



ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

Comptes Rendus Mécanique

www.sciencedirect.com



Le Point sur.../Review article

Surgénérateurs ; l'état des matériaux aux hautes irradiations, hautes puissances locales et températures, leurs gradients et propriétés mécaniques adaptées aux contraintes qui en résultent

Fast breeder reactors: The state of materials subjected to high energy radiation, high local pressure and temperature, gradients and their mechanical properties adapted to the resultant constraints

Robert Dautray*, Jacques Friedel

Académie des sciences, 23, quai de Conti, 75270 Paris cedex 06, France

I N F O A R T I C L E

Historique de l'article :

Reçu et accepté le 20 octobre 2010

Disponible sur Internet le 5 novembre 2010

Mots-clés :

Réacteurs nucléaires surgénérateurs

Centrales nucléaires

Uranium

Matériaux irradiés

Keywords:

Fast breeder reactors

Nuclear power plants

Uranium

Irradiated materials

R É S U M É

Les motivations de réalisations de réacteurs nucléaires surgénérateurs sont détaillées dans le contexte actuel d'un développement considérable de centrales électronucléaires dans beaucoup de pays, utilisant pour la plupart des réacteurs modérés et refroidis avec de l'eau.

Les études effectuées bénéficient en France et, à un moindre degré, dans le reste de l'Union Européenne, d'un passé substantiel. Toutefois, les matériaux de ces réacteurs surgénérateurs doivent, pour utiliser complètement l'isotope 238 de l'uranium, être soumis à des rayonnements bien plus sévères que ceux des réacteurs à eau. Les conditions de densité de puissance seront aussi beaucoup plus importantes ainsi que les gradients thermiques. Les contraintes mécaniques, tant statiques que dynamiques, seront donc plus élevées et agiront sur des matériaux aux propriétés mécaniques altérées. Il faudra fabriquer les éléments combustibles avec des matériaux déjà irradiés plusieurs fois et donc ayant ces propriétés. Un champ d'études alliant matériaux et comportement mécanique dans des conditions nouvelles et plus sévères, tant en fonctionnement que pour les fabrications, est dessiné avec les appareillages adéquats et les orientations de recherches nécessaires.

© 2010 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

A B S T R A C T

The motivations to realize nuclear breeder reactors are developed in the present context of a strong growth in electronuclear power stations in many countries, using mostly moderated and water cooled reactors.

The past studies can be of a substantial profit in France and, to a lesser degree, in other countries of the EU. However, to use fully the 238 uranium isotope, the materials for these breeders must withstand much harder radiation than those for water reactors. The power densities and thermal gradients will also be much more intense. The mechanical stresses, both static and dynamic, will be large and will act on materials with altered mechanical properties. Fuel elements will have to be produced with materials already irradiated several times and therefore showing such alterations.

* Auteur correspondant.

Adresse e-mail : robert.dautray@orange.fr (R. Dautray).

A field of studies concerning materials and their mechanical behavior in new and severe conditions is sketched here, both in construction and working conditions, together with proposed necessary instrumentation and research orientations.

© 2010 Académie des sciences. Publié par Elsevier Masson SAS. Tous droits réservés.

1. Introduction

L'épuisement inéluctable, à l'échelle du siècle, des ressources en pétrole et en gaz, conjugué à la forte augmentation d'une population mondiale stimulée par la mondialisation de l'économie et des communications dans son désir de progrès matériel, pose de façon aiguë la question des ressources mondiales en énergie à moyen terme. C'est ce qui explique le renouveau d'intérêt actuel pour l'énergie nucléaire de fission, qui participe moins au réchauffement climatique que le charbon.

Comme le rappelle un rapport récent de l'IEA (*International Energy Agency*), la seule solution pratique jusqu'au milieu du siècle en cours, pour faire face de façon notable à ces besoins par la fission, est d'utiliser des réacteurs de troisième génération, déjà mis au point.

On peut, ainsi, étendre probablement à 60 ans (même plus dans certains cas particuliers¹) le temps de vie des réacteurs existants ; on peut remplacer ceux qui sont en fin de vie ; on peut aussi construire des réacteurs dans de nouveaux pays.

Mais pour être significatif, cet effort aura, en 2050, utilisé une bonne fraction de la quantité totale aujourd'hui connue de minerais d'uranium. Il faudra donc passer progressivement à une autre façon, moins dispendieuse, d'utiliser l'uranium, en passant aux réacteurs surgénérateurs, à neutrons rapides, qui, outre la petite fraction d'uranium 235, peuvent fissionner la masse principale d'uranium 238. Cette technique a de plus l'avantage de pouvoir utiliser l'uranium appauvri en U 235, issu des usines d'enrichissement en U 235, mais aussi celui d'utiliser l'uranium issu des réacteurs de 2^{ème} et 3^{ème} génération, qui contient de plus environ 1% de plutonium, ou après retraitement de ce combustible, l'uranium (dit de retraitement) qui contient environ 1% d'uranium 235. Ces masses de combustible potentiel, toutes valorisables, sont actuellement emmagasinées (en surface) dans l'attente du choix préférable parmi les solutions à leur entreposage.

Dans ce cadre général, cette note met l'accent sur le cycle des combustibles nucléaires qui doit être mis en jeu.

