

Défis pour la science des matériaux

M. Defranceschi*

La mise au point de réacteurs innovants à fusion thermonucléaire et à fission nucléaire est subordonnée à la disponibilité de combustibles nucléaires et de systèmes de matériaux fonctionnels et structurels avancés capables de résister à des conditions extrêmes : températures élevées, irradiation neutronique intense, environnements fortement corrosifs, combinés à des états de chargement et des historiques de chargements cycliques complexes. Les défis qu'il faudra relever dans le domaine des matériaux nucléaires sont légion : exploitation dans des conditions critiques, exigences de sûreté et de protection extrêmement élevées, sans oublier les problèmes liés au déclassement et au démantèlement des installations nucléaires ainsi qu'au traitement des déchets.

L'industrie nucléaire accorde une place primordiale à la recherche de nouveaux matériaux et à leur adaptation aux propriétés multifonctionnelles recherchées – ce que font également bon nombre d'industries – mais elle doit tenir compte d'une condition particulière : les rayonnements. Bien peu d'industries désirant se développer peuvent se dispenser de recherches en sciences des matériaux, mais aucune ne doit probablement y consacrer autant de moyens que l'industrie nucléaire. Par delà les questions scientifiques et technologiques fondamentales se posent des problèmes économiques et sociétaux : il est d'autant plus vital de contrôler le vieillissement des matériaux que la durée de vie des centrales nucléaires s'allonge et que les exigences de sûreté deviennent plus sévères.

Pour ce qui concerne les conditions d'exploitation, la complexité tient à la coexistence, assez rare, de contraintes de fonctionnement très sévères et d'une exigence, extrêmement difficile à satisfaire : prévoir correctement le comportement des matériaux sur le long terme dans un environnement où

les rayonnements, les chargements thermomécaniques et les agressions chimiques s'associent pour les dégrader. À maints égards, notre connaissance des matériaux reste empirique et difficile à extrapoler à de nouveaux matériaux, environnements ou conditions de fonctionnement car les mécanismes fondamentaux qui président à la fabrication et déterminent le comportement et les performances des matériaux restent en grande partie mal compris et nécessitent des recherches approfondies.

Le domaine en question, souvent désigné sous le nom de « matériaux nucléaires » par commodité, recouvre un vaste ensemble de matériaux de différents types (métaux et leurs alliages, polymères, verres, céramiques, etc.) susceptibles d'être employés dans des applications diverses.

Fission : acier ferritique (cuves sous pression des réacteurs), acier inoxydable austénitique (internes), alliages de zirconium (gainage des combustibles), matrices oxydes (combustibles usés).

Fusion : aciers ferritiques et austénitiques (paroi et tuyauterie), composites à base de céramiques.

Réacteurs de quatrième génération : alliages fer-chrome, carbure de silicium, etc.

Conditionnement des déchets : verres, matériaux à base de ciment, matrices minérales.

Composants de centrales nucléaires : polymères (câbles et revêtements).

Besoins technologiques

Les besoins technologiques en matériaux nucléaires sont très divers, et les sujets pluridisciplinaires abondent. Cette diversité concerne les types de matériaux, leurs propriétés ainsi que les échelles de grandeur et de temps. Il existe des différences majeures entre les sciences des matériaux, d'une part et les sciences de la matière condensée et la physique de l'état solide, de l'autre, qui tiennent aux motivations technologiques fondamentales de la première : l'adéquation à certains besoins (propriétés intrinsèques comme les modules ou la capacité de résister à de fortes températures), le comportement

* Mme Mireille Defranceschi (mireille.defranceschi@oecd.org) travaille à la Banque de données de l'AEN.

sur le cycle de vie (évolution du combustible nucléaire lors de son utilisation, évolution des matériaux fluant à haute température, claquage des polymères soumis à une contrainte électrique, altération des verres après stockage, par exemple), l'acceptabilité pour le client, les aspects liés à la sûreté ainsi que les aspects économiques et environnementaux (optimisation des matériaux destinés au stockage des déchets radioactifs, prolongation de la durée de vie en service).

