les propriétés physiques du sodium liquide. Il n'y a pas, au sens thermodynamique, une base de données cohérente pour le sodium à l'intérieur de la communauté SFR. Par «base de référence», nous entendons une base de données ayant fait l'objet d'une étude thermodynamique interne cohérente.

En raison de différences dans la structure et les distances interatomiques, la plupart des caractéristiques du sodium présentent une discontinuité, lors du passage de l'état solide à l'état liquide ; ainsi, nous donnons quelques équations différentes pour chaque état, soit solide, soit liquide, mais clairement ce sont les caractéristiques en phase liquide qui ont la plus grande importance pour les RNR refroidis au sodium.

À la pression atmosphérique, le sodium est un liquide entre 97,85 °C (son point de fusion) et 882,85 °C (son point d'ébullition) [4]. La largeur de cette plage représente un avantage en termes de sûreté pour le caloporteur sodium puisqu'il autorise un échauffement très important du circuit avant ébullition. L'enthalpie de fusion ΔH_{fusion} est de 2,64 kJ.mol⁻¹ et l'enthalpie de vaporisation ΔH_{vap} est de 89,04 kJ.mol⁻¹.

La température critique est relativement élevée. Il convient de souligner que la valeur attribuée à cette température critique varie selon les auteurs entre 2 573 °K et 2 733 °K. [3]

La densité du sodium est toujours inférieure à celle de l'eau liquide dans les mêmes conditions de température et de pression. Elle a une valeur de l'ordre de 850 kg/m³ à 400 °C, et diminue quand la température augmente, selon la loi :

$$\rho = 950,0483 - 0,2298 (T-273,15) - 14,6045 \cdot 10^{-6} (T-273,15)^2 + 5,6377 \cdot 10^{-9} (T-273,15)^3$$

avec ρ en Kg.m⁻³, T en Kelvin [1].

Appliquée à l'inspection des structures internes au réacteur, l'imagerie ultrasonore donne de bonnes images, en raison de la grande différence de densité existant entre les aciers et le sodium. La faible densité du sodium favorise la bonne transmission des ultra-sons dans les structures. La faible densité permet également, contrairement au plomb, proposé aussi comme fluide caloporteur de Réacteurs à Neutrons Rapides (RNR), de disposer de systèmes d'arrêt passif, grâce à la gravité.

La densité à l'état liquide est inférieure à celle à l'état à phase solide. L'expansion volumique, lors du passage de l'état solide à l'état liquide, est d'environ 2,7 % ; son comportement est donc inverse de celui de l'eau. En raison de cette caractéristique, il est nécessaire de mettre en œuvre des procédures spécifiques pour faire fondre le sodium dans les réservoirs de stockage ou tout autre contenant : ainsi, il est recommandé de faire fondre le volume de sodium, proche de la surface libre, puis progressivement de faire fondre les volumes inférieurs.

La viscosité de sodium à 400 °C peut s'exprimer sous la forme de l'équation suivante [1] :

$$\log_{10} \mu = -2,4892 + \frac{220,65}{T} - 0,4925 \log_{10} T$$

Avec μ en Pa.s et T en Kelvin.

Sa valeur à 400 °C est du même ordre que celle de l'eau à 100 °C, 310 et 280 Pa.s respectivement. En raison de la similitude entre les valeurs de densité et de viscosité du sodium et de l'eau, il est possible de réaliser avec de l'eau des études expérimentales thermo-hydrauliques, notamment pour la validation de codes ou pour la caractérisation des écoulements dans des composants ou cuves de réacteurs. Néanmoins, on ne peut se dispenser de sodium, lorsque l'on veut approfondir le comportement mécanique de structures soumises à des instabilités thermo-hydrauliques (effets de jet, stratification thermique...) pouvant conduire à de la fatigue thermique, à des phénomènes de faïençage thermique...

L'aptitude au mouillage, dénommée aussi « mouillabilité », des matériaux de structure dépend de manière complexe de la température, de la pureté du sodium, de la nature du matériau de structure et de son état de surface, notamment lorsqu'il y a présence d'oxydes métalliques ou de gaz adsorbés, qui modifient considérablement les conditions aux limites entre la surface de la structure et le sodium. Les caractéristiques de mouillage du sodium sur une structure métallique solide changent, quand le sodium, à faible teneur en oxygène, est porté à plus haute température pendant quelques heures, par exemple de l'ordre de 300 °C pendant 24 heures ; dans ces conditions, il y a dissolution des oxydes métalliques présents en surface du matériau. La mise en œuvre d'une telle procédure induit alors un très bon contact entre le sodium et le matériau de structure qui persiste, à des températures plus basses, par exemple 180 °C, température du sodium lors des campagnes de manutention des assemblages.