Elle souligne que l'emploi des surgénérateurs demandera une préparation spécifique des combustibles et, pour la plupart des solutions actuellement envisagées, un retraitement dont les détails peuvent varier suivant le sort prévu pour les différents produits de fission, les isotopes du plutonium et des transuraniens. Ces traitements mettent en jeu des techniques lourdes, qui auraient avantage à être standardisées. La gestion du plutonium produit demandera un contrôle international de ces centres de traitements, qui auraient avantage à être situés au voisinage des centrales électronucléaires. Mais cette gestion posera sans doute moins de problème de transport de matières fissiles que celles actuellement utilisées pour les réacteurs de troisième génération. Bien maîtrisées, actuellement dans les pays qui utilisent le nucléaire, ces gestions de techniques et d'organisation collective² de l'information et du travail seraient plus difficiles à étendre à grande échelle à des pays sans tradition nucléaire ou même industrielle.

Dans le contexte actuel, la décision de développer ou non l'énergie nucléaire dépend de chaque pays, qui doit peser les avantages et les contraintes qu'elle implique. Mais l'expertise qu'ont les pays nucléaires les oblige dès maintenant à réfléchir aux problèmes techniques ou scientifiques posés par cette mondialisation, d'abord pour la phase actuelle de réacteurs de troisième génération, qui a, de plus, l'avantage de produire le plutonium nécessaire au démarrage des surgénérateurs, puis surtout pour l'emploi de ceux-ci après 2050. La gestion du cycle des combustibles demande une coopération régionale pour minimiser les transports de matériaux actifs. Les contrôles de sûreté et de sécurité, comme la nécessité de standardiser les techniques et les procédés, demandent des accords et une gestion internationaux.

Ce développement suppose un effort à long terme de recherches fondamentales et appliquées, qui met en jeu les réactions nucléaires, mais aussi les matériaux utilisés. Leurs comportements à hautes températures sous fortes irradiations de neutrons rapides sont notamment peu explorés et peuvent conduire a priori aussi bien à un fluage accéléré qu'à une fragilité accrue.

Ceci implique un développement de l'instrumentation et la formation de jeunes chercheurs. Nous devons aussi souligner l'importance des tests et des politiques systématiques de double sécurité, comme d'une gestion organisée de l'ensemble du personnel, avec une formation continue et une mobilité qui peuvent être mieux gérées dans de grands ensembles industriels si ceux-ci en prennent la peine.

2. Les conséquences de l'augmentation de la quantité d'uranium traité par utilisation des réacteurs de 2^{ème} et 3^{ème} génération

Comment profiter de certains des inconvénients de cette augmentation des quantités d'uranium traités par les cycles de combustible et pallier les autres, autant que faire se peut, tant à l'échelle de la France, que des entreprises internationales et des organisations mondiales ?

¹ Ces cas sont notamment étudiés par l'EPRI (*Electric Power Research Institute*) des Etats-Unis.

² Par exemple, pour le retour d'expérience, pour la sûreté, pour la radioprotection, pour la maintenance et les révisions périodiques, dont celle de l'enclaustrage de confinement, les interdépendances des commandes, etc.

Quelques nombres³ : pour faire fonctionner un ensemble de centrales électronucléaires de 500 GWe⁴ de la *génération actuelle* pendant 50 ans, il faut y charger annuellement environ 20 tonnes d'uranium enrichi/réacteur \times 500 = 10 000 tonnes/an, soit en 50 ans, environ 500 000 tonnes d'uranium enrichi. Il faut pour cela injecter dans les diverses usines de séparation isotopique d'enrichissement du monde environ 3,6 millions de tonnes d'uranium naturel dont l'ensemble des usines d'enrichissement laissera s'accumuler à côté d'elle environ 3 millions de tonnes d'uranium appauvri. Tout cela demandera de la puissance électrique, de l'eau et des ateliers spécialisés.

Chaque année, il sortira de ce parc mondial 9500 tonnes d'uranium irradié contenant 500 tonnes de produits de fission (25 000 tonnes de produits de fission en 50 ans), 100 tonnes d'isotopes du plutonium (soit 5000 tonnes d'isotopes du plutonium en 50 ans) et environ 10 tonnes d'actinides supérieurs (soit 300 à 500 tonnes de ces actinides sur 50 ans).⁵

Toutes les quantités de ceux de ces corps qui sont dus à des captures de neutrons, comme les transuraniens, les éléments de structures, etc., seront diminuées quand le rapport entre section efficace de capture et section efficace de fission sera lui-même diminué, ce qui est le cas des divers⁶ spectres de neutrons rapides des surgénérateurs.

3. Les caractéristiques du cycle de combustibles des surgénérateurs

Seuls les surgénérateurs sont capables d'utiliser les millions de tonnes d'uranium appauvri, les milliers de tonnes des isotopes du plutonium, les centaines de tonnes d'actinides de numéro atomique supérieur⁷ à celui du Pu [2].

