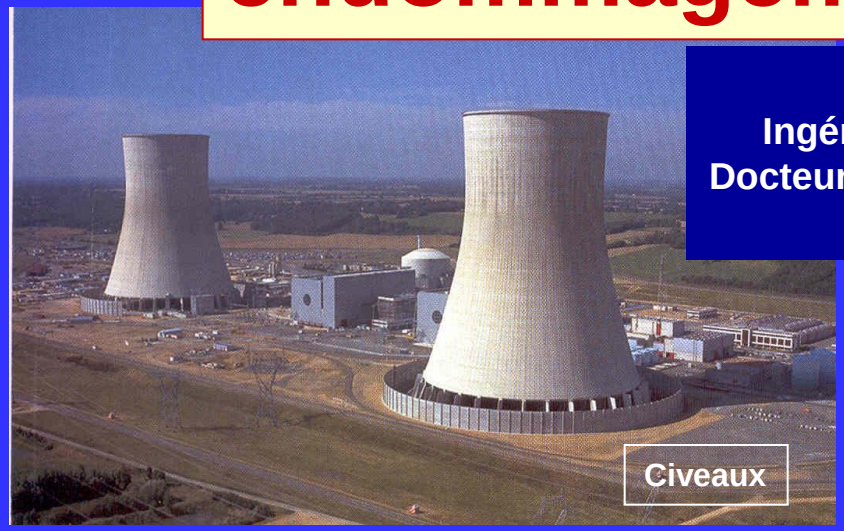
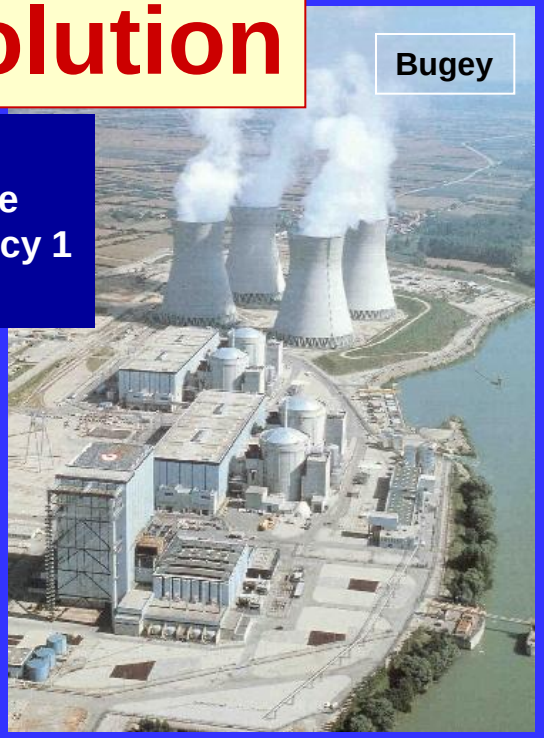
Les matériaux du nucléaire endommagement et évolution

Jacky Ruste
Ingénieur INSA Génie Physique
Docteur Ingénieur Université Nancy 1
(Ing. Senior EDF R&D)





jacky.ruste@free.fr
http://micro.icaunais.free.fr

Quelles sont les causes possibles d'accidents (de niveau >3) dans le nucléaire ?

Erreurs humaines
- *mauvais entretien*
- *fausse manipulation…*

- *St Laurent des eaux (UNGG-France, 1969, 1980)*
- *Three Mile Island (REP-USA, 1979)*
- *Tchernobyl (RBMK-URSS, 1986)*
- *Tokaimura (1999)*

Causes environnementales
- *séisme*
- *inondations…*

Fukushima (BWR-Japon, 2011)

Problèmes de matériaux
- *rupture du circuit primaire*
- *rupture de la cuve*
- *fissuration des gaines de combustible…*

Saint Laurent des Eaux (UNGG-1980)
fusion de éléments combustibles (corrosion)

Peu d'accidents liés aux matériaux…
et pourtant….
dans une centrale nucléaire les matériaux sont soumis
à des conditions sévères…

Quelles sont les sources possibles de problèmes de matériaux que l'on peut rencontrer dans un REP ?
(réacteur à eau pressurisé)

- **la corrosion en milieu aqueux (circuits primaire et secondaire)**
- **le comportement mécanique (fatigue, fluage, corrosion sous contrainte)**
- **les soudures (risque d'apparition de défauts : fissures)**
- **l'irradiation neutronique (cuve et circuits internes de la cuve)**

vieillissement, corrosion assistée...

classique

Spécifique
encore peu de connaissances

La centrale doit satisfaire à certaines contraintes :

- **durée de vie (30 ans extensible à 40 ou 60 ans)**
- **maintenance (disponibilité 80 à 82%, objectif : > 85%)**
- **coût de l'investissement (2000 à 3000 M€ par tranche)**
- **coût de la maintenance (300 à 700 k€/jour d'arrêt)**
- **fiabilité (éviter l 'accident grave)**
- **réduire le coût à la production (0,03 à 0,02€/kWh)**
- **gestion des déchets (aval du cycle)**

Ces études concernent :
- **le parc actuel (58 réacteurs)**
- **les réacteurs de recherches**
- **les réacteurs de 3ème génération (EPR)**
- **les réacteurs de 4ème génération (2025)**
- **les futurs réacteurs de fusion (ITER…)**