La conductivité thermique du sodium est très élevée [1] : environ $76,6 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ à $573,15 \text{ K}$. En comparaison, la conductivité de l'eau varie de $0,6 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ à 20 °C à $0,465 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ à 350 °C (sous une pression de 150 bars), tandis que la conductivité de sodium est 100 à 150 fois plus élevée, à la pression atmosphérique.

Pour le sodium solide : $\lambda = 135,6 - 0,167 (T-273,15)$

Pour le sodium liquide :

$$\lambda = 92,951 - 5,8087 \cdot 10^{-2} (T-273,15) + 11,7274 \cdot 10^{-6} (T-273,15)^2$$

avec λ en $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ et T en Kelvin.

Cette conductivité thermique élevée donne au sodium un nombre de Prandtl faible et un comportement thermohydraulique très différent de celui de l'eau : dans le sodium, la conduction thermique est tellement rapide que le profil de vitesse a peu d'effet sur le profil de température.

La chaleur massique du sodium est élevée [1], mais légèrement inférieure à celle de l'eau : ainsi, à 400 °C , elle vaut $1,25 \cdot 10^3 \text{ J}\cdot\text{Kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ (eau à 20 °C : $4,18 \cdot 10^3 \text{ J}\cdot\text{Kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$).

Pour le sodium solide :

$$C_p = 1199 + 6491 \cdot 10^{-4} (T-273,15) + 1052,9 \cdot 10^{-5} (T-273,15)^2$$

Pour le sodium liquide :

$$C_p = 1436,715 - 0,5805 (T-273,15) + 4,6273 \cdot 10^{-4} (T-273,15)^2$$

avec C_p en $\text{J}\cdot\text{Kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ et T en Kelvin.

Le fait que le sodium ait un point d'ébullition très élevé (le point d'ébullition est, par définition, la température à laquelle la pression de vapeur saturante est égale à la pression atmosphérique) montre que le sodium n'est pas très volatil.

La pression de vapeur saturante est donnée par l'équation suivante :

$$\ln P_s = 23,99 - 12580 \cdot T^{-1} - 0,2241 \cdot \ln T + 1,712 \cdot 10^{-22} T^6$$

avec P_s en Pa et $371 < T < 2573 \text{ K}$.

Le fait que le sodium ne soit pas très volatil a plusieurs conséquences :

- En fonctionnement normal, l'évaporation atteint rapidement un niveau d'équilibre (condensation = vaporisation). Par conséquent, dans les divers plénums de gaz, et plus particulièrement dans la cuve primaire, le transfert de masse vers la paroi plus froide de la dalle supérieure est assez limité, en particulier en présence d'argon, en raison de la faible conductivité thermique de ce gaz. Néanmoins, le retour d'expérience de l'exploitation des RNR refroidis au sodium a mis en évidence la présence d'aérosols de sodium, éventuellement oxydés et déposés sur les structures supérieures ou dans des espaces étroits, et il est donc nécessaire de prévoir

des dispositifs permettant de condenser la vapeur de sodium et de piéger les aérosols, afin d'éviter tous les problèmes potentiels induits par leur présence ;

- la distillation sous vide n'est pas une technique de nettoyage très efficace, avant toute inspection ou réparation des structures internes du réacteur. Il convient de souligner toutefois que l'évaporation, qui ne dépend que de la pression partielle de vapeur du sodium, peut être favorisée, dans des conditions éloignées de l'ébullition, par exemple par soufflage avec un gaz chaud. En règle générale, les concepteurs choisissent des procédés chimiques de traitement des films de sodium, présents sur les structures après vidange, par exemple l'injection de vapeur d'eau ou de brouillard.

- en raison de cette faible volatilité, les flammes de sodium, présentes au-dessus d'une nappe enflammée, sont très courtes, et la chaleur produite par convection est faible, par comparaison avec un feu d'hydrocarbures : ainsi, il est possible d'éteindre par étouffement un feu en nappe en répandant une poudre extinctrice.

Le sodium, comme tous les métaux, a une très faible résistivité électrique :

$$\rho_e = 6,1405 \cdot 10^{-8} + 3,5047 \cdot 10^{-10} (T-273,15) + 5,6885 \cdot 10^{-14} (T-273,15)^2 + 1,66797 \cdot 10^{-17} (T-273,15)^3$$

avec ρ_e en $\Omega\cdot\text{m}$, T en K.

Ces propriétés de conduction intéressantes sont largement utilisées en technologie et instrumentation développées pour le sodium : à titre d'exemple, on peut citer les sondes de niveau, débitmètres, pompes électromagnétiques et systèmes de détection de fuites de sodium...

La vitesse du son dans le sodium varie peu, en fonction de la température. Elle est donnée par la relation suivante [2] :

$$C = 2577,2 - 0,5234 (T-273,15)$$

pour $373,15 < T < 643,15 \text{ K}$ avec C en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, T en K.