Il faut donc aussi envisager la période où les surgénérateurs seront réalisables et achetables. Eux produiront directement un plutonium moins radioactif, de norme satisfaisante pour la réalisation des armes nucléaires.⁸ Ce processus a déjà commencé, avec la vente par une grande puissance nucléaire de deux surgénérateurs à un pays en cours d'adaptation non

³ Tous les nombres qui suivent, tant dans cet encadré que les notes de bas de page le prolongeant, ne sont que des ordres de grandeurs, car ces valeurs dépendent du taux d'irradiation en réacteur, de l'enrichissement de l'uranium, du taux de rejet de l'usine de séparation isotopique, de la politique de chargement et déchargement du combustible, de l'emploi, outre l'uranium naturel, de l'uranium issu du retraitement, etc. et bien entendu du nombre annuel de centrales électronucléaires réellement construites, mises en services et de leur taux de disponibilité. Il faudra aussi déduire de ces nombres, ce qui est relatif à l'échelonnement des réacteurs mis hors de service ou au contraire prolongés. Ainsi, pendant la période 1996–2009, 43 réacteurs ont été placés hors de service. WNA évalue à 60 le nombre de réacteurs aujourd'hui en service qui seront arrêtés en 2030. Toutefois, la plupart sont de petite puissance. La consommation annuelle des matières fissiles : (1) chargées dans un réacteur de 1 GWe, par exemple ; (2) ainsi de celles (Pu 239 surtout) créées dans le cœur par capture de neutrons dans les isotopes fertiles de l'uranium (surtout U 238 + neutron \rightarrow Pu 239 \rightarrow fission) est évaluée dans les pages 85–86 de [1]. Les isotopes correspondants sont détaillés dans [2].

⁴ Comme repère pour la puissance électronucléaire à installer, rappelons que la puissance actuellement installée (référence de 2007) est de 360 GW électriques et que l'IEA juge nécessaire pour atteindre les objectifs de plafonnement de la teneur du CO₂, d'installer d'ici 2050, 1200 GWe de plus [3]. Son rapport montre que c'est possible techniquement, financièrement et que l'investissement qui y est calculé sera plus que remboursé par les économies de carburants. Le chiffre de 500 GWe cité dans le texte est donc un minimum qui serait dû à des aléas. L'estimation de la « *World Nuclear Association* » – WNA – est que *dés 2010*, 167,4 GWe sont approuvés et financés et que 382,8 GWe sont en étude du site dans un programme spécifique, soit en tout, 550 GWe. En nombre de réacteurs électronucléaires nouveau en cours de lancement, cela ferait 337 réacteurs dont 285 réacteurs construits en de hors de l'OCDE, nécessitant comme première charge de combustible d'uranium environ 68 000 tonnes d'uranium (68 646 tonnes de U est le nombre cité par WNA au 1/10/10, IAEA – *International Atomic Energy Agency* ; Uranium required), puis ensuite en moyenne annuelle, environ 50 000 tonnes d'uranium.

⁵ Il faudra ensuite faire des choix, distincts pour chaque producteur d'électricité ou autre énergie ou usage (désalinisation de l'eau ?), y compris distincts dans le temps :

- faire comme aux Etats-Unis, en Suède, etc., c'est-à-dire laisser refroidir dans une piscine ou dans des containers, situés soit dans les centrales (cas des Etats-Unis où les piscines se remplissent au-delà du raisonnable) soit dans des lieux où il faudra les transporter (ce que fait la Suède, le long de la mer Baltique, dans une piscine souterraine sous une couche de granite) ;
- faire comme la France, le Japon, peut-être l'Union Indienne : les traiter dans une usine de séparation mécanique et chimique spécialisée.

Il faut être conscient que tout cela a été parfaitement effectué, contrôlé et perfectionné en France, grâce à des décennies de travail rigoureux et collectif. Il en est de même de la Suède, des Etats-Unis, du Japon, etc.

Tout ce système est scientifiquement contrôlable, avec des doubles sécurités, indépendantes et passives.

⁶ C'est-à-dire le spectre des neutrons issus directement de la fission, plus ou moins ralenti par des diffusions élastiques ou inélastiques.

⁷ Toutefois, le neptunium 237 (demie vie alpha : $2,1 \times 10^6$ ans) a un numéro atomique inférieur (93) à celui du plutonium (94) et un seuil de fission plus petit que celui de l'uranium 238, ce qui le fait participer activement aux réactions de fission dans un spectre de neutrons rapides.

⁸ En fait, la prolifération [4] passe presque toujours par l'enrichissement en U 235. Nous allons l'expliquer ainsi : 1. pour produire un kilogramme d'U 235 teneur militaire (90% ?), il faut 232 Unités de Travail de Séparation thermodynamique (UTS). A 4,5%, déjà effectuée quand on a produit, ou acheté de l'uranium enrichi pour les centrales électronucléaires, ce qui est licite, à condition de respecter les normes internationales de l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique – AIEA – de l'ONU, il faut 151 UTS. Les 3/4 du chemin de séparation isotopique sont effectués quand on a déjà produit de l'uranium pour les centrales électronucléaires actuelles à eau. Pour faire le chargement de combustible d'une telle centrale de 1 GWe pendant 1 an, il faut donc environ 100 000 UTS. L'énergie nécessaire pour effectuer ce travail de séparation dépend du procédé. Pour la diffusion gazeuse, il faut 2500 kWh par UTS. Pour le procédé d'ultracentrifugation, il suffit de 50 kWh par UTS [4]. Une centrifugeuse actuelle produit environ 3 UTS par an [5]. (De plus, le procédé d'enrichissement par l'ultracentrifugation permet de ré-enrichir l'uranium issu du retraitement, donc encore un peu enrichi en U 235 et contenant aussi les isotopes 234 et 236 de l'uranium, créés par l'irradiation, ce que ne permet pas le procédé d'enrichissement par diffusion gazeuse.) Nous avons constaté de plus que le coût en énergie de la fabrication du combustible pour les centrales électronucléaires est petit vis-à-vis du prix de l'énergie électrique produite. 2. L'uranium est plus facile à usiner, pour faire fonctionner un engin explosif, que le plutonium, le métal qui a le diagramme de phase le plus compliqué de tous les métaux à cause de la couche 5f qui comporte des électrons délocalisés. 3. Enfin et surtout, la mise en service de parcs de surgénérateurs fera que les usines d'enrichissement de l'uranium en U 235 deviendront progressivement sans emploi, donc pourront ne plus être nécessaires pour les cycles de combustibles du nucléaire civil.