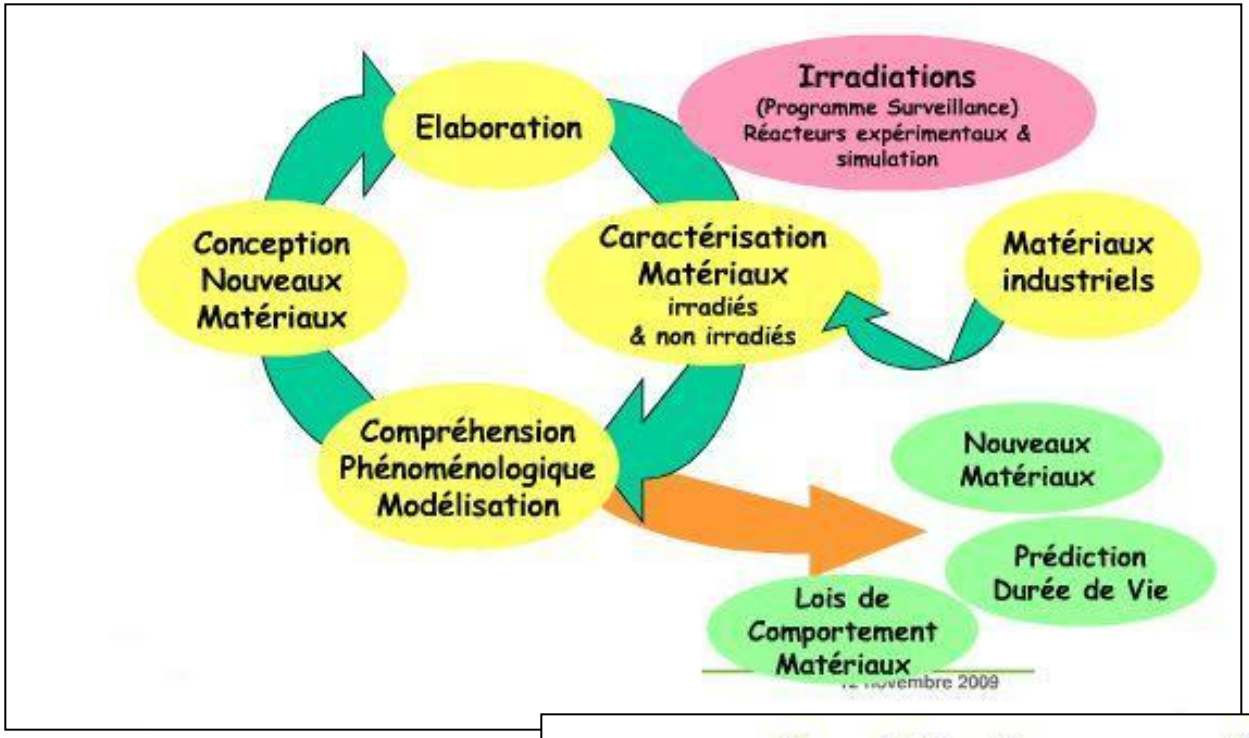


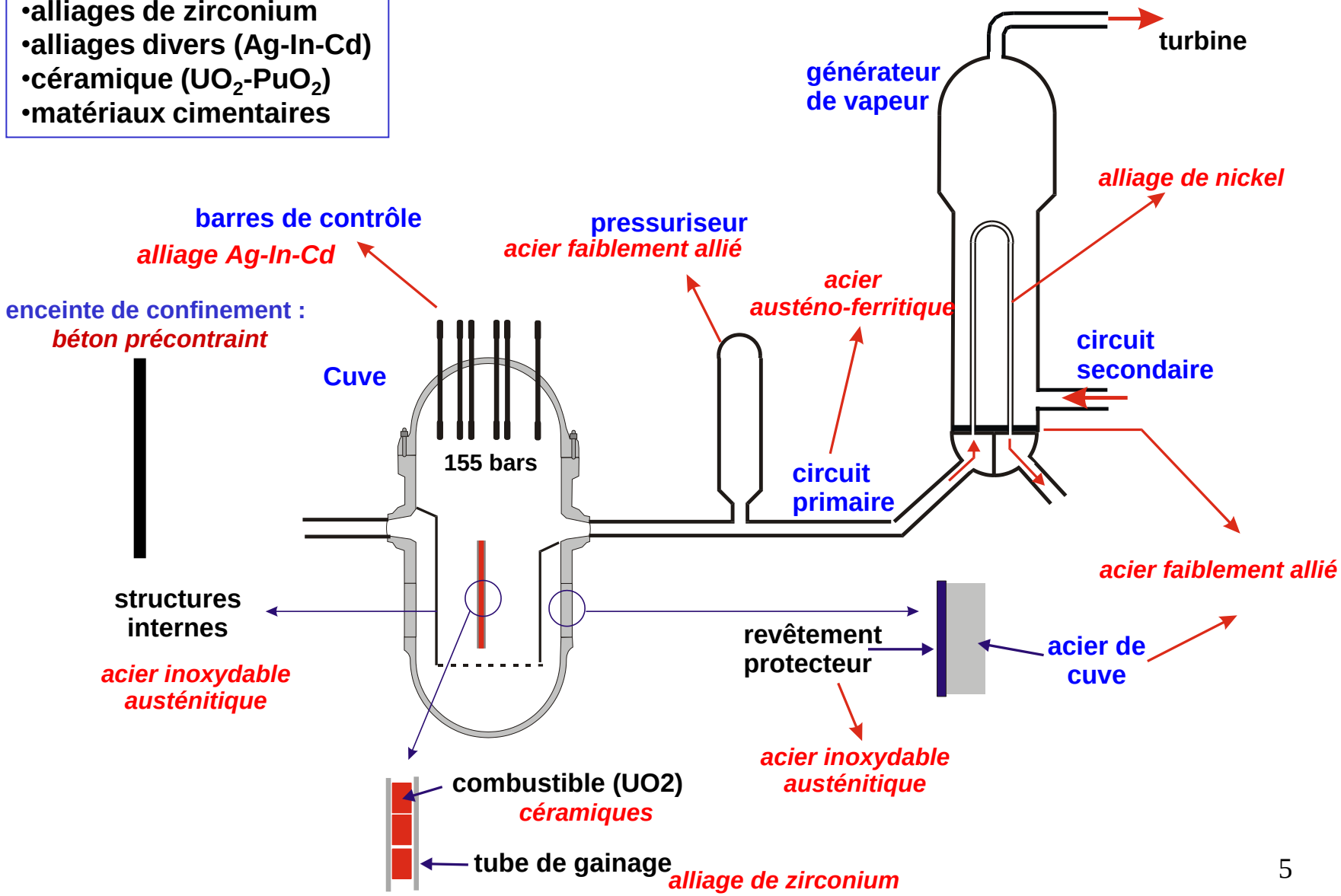
Schéma de protocole d'étude de matériaux pour l'industrie nucléaire

Considérations complémentaires

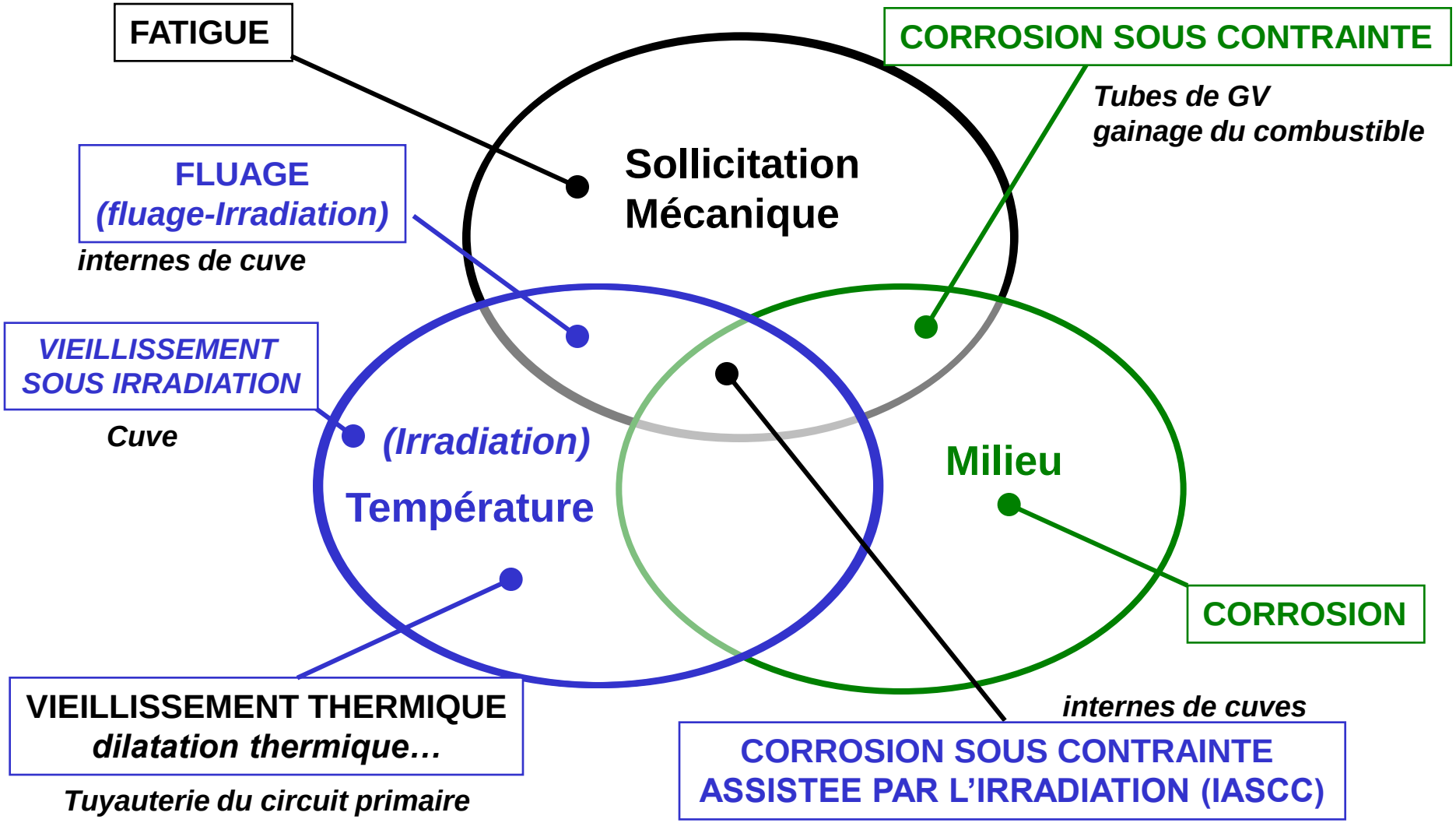
- ***Disponibilité et coût des matériaux***
- ***Fabricabilité et technologie d'assemblage***
- ***Inspection en service***
  - → *Techniques de contrôle non destructif*
- ***Approche de sûreté et certification***
  - → *Codification pour la conception nucléaire*
  - → *Effort spécifique au-delà de la R&D pour établir les règles et normes de conception mécanique pour le nucléaire*
- ***Démantèlement et gestion des déchets***