Cette formule peut être extrapolée jusqu'à 1673 K . Les ondes sonores se propagent donc très bien à travers le sodium. Cette propriété est largement utilisée dans les techniques de métrologie et de visualisation sous sodium et permet de s'affranchir de l'opacité en sodium pour de nombreuses opérations d'inspection en service. L'influence de la température reste faible, néanmoins ; la mesure d'une variation de temps de propagation d'une onde sonore entre deux points, le capteur et une cible fixe, pourrait permettre de détecter une variation de température du sodium. Afin d'assurer la précision des mesures et d'éviter les échos parasites, il est nécessaire de veiller à ce que les quantités de particules solides et les microbulles de gaz contenues dans le sodium soient extrêmement faibles.

Propriétés chimiques

La tendance du sodium à perdre son électron externe lui confère ses caractéristiques réductrices, comme tous les métaux alcalins. Il réagit de façon exothermique avec l'eau, et parfois avec violence, selon les conditions de mise en contact de ces deux fluides. La réaction avec l'eau produit de l'hydroxyde de sodium et de l'hydrogène gazeux : la présence de ce dernier induit donc des risques à évaluer, lorsque le sodium est utilisé pour la chimie ou comme fluide caloporteur. Cette réaction est fortement exothermique (162 kJ/mol de Na) et extrêmement rapide. Pour ces raisons, l'interaction entre le sodium et l'eau, qui peut se produire dans un générateur de vapeur, est un incident dont les conséquences doivent être évaluées correctement afin de dimensionner les systèmes de détection de cet événement et de mise en sécurité du composant.

Cependant, cette forte réactivité avec l'eau est positivement utilisée pour la mise au point de procédés de nettoyage destinés aux matériaux de structure mouillés par du sodium, lors des opérations de maintenance, ainsi que pour la conversion des grandes quantités de sodium issues des circuits en hydroxyde de sodium, en fin d'exploitation du réacteur, lors du démantèlement.

Le sodium solide s'oxyde rapidement à l'air et le sodium liquide brûle au-dessus de son point de fusion soit 97,8 °C s'il est dispersé sous forme de gouttelettes, et au-dessus de 140 °C, s'il est sous forme de nappe liquide. Il se forme du peroxyde de sodium Na_2O_2 , ou, en cas de faible teneur en oxygène, de l'oxyde de sodium Na_2O , de soude (NaOH) et de carbonates de sodium (Na_2CO_3 et NaHCO_3) en proportions variables selon que l'air est plus ou moins humide et plus ou moins chargé de gaz carbonique. La flamme de sodium est d'une couleur jaune-orangée très caractéristique, correspondant à la raie d'émission du sodium de longueur d'onde 589 nm. La température au cœur de la flamme peut atteindre 1340 °C. En raison de cette réactivité chimique élevée, une extrême prudence est requise lors de la manipulation de sodium liquide: en phase liquide, il doit être stocké ou utilisé en présence de gaz inerte (sans oxygène ni humidité), par exemple avec de l'azote ou de l'argon. Des moyens spécifiques ont été développés pour détecter les fuites de sodium, basés sur la mise en place d'éléments conducteurs électriques isolés (fil équipé de perles, tissu métallique...); en cas de fuite de sodium, il y a mise en contact de ce fil avec la tuyauterie et ce court-circuit provoque une alarme.

Pour contrôler les conséquences des feux de sodium, plusieurs approches ont été développées, basées généralement sur la limitation de l'oxygène disponible pour la combustion: dispositifs collecteurs spécifiques, appelés « bacs étouffoirs », partitionnement du volume des galeries dans lesquelles passent les tuyauteries... Des poudres spécifiques d'extinction ont été développées, parmi lesquelles la poudre « Marcalina »,

développée en France, composée de carbonate de sodium et de lithium, mélangé à du graphite : les pompiers l'évalent sur le feu, pour l'isoler de l'air.

L'oxygène et l'hydrogène constituent les deux principaux polluants du sodium. Les solubilités respectives de l'oxygène et de l'hydrogène sont très faibles ; la solubilité atteint une valeur quasi nulle, à la température de fusion (97,85 °C). Cela est une propriété spécifique au sodium, en comparaison avec d'autres métaux liquides, et notamment les autres alcalins.