encore résolue aux normes de l'AIEA pour sa seule composante civile. Il pose la question essentielle d'un contrôle international effectif sur lequel nous reviendrons dans la conclusion.

4. Possibilités offertes par la science et la technique

En quoi la science et la technique pourraient-elles contribuer à préparer le long terme ? Peuvent-elles ouvrir des orientations utiles majeures, avec ce qu'on peut essayer d'apprécier comme risques freinant les réalisations ?

On étudie depuis les années 1950 les diverses possibilités de conception, les nombreuses possibilités de cycles de combustibles (voir [11] et [14]) et l'emploi (ou stockage ultime ?) des corps radioactifs que les installations nucléaires (centrales électronucléaires et cycle du combustible) produisent. Mais, avec la nouvelle situation du nucléaire mondial qui est en train de se mettre en place, il faut commencer par revisiter toutes les options retenues à cause de critères de l'époque, mais qui ont changé,⁹ revoir la conception à la lumière des modifications dues au réchauffement climatique, les réaliser pas à pas. Ce travail est en cours.

- Le système nucléaire mondial devrait, autant que faire se peut, être conçu, réalisé, commandé, contrôlé, maintenu, exploité, d'une manière internationale, ce qui ne veut pas dire mondiale.
- Partout où cela sera possible, il vaut mieux travailler à l'échelle régionale (c'est déjà le cas pour l'Europe, l'Amérique de Nord, la Russie, la Chine, l'Inde, le Japon, etc.).
- Il faut, autant que faire se peut, partir de ce qui existe dans le cycle du combustible.
- Le futur est intrinsèquement incertain – dans les technologies, les croissances économiques, l'utilisation de l'énergie, les problèmes démographiques et culturels, les capacités professionnelles des hommes et la stabilité de leurs cadres. Il le restera jusques et y compris la réalisation des surgénérateurs. Ce n'est donc pas une seule solution de surgénérateur avec son cycle complet de combustible (disons un système surgénérateur) que nous devons rechercher, développer, construire comme unité pilote et utiliser comme outil d'étude et de démonstration, avant déploiement du système surgénérateur complet, mais nous devons préférer une approche par portfolio de toutes ces technologies, donc par études des sciences et techniques de base permettant des choix entre diverses possibilités, avec pour chacune ses avantages et ses inconvénients. C'est ce qui est en cours.

Nous avons effectué ci-dessus le diagnostic de la situation actuelle et de ses évolutions éventuelles, y compris les pires.

5. Les degrés de liberté en faveur d'une amélioration. Rôle possible de la France

Y a-t-il, du seul point de vue scientifique, des degrés de liberté qui permettraient d'améliorer progressivement cette situation, rendue plus sensible par le besoin légitime des sociétés humaines d'avoir accès à de l'énergie qui ne produise pas de gaz carbonique ? La France peut-elle jouer ici un rôle positif ? Les bons résultats ont un effet d'entraînement.

Citons d'abord la liste de toutes les sciences et technologies qui concourent à la réalisation de ce système surgénérateur¹⁰ :

- Sciences physiques : matériaux à haute température ; matériaux adaptés aux propriétés mécaniques et chimiques ; physique des réacteurs ; transfert de chaleur et dynamique des fluides ; électrochimie et thermochimie ; chimie sous radiation et photochimie ; physique de la matière condensée ; chimie-physique.
- Calcul scientifique avancé : sciences du calcul ; modèles ; simulations.
- Outils de la recherche : instrumentation.

Les degrés de liberté sont, en particulier :

⁹ Voir [6] qui vient de rendre compte de l'avancement des travaux relatifs à l'harmonisation internationale (association WENRA – *Western European Nuclear Regulator's Association*) des objectifs de sûreté des nouveaux réacteurs, les « Commissaires Français de l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) ayant déjà pris position publiquement ».

¹⁰ De tels systèmes surgénérateurs ont été réalisés et exploités avec succès, d'abord par l'université de Chicago dans son laboratoire national d'Argonne, avec un *Experimental Breeder Reactor I* (EBR I) qui fut le premier réacteur nucléaire à fournir de l'électricité au réseau électrique, puis EBR II, situés tous deux dans l'Etat de Idaho (Etats-Unis) ; au Royaume-Uni dans le *Dounreay Nuclear Power Development Establishment*, sur la côte nord de l'Ecosse ; en France par une succession d'outils d'études cohérentes et fécondes (voir [9]), Rapsodie au Centre de Cadarache (CEA), Mazurka (idem), Phenix (au Centre de Marcoule du CEA) et Superphenix à Bugey sur le Rhône ; en Russie par une succession de réacteurs de puissance croissante (BR1, BR2, BR5, puis BOR-60 à Dimitrovgrad ainsi que tous ses traitements de combustibles, BOR-350, BOR-600, BOR-800 à Beloyarsk, le traitement des combustibles étant dans la ville voisine de Tchelyabinsk) ; au Japon par le réacteur de Monju et récemment en Chine par le démarrage d'un petit réacteur de cette catégorie.