REP 2ème et 3ème génération : les divers types de matériaux

- aciers faiblement alliés
- aciers inoxydables
- alliages base nickel
- alliages de zirconium
- alliages divers (Ag-In-Cd)
- céramique (UO_2-PuO_2)
- matériaux cimentaires



LES PRINCIPAUX TYPES DE VIEILLISSEMENT ET D'ENDOMMAGEMENT



! « vieillissement » ne signifie pas forcement « dégradation » mais « évolution »

Quelle « maladie » pour quel composant ?

Types de « maladies » rencontrées

1 Vieillissements conduisant à une dégradation des propriétés mécaniques des matériaux

- **Fragilisation sous irradiation zone de cœur des cuves** *(16 MND5)*
- **Vieillissement thermique de l'acier austénoferritique moulé** *(CF8 - CF8M) coudes, tuyauteries, piquages, corps de robinets, volute de pompe primaire*
- **Vieillissement d'aciers martensitiques** *(Z12C13 -> 17.4PH) tiges de robinets, goujonnerie*
- **Vieillissement thermique d'aciers non ou faiblement alliés** *pressuriseur, circuit secondaire*
- **Fluage relaxation béton** *enceintes de confinement*

2 Dégradation par fissuration

➡ **Fatigue thermique**

- **zones de mélange de réseau de tuyauteries** *(RRA tous paliers)*
- **zones locales de gros composants** *(barrières thermiques et arbres de pompes primaires)*

➡ **Fatigue vibratoire**

- **piquages circuits auxiliaires nucléaires**
- **rotors frettés de turbine**

3 Dégradations par corrosion

- **Corrosion sous contrainte** *(assistée par l'irradiation)* **de composants d'internes de cuve** *(vis de cloisonnement)* **en acier austénitique écroui** *(316L)*
- **Corrosion sous contrainte de l'alliage 600 et métaux déposés** *(82, 182, …)*
  (tubes GV, piquages pressuriseur 1300 MW, couvercles de cuve)
- **Corrosion sous contrainte de l' X750** *(broches de tubes guides de grappe)*
- **Décohésions intergranulaires liaisons bimétalliques ferritique / inox**
- **Corrosion intercristalline des aciers inoxydables,**
- **Corrosion des gaines de combustible** *(Zircaloy)*
- **Corrosion dans la gangue d'acide borique** *(boulonnerie en acier faiblement allié de pompe primaire, GV, pressuriseurs, vannes)*
- **« Denting » et amincissement des tubes de GV,**
- **Corrosion-érosion dans le circuit secondaire,**
- **Corrosion sous contrainte de l'acier des rotors de turbine frettés**
- **Corrosion par piqûre des aciers inoxydables (tubes de condenseurs)**

4 Dégradation par perte de matière

- **Usure par frottement** *(grappes de commande)*
- **Corrosion - érosion acier non allié en milieu secondaire**

Sommaire

I – Etudes de sources d'endommagement :

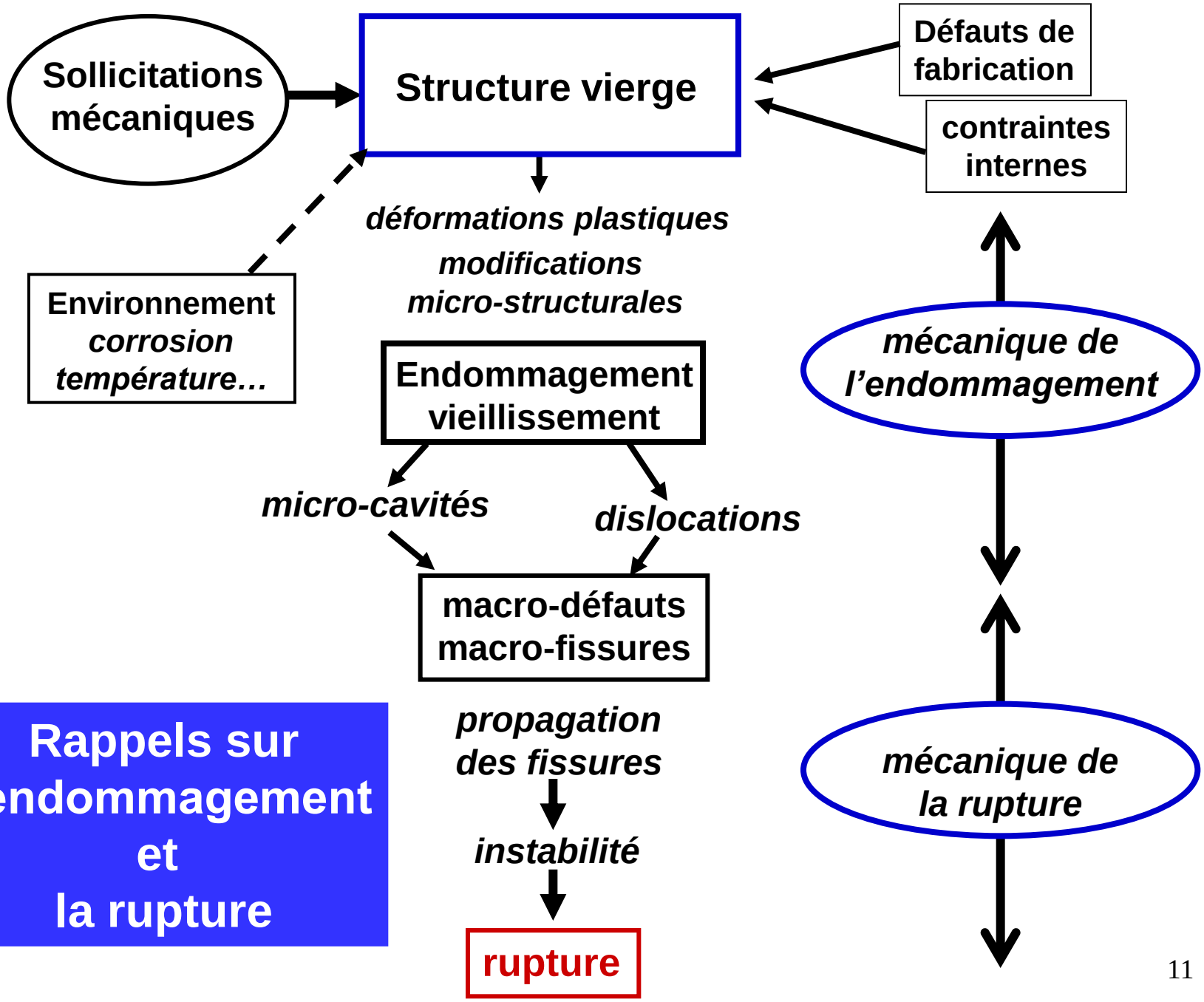
- *Introduction à la mécanique de la rupture*
- *la corrosion sous contrainte*
- *les effets d'irradiation*