Les spécialistes des sciences des matériaux se heurtent à de nombreuses difficultés :

- Les sciences des matériaux nucléaires étudient des problèmes multi-composants, multi-phase et multi-échelle. Les phénomènes peuvent aussi bien être observés à l'échelle atomique que macroscopique ou encore mésoscopique (de quelques nanomètres à un micron, environ), et l'on peut rencontrer simultanément plusieurs de ces échelles. L'échelle de temps peut aller de quelques femtosecondes à des dizaines d'années (durée de vie d'une cuve) quand il ne s'agit pas d'échelles de temps géologiques (stockage des déchets radioactifs).
- Les phénomènes fondamentaux qui régissent le comportement des matériaux sous irradiation sont complexes. À l'heure actuelle, on ne sait toujours pas quelle est l'échelle adaptée à ce phénomène. S'agit-il de l'échelle atomique (structure électronique) ou l'effet est-il collectif et se produit-il à plus grande échelle ? Il est également essentiel d'évaluer les propriétés physicochimiques du combustible nucléaire. Malheureusement, dans ce domaine, on dispose de données limitées en raison des difficultés posées par les champs de rayonnements intenses.
- De nombreux systèmes sont produits ou utilisés alors qu'ils ne sont ni en équilibre thermodynamique, ni homogènes : les considérer à l'équilibre est insuffisant. Par exemple, on admet, sans trop de risque d'erreur, qu'à de fortes températures, la plupart des solides sont en équilibre thermodynamique. À basse température, ce postulat n'est pas toujours vrai étant donné que les échelles de temps de la relaxation de ces solides peuvent être très longues. Un système peut également être maintenu dans un état qui n'est pas l'équilibre. L'irradiation des matériaux par des faisceaux d'ions ou de neutrons peut aussi placer le système dans une configuration complexe. Parfois, la perturbation du système est telle que des transitions de phases ordre-désordre provoquées par l'irradiation se produisent dans les alliages. Des transitions de phases induites par l'irradiation peuvent également s'observer dans des oxydes simples comme le dioxyde de zirconium, lorsque le solide passe d'une structure cristalline à une autre. Mais des transitions dues à l'irradiation peuvent aussi avoir lieu dans des

oxydes plus complexes. À l'heure actuelle, on ne comprend pas encore les mécanismes conduisant à ce type de transitions de phases sous irradiation.

- La connaissance des grandeurs thermodynamiques est essentielle pour étudier la stabilité et/ou la réactivité chimique des phases solides. Or, ces grandeurs ne sont pas toujours connues, au niveau théorique ou expérimental.
- Il est primordial de déterminer les types de contraintes (fatigue, corrosion, fluage thermique, etc.) mais, d'une manière plus générale, parce que tous les systèmes couplés sont en interaction et subissent au surplus une combinaison de différentes formes de contraintes, des recherches interdisciplinaires s'imposent.

Dans ce contexte, la R-D est un complément indispensable si l'on veut pouvoir mener des études communes et comparatives pour soutenir la mise au point de différentes catégories de combustibles innovants (et de matériaux de gainage). Elle permet de procéder à une étude multi-échelle des combustibles et matériaux de structure pour les systèmes nucléaires et d'analyser les aspects scientifiques et technologiques des matériaux nucléaires. La R&D vise plus particulièrement à établir des modèles et simulations multi-échelles qui serviront d'outils de prévision validés pour la conception de systèmes nucléaires, la fabrication et le fonctionnement des combustibles. Elle constitue un formidable moyen de favoriser des échanges d'informations sur les modèles et les simulations de matériaux nucléaires, les méthodes théoriques et les méthodes de calcul, la validation expérimentale et d'autres sujets connexes. Elle produit en outre des informations à jour, des données partagées, des modèles et une expertise. À cet égard, il convient de rechercher la combinaison optimale de recherche expérimentale et de recherche théorique pour explorer de nombreux champs de recherche, de façon à bénéficier de l'apport réciproque des deux approches.

Effort de recherche

De nombreux goulets d'étranglement persistent et nécessitent un effort de recherche particulier. Deux exemples illustrent les aspects spécifiques et génériques des problèmes posés par les matériaux nucléaires. Le développement de modèles numériques témoigne de l'importance de la contribution de la R-D nucléaire aux sciences des matériaux, puisqu'elle est axée sur les rayonnements, leurs modes d'action et leur impact sur les propriétés d'utilisation des matériaux. Le second exemple illustre non seulement les aspects spécifiques mais aussi le caractère générique des difficultés à résoudre, au travers de problèmes liés aux conditions opératoires et de questions en aval concernant les propriétés thermodynamiques des matériaux.