- Le degré de liberté qui commande tous les autres est la physique du réacteur et de ce qu'on a appelé dans le passé ses « couvertures ». ¹¹ Cela permet d'agir sur le spectre en énergie cinétique ¹² des neutrons et donc de fissionner tel ou tel corps. Cela permet de concevoir l'histoire dans le réacteur de tel ou tel élément, combustible, cible, contrôle, etc. Cela permet de gouverner les températures limites et donc le rendement de Rankine de l'ensemble turbine-condenseur. Ceci permet d'utiliser des refroidissants qui ne diminuent pas l'énergie des neutrons. Ceci permet enfin de gouverner la sûreté du réacteur, sous tous ses aspects, ¹³ globaux mais aussi locaux.
- Un degré de liberté lié au précédent est le niveau du flux de neutrons. ¹⁴ De chaque portion de volume du cœur du réacteur (disons 1 dm³), il faut évacuer cette puissance thermique ¹⁵ par un fluide. À mesure que la concentration restante des corps fissiles diminue dans notre dm³ par suite de leurs fissions et que la concentration des corps fissiles augmente dans les matériaux fertiles, les produits de fission s'accumulent dans ces deux catégories de corps (comme dans les matériaux de structure) en partie sous forme de gaz (hydrogène, hélium, etc.), leur irradiation va stopper, par suite de l'augmentation des corps qui capturent les neutrons et la diminution de ceux qui produisent des neutrons par fissions, ¹⁶ en un mot de la diminution de réactivité. ¹⁷

¹¹ Couverture : C'est l'ensemble des structures et matières fertiles qui entoure le cœur fissile du réacteur, afin de recueillir les neutrons sortant de ce cœur pour obtenir la création du plutonium par la réaction nucléaire : U 238 + neutron → U 239 → neptunium 239 (demie vie bêta : 2,3 jours) → plutonium 239, puis ensuite par captures successives de neutrons, le Pu 240, le Pu 241 (demie vie bêta : 14,4 ans), le Pu 242, etc. Toutefois, ce procédé de placer les corps fertiles dans la couverture peut avoir des inconvénients pour la stabilité de la réaction nucléaire en chaîne dans le cœur du réacteur.

¹² Quelques données numériques permettent de préciser les flexibilités possibles offertes par la fission en ce qui concerne les durées, les énergies et la nature des produits mis en jeu et donc d'assurer la stabilité de la réaction en chaîne vis-à-vis de toute perturbation : L'énergie cinétique moyenne **E** des neutrons « prompts » (« prompt neutrons ») est l'expression adoptée par les scientifiques américains concernés lors de l'étude du nombre de neutrons s'échappant 10⁻¹⁷ secondes après la fission).

La fission fait suite à une excitation du noyau composé du corps fissile, ici l'U 235, et du neutron incident, excitation qui dure 10⁻¹⁴ secondes et cette fission dure elle-même ensuite 10⁻²⁰ secondes. Les fragments de fission sont arrêtés au bout de $\left\{ \frac{1}{\text{densité massique en grammes/cm}^3} \times 10^{-3} \text{ cm} \right\}$, soit ici environ 10⁻⁴ cm. Le long de ce parcours, ils dissipent toute leur énergie cinétique totale, environ 160 à 170 MeV pour l'ensemble des deux fragments de fission en créant 5 × 10⁶ paires d'ions de la matière traversée et un nombre voisin d'états excités des noyaux de cette matière. Une fois les deux fragments de fission arrêtés, chacun d'eux subira 4 à 5 désintégrations bêta, ce qui modifie à chaque fois leur espèce chimique, aboutissant à un état excité, émetteur de gammas, avant d'arriver à un l'état de noyau stable, mais excité et donc émetteur de gammas irradiant fortement le matériau dans lequel il est placé. Cette irradiation du matériau contenant les corps fissiles reste élevée et substantielle pendant une moyenne de 30 ans pour les corps les plus radioactifs comme le césium 137 (descendant de l'iode 137, produit de fission initial) ou le strontium 90 (descendant du krypton 90, produit de fission initial).

Il s'est trouvé qu'une petite quantité de neutrons est émise bien après, par certains produits de fission, neutrons nommés par leurs découvreurs « *delayed neutrons* », neutrons retardés en français. La demie vie de ces produits de fission (par exemple le brome 87 de demie vie 55,6 secondes → krypton 87 → krypton 86 + 1 neutron) émetteurs de neutrons atteint une cinquantaine de secondes.