II – Etudes de quelques composants du réacteur :

- *la cuve (acier faiblement allié)*
- *le circuit primaire (acier austéno-ferritique)*
- *les structures internes (aciers inoxydables)*
- *le gainage du combustible (alliages de Zr)*
- *fissuration d'une aube de turbine*

III – Les matériaux des réacteurs de 4ème génération…

IV - Annexe :
Les moyens expérimentaux d'études des matériaux nucléaires



Rappels sur l'endommagement et la rupture

Ia - Quelques rappels sur le comportement mécanique des matériaux

notions de mécanique de la rupture :

L'action d'une contrainte extérieure peut conduire à la « ruine » d'un matériau c'est-à-dire à la rupture

Contrainte forte, continue ou brutale ⇨
- **rupture fragile**
- **rupture ductile**
- **rupture par clivage**

limite d'élasticité, résistance à la rupture, résilience, ténacité…

Contrainte faible mais continue (et à haute température) ⇨ rupture par fluage

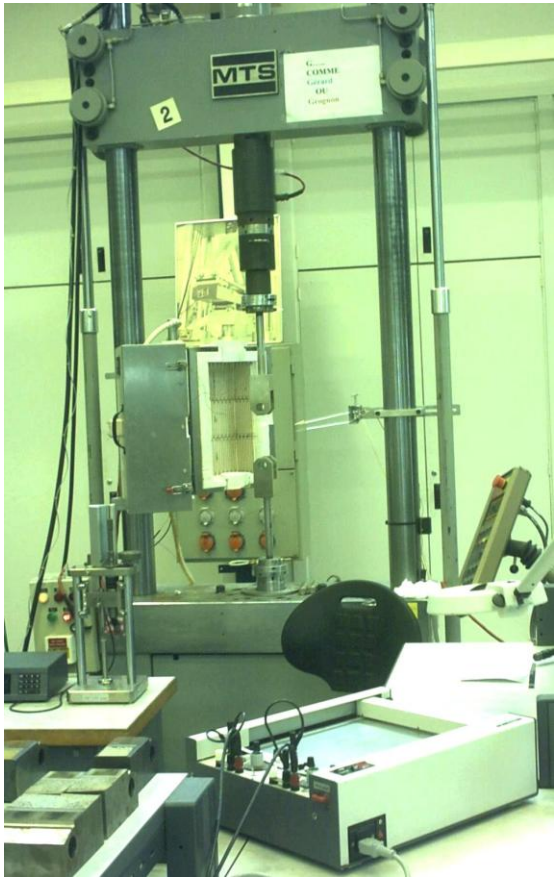
Contrainte faible mais périodique ⇨ rupture par fatigue

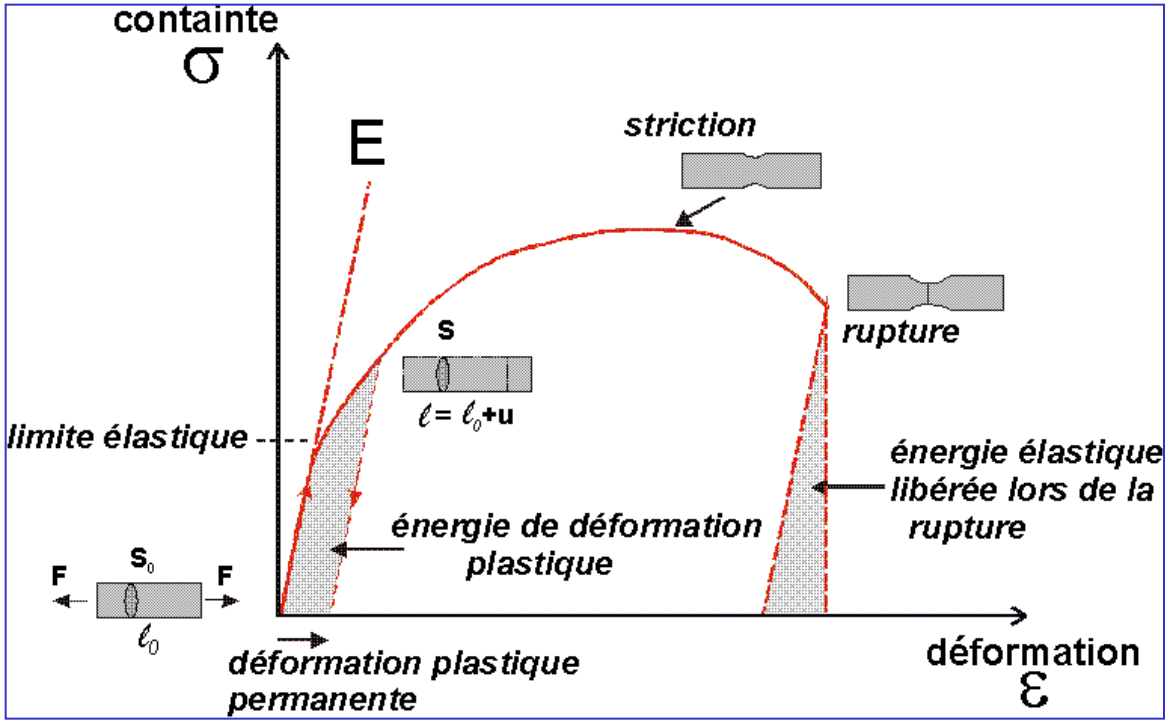
Contrainte + milieu ⇨ corrosion sous contrainte