L'étude expérimentale des effets de l'irradiation sur les matériaux est très coûteuse car elle nécessite l'utilisation d'installations expérimentales spécifiques (centrales nucléaires expérimentales, laboratoires de haute activité), qui sont relativement peu nombreuses. D'où les efforts importants réalisés pour mettre au point des outils numériques destinés à modéliser les effets de l'irradiation sur les matériaux nucléaires. Il est primordial d'identifier des aspects fondamentaux analysables par la modélisation ou la simulation avant de passer aux expériences si l'on veut gagner du temps et économiser les ressources nécessaires à la conception de nouveaux combustibles et matériaux de structure. Par exemple, la modélisation a pour fonction de décrire la thermodynamique des défauts ponctuels et des phases induites par irradiation. L'un des principaux objectifs de la modélisation est d'établir un ensemble d'outils cohérent auquel il sera ensuite facile d'intégrer tout modèle physique destiné à résoudre un problème de matériau multi-échelle. Le cadre étudié inclut les éléments suivants, mais ne s'y limite pas :

- modélisation et simulation atomistiques de combustibles nucléaires et matériaux de structure sur des échelles de temps et de grandeur de plus en plus importantes, en prêtant attention aux effets des dommages d'irradiation et aux méthodologies nécessaires à l'intégration des différentes échelles ;
- validation de simulations et de prévisions de modèles via le benchmarking et identification des données expérimentales qui seraient les plus urgentes ou les plus importantes pour cette validation ;
- instauration et maintien d'une synergie entre pratiques employées pour les expériences et les tests ; constitution de jeux et de bases de données de référence sur les expériences et les simulations, afin de mieux maîtriser l'emploi combiné des techniques de modélisation/simulation et des techniques expérimentales ;
- développement de nouveaux outils de mathématiques appliquées et outils logiciels (méthodes de stockage des données et méthodes algorithmiques innovantes, par exemple), en particulier s'ils concernent à la fois les combustibles et les matériaux de structure ;
- intégration des résultats des modélisations et simulations multi-échelles à des codes de performance et à des processus de qualification des matériaux, mais aussi à des environnements multiphysiques (couplage des changements des propriétés des matériaux et de la neutronique, par exemple).

D'un point de vue plus pratique, il est important de déterminer des diagrammes précis décrivant l'état à l'équilibre des matériaux constitués de plusieurs composants. Les logiciels spécialisés sont

sans conteste d'une grande utilité pour calculer des diagrammes acceptables de ce genre et établir des bases de données thermodynamiques très complètes. Le soin avec lequel sont choisies les données d'entrée (structures et valeurs sélectionnées) et analysés les résultats est primordial. Malheureusement, en raison des difficultés évoquées précédemment, on dispose rarement de grandeurs dont la qualité soit garantie. En outre, sachant que les conditions d'exploitation dans la cuve des réacteurs de quatrième génération devraient être encore plus contraignantes, on aura d'autant plus besoin de données thermodynamiques de qualité. Une évaluation détaillée des grandeurs thermodynamiques de toutes les phases des systèmes de combustible complexes doit être effectuée afin de prévoir le comportement des matériaux (compatibilité chimique, par exemple) à des températures situées entre 1 000 et 2 000°C. Ces connaissances peuvent également aider à définir les conditions de fabrication des matières combustibles.

Les produits de fission et les actinides mineurs doivent eux aussi être pris en compte dans les prévisions du comportement physico-chimique des combustibles irradiés dans des conditions normales et accidentelles. S'agissant des accidents graves, une base de données thermodynamiques constitue un outil précieux pour interpréter les expériences futures de relâchement de produits de fission et permet également de prévoir la température de liquéfaction. Pour les matériaux destinés à des applications nucléaires, il convient de souligner que les bases de données ne doivent pas contenir uniquement des composés simples mais toutes les compositions possibles de solutions solides.

Un large spectre d'applications

Les connaissances acquises et les méthodes élaborées au cours des recherches pourraient trouver de nombreuses applications, bien au-delà du seul domaine nucléaire. Un grand nombre de phénomènes physiques et de mécanismes fondamentaux dans des installations nucléaires s'appliquent tout aussi bien au comportement de ces mêmes matériaux en présence de jeux de contraintes généralement moins fortes ou simplement dans des emplois ou des environnements totalement différents. ■