L'énergie cinétique moyenne d'un neutron issu de fission est un peu supérieure à 2 MeV (2,275 ± 0,04 MeV) [7] pour la fission du plutonium 239 ou de l'uranium 238 et légèrement inférieure à 2 MeV pour l'U 235 (2,055 ± 0,004 MeV). Le nombre des neutrons prompts est aléatoire, valant 0 (probabilité : 0,02 pour un neutron de 1 MeV incident sur l'U 235), 1 (proba. de 0,11) ou 2 (proba. de 0,30) ou 3 (proba. de 0,41) ou 4 (proba. de 0,10) ou 5 neutrons (proba. de 0,06), soit une valeur probable de 2,65 neutrons par fission. La valeur probable allant de 2,65 pour l'U 235 à 3 neutrons pour le Pu 239 pour un neutron incident d'énergie cinétique de 1 MeV/(l'énergie cinétique moyenne de chaque neutron a été donnée ci-dessus). Toutefois, elle varie suivant le noyau fissile et l'énergie cinétique du neutron incident. Le spectre des neutrons naissants est approché par $\sqrt{E} \times \exp(-E/T)$ où $T = 2E/3$ est la température de la « maxwellienne ». L'énergie cinétique totale des neutrons émis est d'environ 5 MeV.

Environ 10⁻¹⁴ s après les neutrons prompts, environ 5 gammas prompts d'énergie totale de 6 MeV sont émis. Puis les produits de fission émettent à leur tour environ 6 MeV de gammas et 8 MeV de rayons bêta. Cet ensemble de réactions nucléaires est accompagné de l'émission d'environ 12 MeV de neutrons. En tout la fission a dégagé 200 à 210 MeV. Toutefois, il peut être nécessaire d'y ajouter l'énergie dégagée par l'absorption des neutrons dans le milieu où ils parviennent. Cela dépend de la nature de ce milieu. Une valeur de 6 MeV est une moyenne dans les réacteurs actuels et les surgénérateurs conçus jusqu'à présent.

Les diffusions élastiques et inélastiques de ces neutrons sur le fluide de refroidissement et les matériaux de structure, diminuent plus ou moins la « dureté » de ce spectre des neutrons. On est donc maître de la grandeur de ces diffusions.

¹³ Outre l'importance pour la stabilité du flux de neutrons, donc pour la puissance du réacteur, du coefficient Doppler sur le facteur de multiplication, l'effet positif sur la réactivité du réacteur du coefficient de vide du sodium peut être réduit par une conception adéquate du cœur (phénomènes que les acteurs français du nucléaire dominant depuis longtemps). De telles expériences sont en cours dans le programme russe de surgénérateurs afin de parvenir à un concept de réacteur passivement sûr.

¹⁴ Le flux de neutrons : Il se compte en neutrons/cm² et seconde. Sa valeur maximale est d'environ 3 fois celui des REP et de la troisième génération (ou plus quand les connaissances auront progressé ?). Il commande le nombre de fissions par unité de volume et de temps dans le combustible, donc le niveau de puissance thermique dégagé en chaque point du combustible, donc tous les gradients thermiques. Ce flux de neutrons commande aussi le taux de captures dans le matériau fertile (U 238 par exemple), donc le taux de formation du plutonium, par les intermédiaires vus ci-dessus, donc les taux de fissions de ces corps, donc les puissances thermiques qu'ils dégagent à l'endroit où ils sont situés (encore un degré de liberté : où répartir les matières fertiles ?).

¹⁵ Par exemple 3 à 3,5 fois (ou plus) plus élevée par dm³ que dans les réacteurs à eau, REP et leurs successeurs. L'écoulement de la chaleur dans les combustibles cités ci-dessus, puis dans les gaines qui les contiennent, puis la capacité d'évacuation par ce refroidissant (métal liquide pour augmenter la capacité d'évacuation de la puissance thermique contenue dans notre dm³), induisent des contraintes thermiques très élevées, qui engendrent des champs de tensions anisotropes, variables, une cinétique élevée, qui rapidement désagrège les matériaux combustibles. On recherche la vitesse d'évacuation de cette puissance par le fluide refroidisseur la plus élevée, ce qui participe au champ des instabilités d'écoulement, des tensions, de leurs variations et de leur fatigue dans les matériaux des structures non combustibles et les matériaux de gaines des combustibles.

¹⁶ Ajoutons que dans certains concepts de cœur des surgénérateurs, les modifications tout au long de la durée de l'irradiation, par suite des réactions nucléaires et des désintégrations nucléaires, de la répartition spatiale (dans le cœur et sa couverture) des corps créateurs de neutrons et des corps capturant les neutrons, conduit à la décroissance des contre-réactions négatives de la réactivité. Or ces contre-réactions concourent à la stabilité du flux de neutrons par rapport à toute perturbation.

¹⁷ Tous ces processus ont déjà lieu dans les réacteurs à eau tels que les REP et leurs successeurs. Les faits nouveaux sont le plus haut flux rapide, le plus grande fluence de neutrons rapides et surtout le nombre de déplacements par atome durant toute la durée de l'irradiation du matériau considéré, et le rôle