Caractéristiques mécaniques : brefs rappels

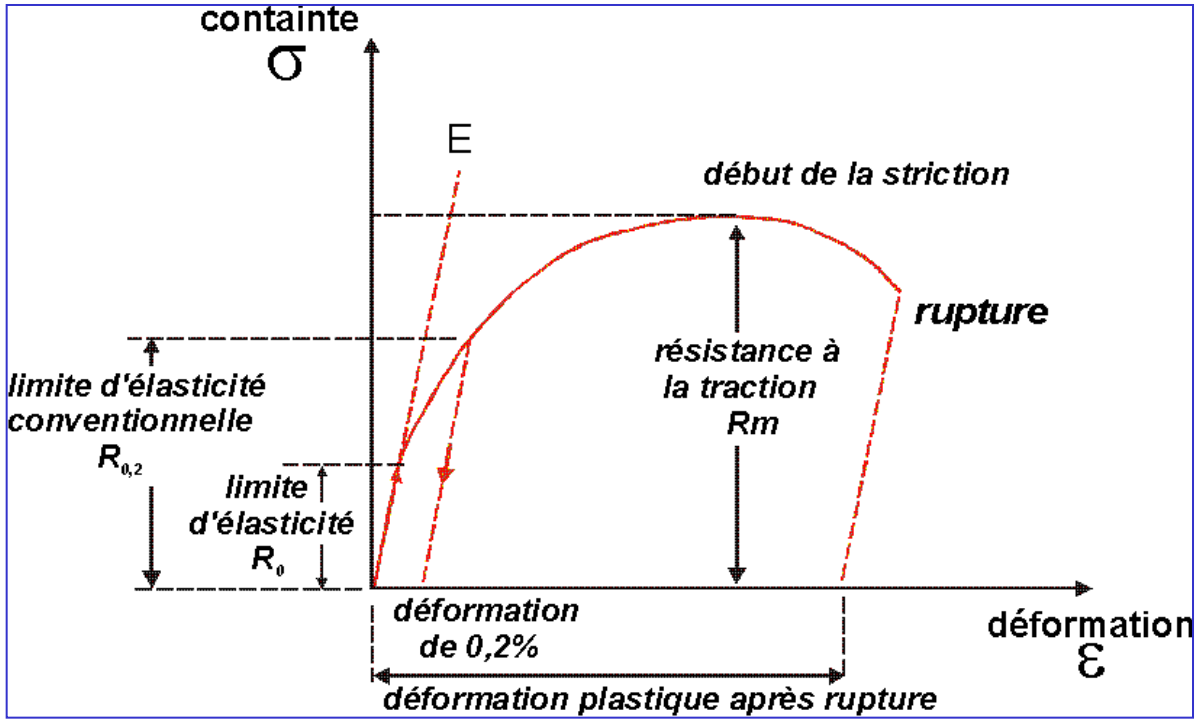
- Caractéristiques mécaniques classiques

Essai de traction sur éprouvette normalisée





Courbe de traction



R_0 : limite d'élasticité

$Rp_{0,2}$: limite d'élasticité conventionnelle

E : module de Young

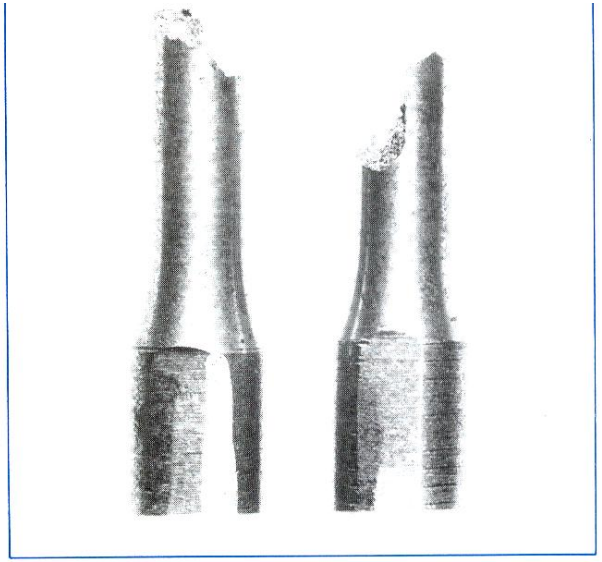
R_m : résistance à la traction

$A_R(\%)$: allongement plastique après rupture

$$A_R(\%)=100\ (l_{rup} - l_0)/l_0$$

Z : coefficient de striction

$$Z=100(S_0 - S_{rup})/S_0$$



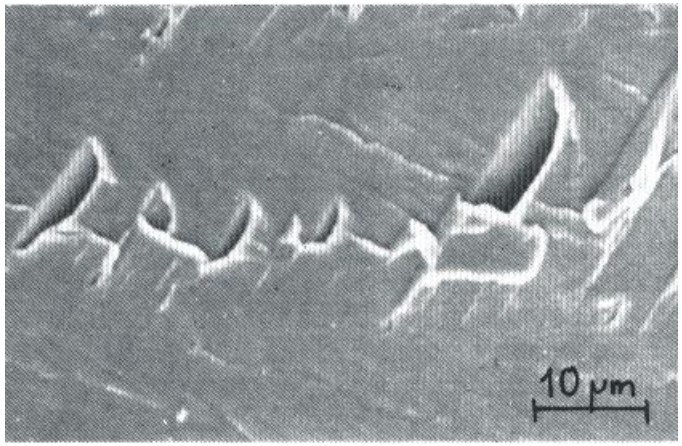
Rupture à caractère fragile d'une éprouvette en fonte grise Ft 20 sollicitée en torsion ; on notera l'inclinaison à 45° de la cassure.

Limite d'élasticité : contrainte à partir de laquelle les dislocations se déplacent dans le matériau

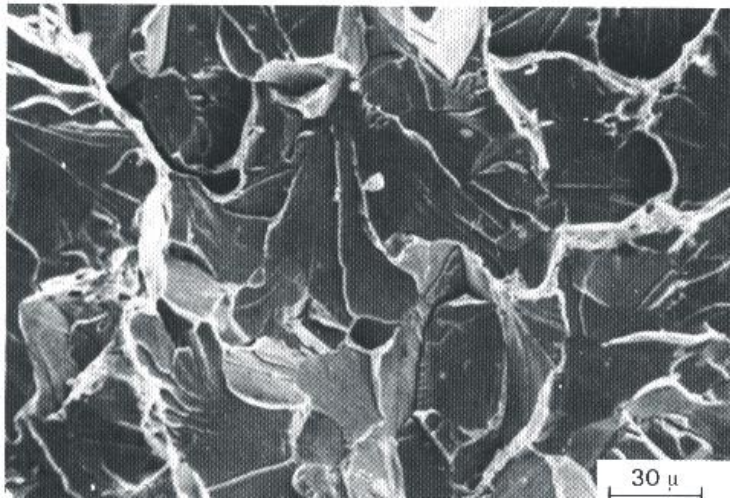
Faciès des différentes formes de rupture

1) Rupture par clivage

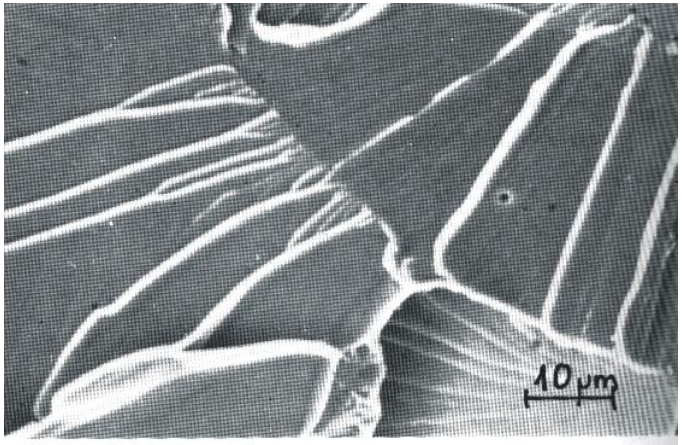
selon des plans cristallographiques denses



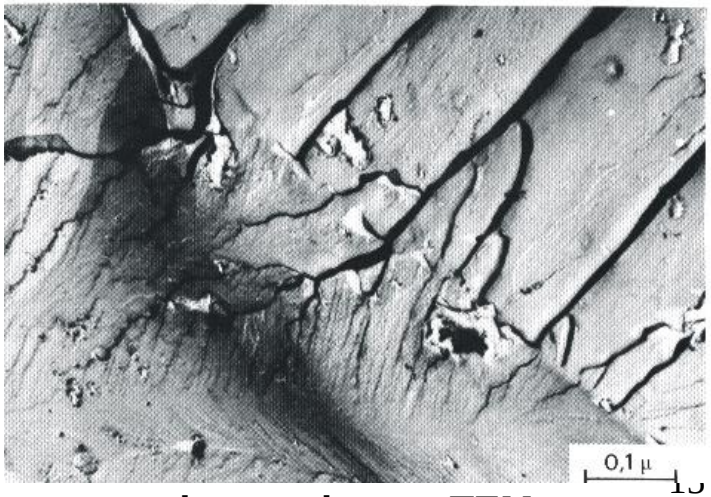
rupture fragile à clivages (laguettes)(MEB)



observation en MEB



rupture fragile à clivages (franchissement d'un joint)(MEB)