Pour l'oxygène, l'utilisation de la loi de solubilité de Noden [5] est recommandée :

$$\log_{10}[O(ppm)] = 6,250 - \frac{2444,5}{T(K)}$$

Pour l'hydrogène, l'utilisation de la loi de solubilité de Wittingham [6] est recommandée :

$$\log_{10}[H(ppm)] = 6,467 - \frac{3023}{T(K)}$$

Tous les éléments qui composent l'acier (Fe, Cr, Ni, Mn, C) sont susceptibles d'être dissous dans le sodium. Néanmoins, ce phénomène, qui dépend de la diffusion aux interfaces, reste très faible, car les coefficients de diffusion dans le sodium des espèces métalliques sont très faibles. L'oxygène contribue à la corrosion de l'acier des structures métalliques du cœur et des assemblages combustibles, et les produits de corrosion activés sont transportés vers les autres structures, et plus particulièrement vers les structures refroidies, comme les échangeurs de chaleur intermédiaires, ce qui conduit à leur contamination. Les principaux radio-contaminants sont le Co 60 et le Mn 54. Tous les éléments qui composent l'acier (Fe, Cr, Ni, Mn, C) sont susceptibles d'être dissous dans le sodium. Néanmoins, ce phénomène, qui dépend de la diffusion aux interfaces, reste très faible, car les solubilités et les coefficients de diffusion des espèces métalliques sont eux-même très faibles. Les cinétiques de corrosion sont fonction des paramètres température et débit, ainsi que de la chimie du sodium (activité de l'oxygène, principalement). Des modèles empiriques de corrosion ont été proposés et validés à partir d'expériences représentatives des conditions de fonctionnement en réacteur.

Parce que les aciers ont tendance à échanger des éléments non métalliques, tels que le carbone et l'azote avec le métal liquide, les effets de ces éléments doivent être pris en compte pour l'évaluation de la tenue à la corrosion des aciers dans le sodium liquide et pour les calculs de transfert de matière, mais aussi pour l'évolution des propriétés mécaniques induites. Par exemple, à des températures élevées, la vitesse de diffusion du carbone dans l'acier est suffisamment rapide pour provoquer des changements de concentrations de carbone dans les matériaux de gainage. Ces évolutions ont des effets géné-

ralement marginaux sur le comportement à la corrosion des aciers pour des températures inférieures à 600 °C.

Des phénomènes de fissuration sous contrainte peuvent se produire en présence de soude aqueuse, lorsque le composant, mouillé par une pellicule résiduelle de sodium, est pollué par de l'humidité qui réagit avec le film de sodium. Ainsi, au-dessus de 80 °C pour les aciers ferritiques et au-dessus de 110 °C pour les aciers austénitiques, des fissures inter-granulaires ou trans-granulaires peuvent avoir lieu. Par conséquent, il est nécessaire d'éliminer la soude aqueuse résiduelle sur les composants et les espaces étroits à l'aide d'une procédure appropriée de rinçage et de séchage (point de rosée de -20 °C), avant remise en sodium du circuit concerné.

Propriétés neutroniques

Le sodium n'a qu'un seul isotope stable : $^{23}_{11}\text{Na}$. L'irradiation du sodium par un flux de neutrons conduit à la formation d'isotopes radioactifs. Deux autres isotopes sont créés : par réaction (n,γ) le Na 24 (demi-vie 14,98 h), ce qui induit la nécessité d'attendre la décroissance avant certaines interventions sur les circuits primaires et par réaction (n, 2n) le Na 22 (demi-vie: 2,58 ans), qui doit être pris en compte lors du traitement du sodium, lors du démantèlement. Globalement, ces deux réactions ont une faible section efficace : le sodium est donc faiblement absorbant, ce qui favorise à l'économie de neutrons du réacteur, et s'active peu. Ces deux propriétés sont intéressantes pour son utilisation, en tant que fluide caloporteur d'un RNR-Na.

En conclusion, le sodium comme fluide caloporteur a de nombreux atouts : il a de très bonnes propriétés thermiques, une faible viscosité, une faible densité, une faible activation par les neutrons, une très bonne compatibilité avec les matériaux, une grande disponibilité à faible coût. Cependant, sa réactivité avec l'air ou l'eau doit être maîtrisée.

Christian LATGÉ,
Département de technologie nucléaire

► Références

- [1] G.H. GOLDEN and J.V. TOKAR, « Thermophysical properties of sodium ». ANL-7323- Argonne National Laboratory, Illinois, USA, August 1967.
- [2] SHUH, PAN Ying, and Clyde C. SCOTT « Attenuation measurements of sound and performance of ultrasonic transducers in 600 °F liquid Na », APDA-180, December 2005.
- [3] P. PETIOT and J.-M. SEILER, CEN G (Grenoble), « Physical properties of Sodium : a contribution to the estimation of critical coordinates, from High Temperatures High Pressures », 1984, vol. 16, p. 289-293.
- [4] P. PASCAL, Nouveau traité de chimie minérale, vol. II, Lithium – Sodium, éd. Masson et C^{ie}.
- [5] J.N. NODEN, A general equation for the Solubility of O₂ in liquid Sodium, British Report RB/B/N 2500 (1972).
- [6] A. WITTINGHAM, « An equilibrium and kinetic Study of the liquid Sodium Hydrogen Reaction », *Journal of nuclear materials*, vol. 60, 119, 1976.