- Se placer proche d'une rivière ou d'une côte marine permettait de disposer d'une source froide gratuite. On peut mettre au point un autre type de cycle de fluide combustible traversant la chaudière nucléaire. Mais que faire, quand, avec le réchauffement climatique, les condensateurs du cycle de vapeur de la turbine seront chauds ?
- On peut se demander si le stock de combustible le plus abondant, le plus facile à traiter, sera les millions de tonnes d'uranium appauvri à environ 0,3% de l'isotope 235 et les dizaines de milliers de tonnes d'uranium de retraitement (environ 1% de l'isotope 235 et aussi un peu des isotopes 234 et 236). Il semble, avec les connaissances d'aujourd'hui, que les types de réacteur les plus à même de l'utiliser seront les surgénérateurs de toutes catégories,¹⁸ mais certainement surgénérateurs, tant qu'on n'aura pas su créer un marché du plutonium fabriqué dans les éléments combustibles UOX et MOX. Dès aujourd'hui, dans le monde, il y en a des milliers de tonnes.¹⁹ Pourra-t-on le maîtriser (voir [8] et [2]) pour en faire un produit encore plus inoffensif ? Voilà encore un degré de liberté à explorer.²⁰
- Les températures des structures les plus chaudes du réacteur (voir [15,16] et [17]) et des autres circuits de fluides de refroidissement, turbine incluse. Ce sont donc des études de matériaux qui peuvent nous y aider. Ainsi, les recherches sur le durcissement à chaud des aciers par éléments d'oxydes sont en cours. Les vibrations engendrées par les systèmes de refroidissement peuvent fragiliser les aciers par une fatigue qui crée, en surface, des marches de glissement, causes possibles d'oxydation ou de rupture.
- La connaissance détaillée des phénomènes physiques, chimiques, mécaniques, etc., qui accompagnent dans les divers matériaux (voir [17] et [18]) concernés par le nucléaire les très grandes irradiations sont encore à connaître d'une manière moins empirique [10,12,13,15]. Pour cela, il serait nécessaire de disposer de sources de flux de neutrons de haute intensité, d'énergie cinétique ajustable et dans des laboratoires spécialisés, des moyens d'examen adaptés. Ainsi, la multiplication des défauts ponctuels créés par l'irradiation peut accélérer la vitesse de fluage sous irradiation, par « montée » des dislocations des cristaux. Mais la condensation de ces défauts ponctuels peut durcir le métal en développant un réseau de dislocations plus denses et moins faciles à faire glisser, en développant ainsi une fragilité après irradiation.

Ces connaissances peuvent contribuer à la possibilité d'allonger la durée de vie des réacteurs nucléaires. Ceci est aussi un degré de liberté dans la conception et l'usage des centrales électronucléaires et de leurs cycles de combustibles.

- Tous les processus physicochimiques qui interviennent dans le cycle du combustible, tant pour la séparation mécanique et chimique que pour les constructions d'éléments combustibles où de cibles à irradier. Les séparations physiques doivent tenir compte du caractère plus ou moins pulvérulent des oxydes irradiés. Les traitements chimiques en conditions plus extrêmes de température et de radioactivité doivent être adaptés, jusqu'à éventuellement l'utilisation de la pyrochimie plutôt que les conditions aqueuses micellaires pour les séparations d'actinides.
- Les rubriques, matériaux, mécanique²¹ et physicochimie intervenant éventuellement, jusqu'au sort ultime des corps radioactifs, posent des problèmes particuliers.
- La taille du réacteur. Une des raisons de construire des réacteurs de 1400 à 1600 MWe, était que, dans le marché hautement concurrentiel de l'Europe de l'Ouest, plus on allait haut en puissance électrique, plus le prix de kWh diminuait. Un des degrés de liberté correspondant est la tenue en haute température des divers composants des circuits des eaux et des corps et soudures des combustibles.

6. Conclusion : les stratégies possibles

L'intérêt essentiel des surgénérateurs est de multiplier les réserves en matières fissiles par un facteur important de l'ordre de 50, en tenant compte des pertes et si on utilise l'uranium 238 majoritaire des minerais d'uranium et non pas seulement la petite fraction d'U 235.²² Mais les surgénérateurs peuvent également fissionner les autres actinides ce qui, en ajoutant un surplus d'énergie produite, réduit les volumes et les contraintes d'action sur les déchets radioactifs ultimes.

plus important de l'irradiation des transuraniens, et de plus hautes températures possibles de toute l'installation électronucléaire, donc une augmentation sensible du rendement de Rankine, ce qui induit les phénomènes thermiques et mécaniques cités ci-dessus. Toutefois ce degré de liberté (dans une marge limitée) induit des cinétiques, des transformations de texture, des déformations, des changements de volume, des pressions internes, des matériaux (dus aux dégagements de gaz de fission, d'hélium et d'hydrogène, déjà mentionnés, mais dont l'importance doit être soulignée), donc de leur comportement mécanique dans notre dm^3 de cœur, mais aussi dans le cœur tout entier avec tous ses problèmes de mécanique de structure (aciers : ainsi la limite élastique d'un acier inoxydable 316 dépend d'abord de la fréquence moyenne des déplacements des atomes, qui varie de 2 par an pour les REP à un tous les 12 jours pour les surgénérateurs) et d'emploi (matériaux combustibles). Un degré de liberté essentiel est la durée d'irradiation des combustibles et des éléments fertiles. En ce qui concerne la diminution de leurs qualités mécaniques au cours de l'irradiation, le facteur pertinent n'est pas la fluence de neutrons, mais le nombre de déplacement par atome en fin d'irradiation. Voir la figure 1 de [19] en ce qui concerne l'acier 316.

¹⁸ Les diverses catégories visent les natures des matériaux combustibles et de matériaux de refroidissement. Il y a loin d'un avion de 1925 au dernier modèle d'Airbus ou de Boeing. On ne pouvait pas soupçonner la possibilité du dernier à l'époque du premier.