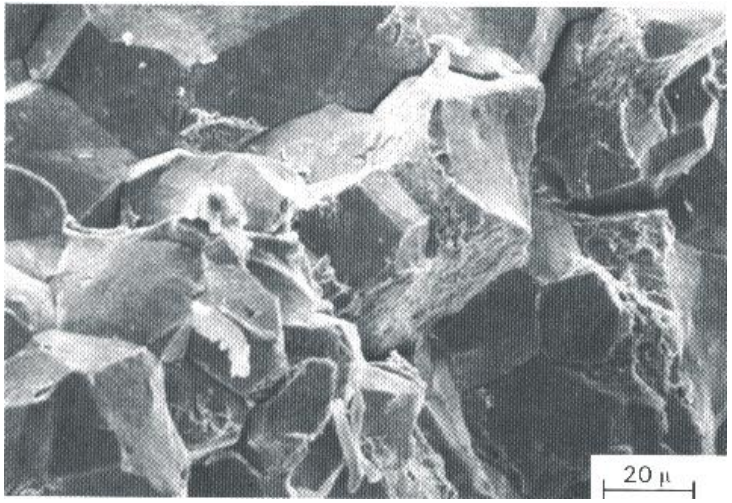


observation en TEM

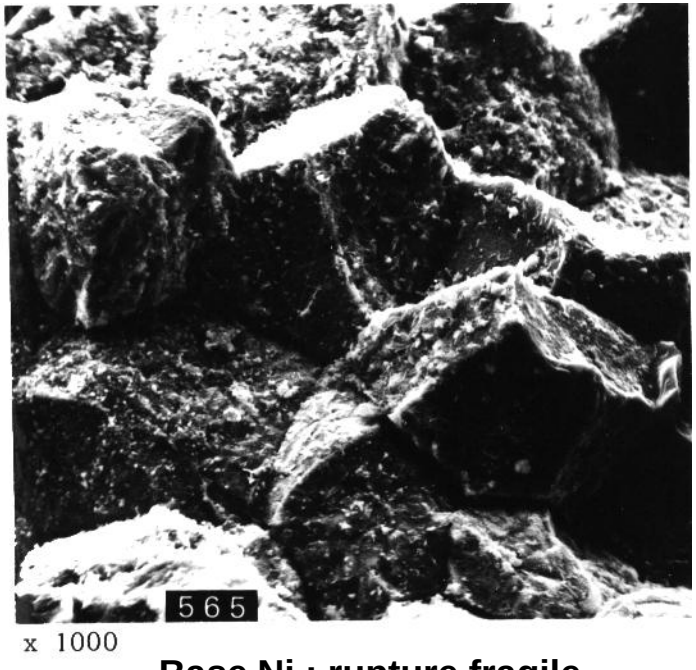
2) la rupture intergranulaire

par décohésion intergranulaire

fragilité des joints de grains
- phase précipitée
- pollution
- ségrégation de soluté
(fragilité de revenu des aciers)



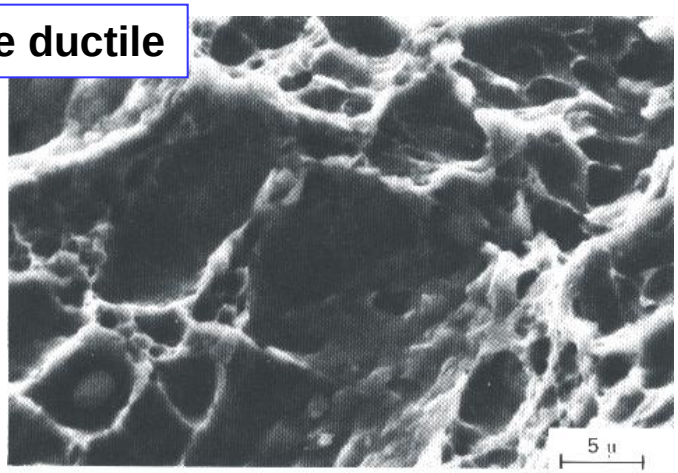
observation en MEB



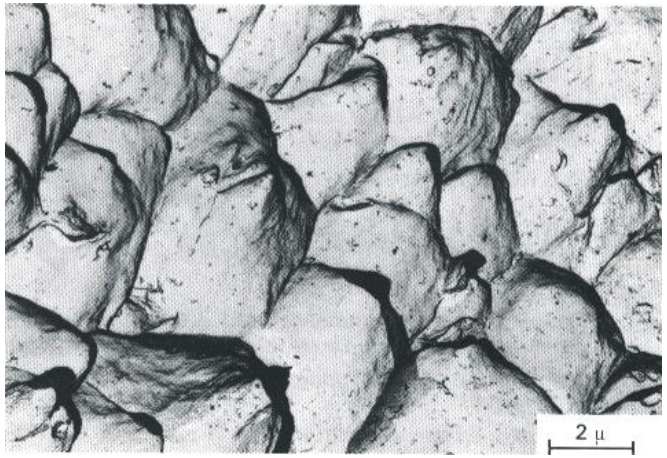
Base Ni : rupture fragile par pollution chimique intergranulaire

observation en TEM

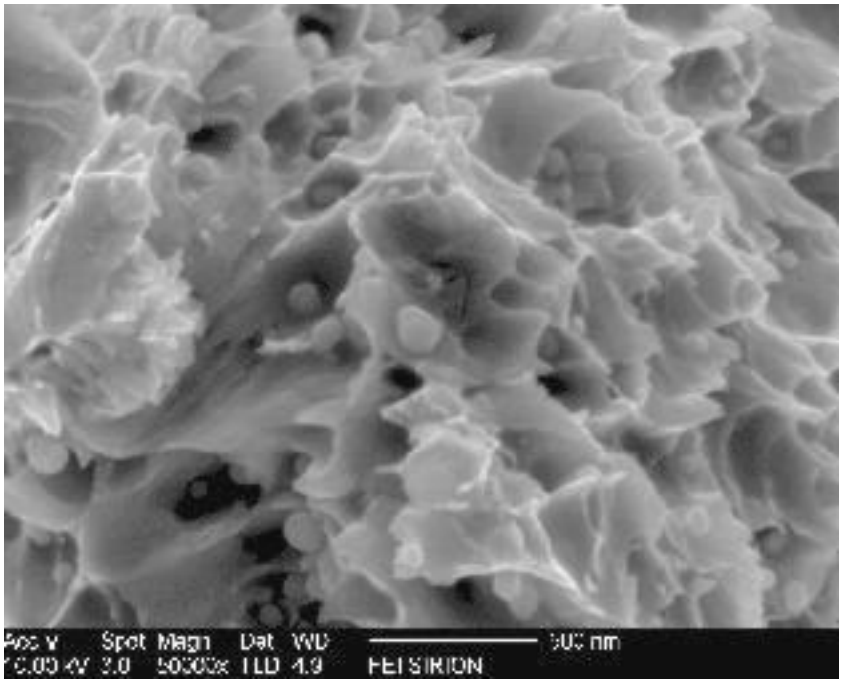
3) Rupture ductile

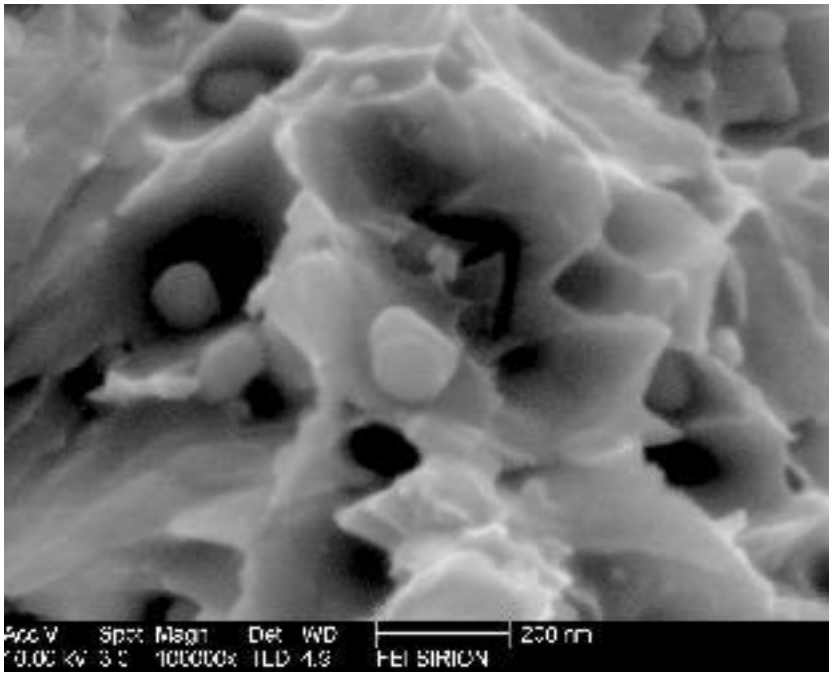


observation en MEB



observation en TEM



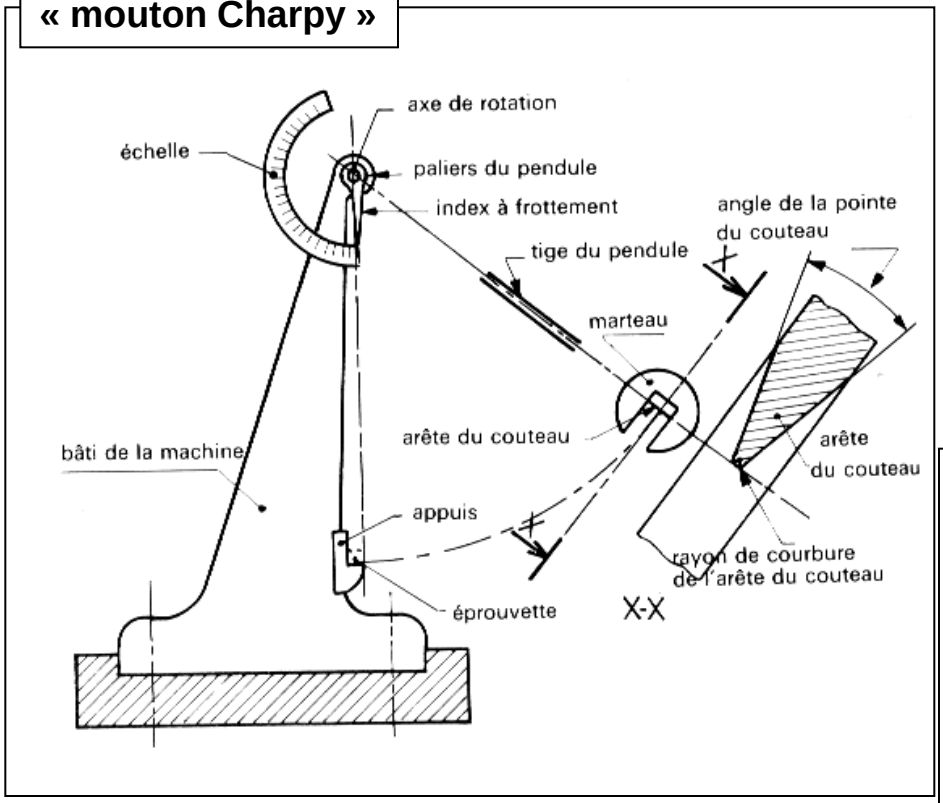


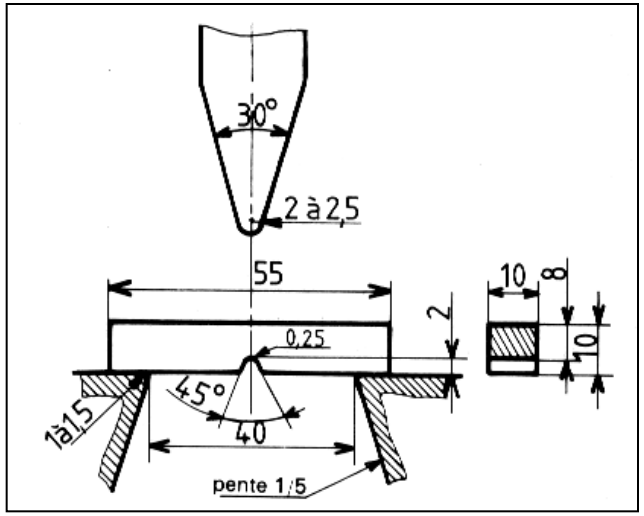
Observations en MEB d'une rupture ductile dans un TDNi
(*Ni avec une dispersion de fines particules de ThO2*)

Autres caractéristiques :

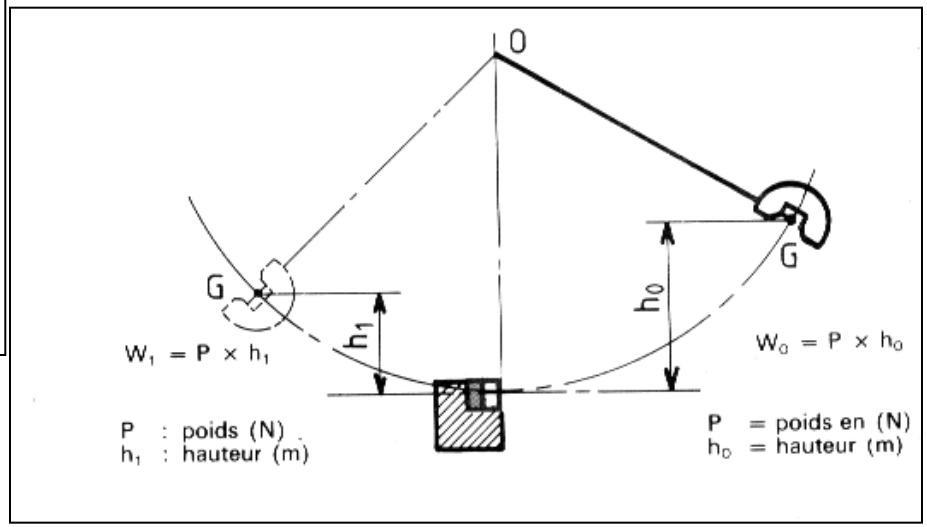
1 - La résilience (résistance au choc)

« mouton Charpy »