¹⁹ En France, il y en a des centaines de tonnes parfaitement maîtrisées.

²⁰ Le travailleur en physique des réacteurs et des armes nucléaires reçoit périodiquement des projets de publications sur ce thème.

²¹ En parcourant tous les ateliers et laboratoires de la Suède nucléaire, on rencontre des spécialistes chevronnés de tous les métiers des matériaux et de la mécanique (soudure, etc.).

²² Et la plus petite part du plutonium 239 (formé in situ par capture de neutrons sur l'U 238) qui est fissionnée in situ.

Diverses stratégies sont ainsi possibles et actuellement en cours d'études. Elles diffèrent d'une part par des retraitements séparés ou commun des isotopes du plutonium et des autres actinides, et d'autre part, par l'utilisation ou non des neutrons particulièrement énergiques nécessaires pour la fission ou la transmutation (éventuellement suivie de fission spontanée) des actinides les plus difficiles à éliminer, principalement le curium. La seconde alternative a un prix qui doit se comparer à celui d'un stockage souterrain de quantités, de toute façon, minimales.

La première alternative vient du fait que les neutrons rapides des surgénérateurs produisent un plutonium beaucoup moins radioactif que les neutrons lents des réacteurs actuels. Une extraction commune de ce plutonium avec les autres actinides radioactifs serait moins proliférante.

On peut aussi, dans une première phase, utiliser les isotopes du Pu des MOX irradiés (plusieurs centaines de tonnes en France en 2050) et donc les séparer mécaniquement et chimiquement des éléments MOX irradiés pour fabriquer des éléments combustibles avec l'uranium appauvri des usines d'enrichissement en U 235 ou/et des REP, des EPR, et des autres réacteurs similaires.

Les avantages et inconvénients de ces diverses options sont en cours d'études. En revanche, une stratégie mettant uniquement l'accent sur la suppression des actinides mineurs, pour faciliter l'exploitation à long terme des REP, ou pour mener dans certains pays à la sortie du nucléaire, ne résoudrait pas le problème de l'épuisement en minerais d'uranium, ni celui de l'accumulation actuelle de plutonium.

Avec son expérience reconnue dans ce domaine, la France doit participer à cet effort international dont nous soulignons les multiples implications scientifiques, techniques et sociétales.

Références

- [1] R. Dautray, L'énergie nucléaire civile dans le cadre temporel des changements climatiques, Document 17, rapport à l'Académie des sciences, éditions TEC et DOC Lavoisier, décembre 2001, p. 216.
- [2] R. Dautray, Les isotopes du plutonium et leurs descendants dans le nucléaire civil, rapport à l'Académie des sciences, éditions TEC et DOC Lavoisier, mai 2005.
- [3] Energy technology perspectives, in: Scenarios and Strategies to 2050, International Energy Agency, 2010, pp. 134–139.
- [4] R. Dautray, Sécurité et utilisation hostile du nucléaire civil, rapport à l'Académie des sciences, éditions TEC et DOC Lavoisier, juin 2007, p. 216.
- [5] D.J.-C. Mackay, Sustainable Energy Without the Hot Air, UIT Cambridge, England, 2009, p. 102.
- [6] Quel niveau de sûreté pour les nouveaux réacteurs nucléaires? La lettre de l'autorité de sûreté nucléaire, no 14 sept./octobre 2010, p. 1, <http://www.asn.fr>.
- [7] Reactor physics constants, fig. 1-6, Reactor physics constants, ANL-5800, Argonne National Laboratory, p. 12.
- [8] Robert Dautray, Jacques Friedel, Energy: towards nuclear breeder installations before the end of this century?, C. R. Mécanique 335 (2007) 61–74.
- [9] H. Bailly, D. Ménessier, C. Prunier (Eds.), The Nuclear Fuel of Pressurized Water Reactors and Fast Reactors. Design and Behaviour, CEA, Editions TEC & DOC, 1999.
- [10] Journal of Nuclear Materials (Rudy Konings, Head of the Material Research Unit, au ITU, is appointed Editor).
- [11] Alternative nuclear fuel cycles, review article, ITU report, 2007, pp. 10–15.
- [12] Gary Was, Design of Radiation-Tolerant Alloys for Generation IV, University of Michigan, August 2010.
- [13] Gary Was, Developing and Evaluating Candidate Materials for Generation IV, University of Michigan, August 2010.
- [14] Systèmes nucléaires du futur, Génération IV, CLEFS no. 55, CEA, été 2007.
- [15] Steve Zinkle, Materials challenges in nuclear energy systems, Oak Ridge National Laboratory, Version 2010 ("Gen-IV" high temperature gas-cooled reactors, "Gen-IV" Na-cooled fast. Close the nuclear fuel cycle by "burning" transuranic isotopes and fission product wastes from LWR reactors).
- [16] S.J. Zinkle, J.T. Busby, Mater. Today 12 (2009) 12.
- [17] Y. Guérin, G.S. Was, S.J. Zinkle, Materials challenges for advanced nuclear energy systems, MRS Bulletin 34 (1) (2009) 10–19.
- [18] D. Petti, D. Crawford, N. Chauvin, Fuels for advanced nuclear energy systems, MRS Bulletin 1 (2009) 40–45.
- [19] Gary Was (Ed.), Fundamentals of Radiation Materials Science, Springer, 2007.