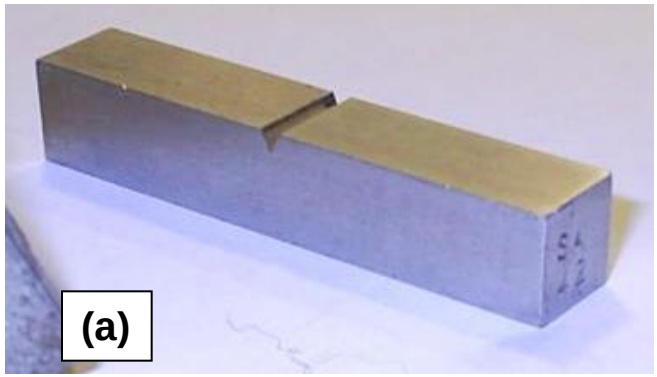
éprouvette Charpy normalisée
(avec entaille en V)

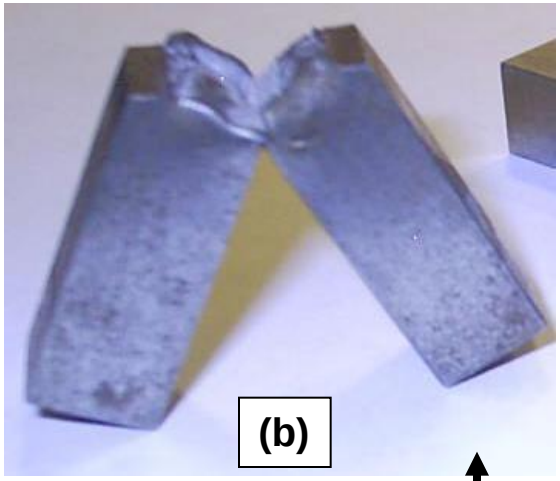


l'énergie absorbée lors du choc est égale à
$W_0 - W_1$

résilience :
énergie absorbée par unité de surface

$KCV\ (daJ/cm^2) = (W_0 - W_1)/S$



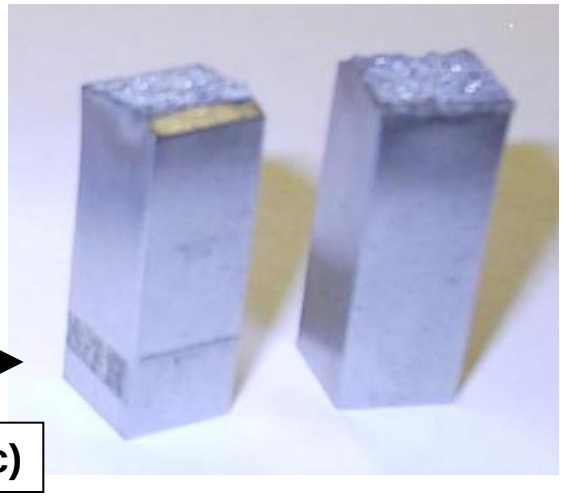


éprouvette Charpy *(avec entaille en V)*

(a) avant le choc

(b) déformée mais non rompue (forte résilience)

(c) cassée (résilience faible)



Caractérise le comportement « fragile » (faible résilience) ou « ductile » (résilience élevée)

2 - La ténacité (résistance au déchirement ou à la propagation de fissure)

L'état mécanique à l'extrémité d'une fissure peut être défini par un facteur K :

qui dépend de :
- **la longueur a de la fissure**
- **la contrainte appliquée σ**
- **un paramètre de forme lié à la structure en fond de fissure**

l'expression la plus simple : $$K = \sigma\sqrt{\pi a}$$

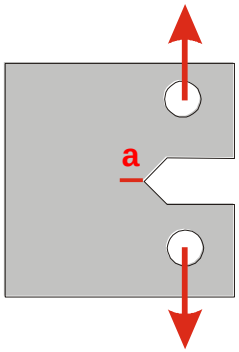
Il y a propagation de la fissure si $K \geq K_C$ → ***K_C : ténacité***

$$K_C = \sqrt{EG_C}$$

énergie absorbée pour créer une fissure

module élastique (Young)

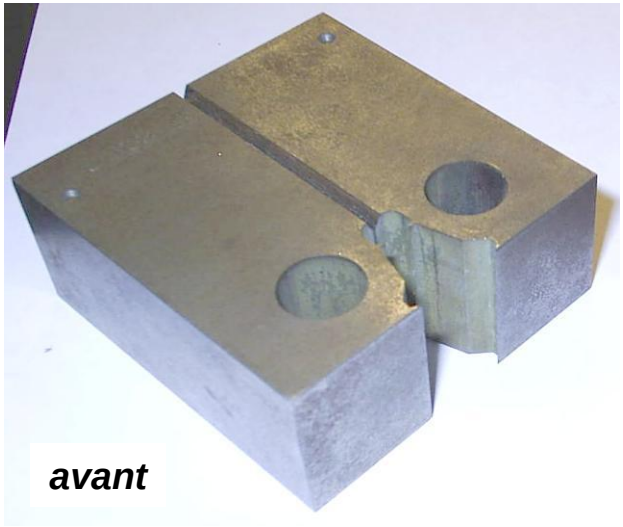
détermination de K_c et G_c :

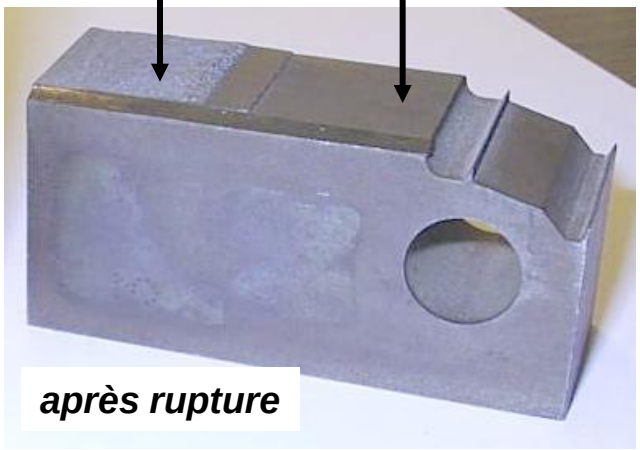


éprouvette fissurée (longueur a)

- σ_c (rupture) $\quad K_c = \sigma_c\sqrt{\pi a}$

- $G_c = K_c^2/E$





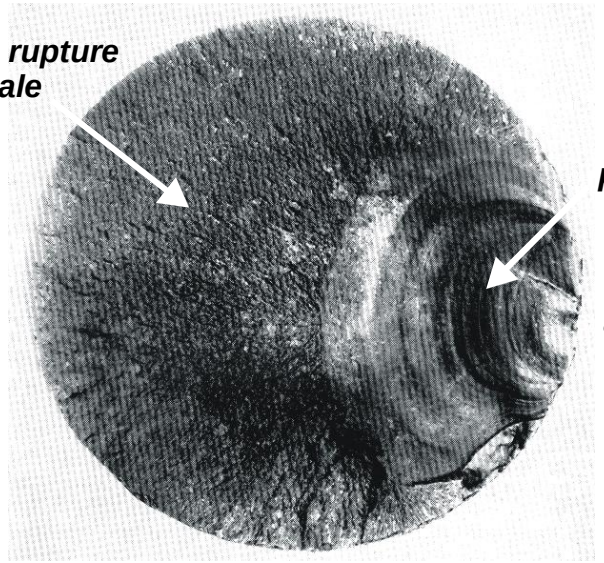
énergie absorbée pour créer une fissure

matériau	G_c (kJ/m^2)	K_c (MPa$\sqrt{m}$)
métaux purs ductiles	100-1000	100-350
acier à rotors	220-240	204-214
acier à haute résistance	15-118	50-154
acier doux	100	140
alliages de Ti (TA6V)	26-114	55-155
acier au carbone	13	51
fonte	0,2-3	6-20
Be	0,08	4
béton	0,03	0,2
verre	0,01	0,7-0,8

Ruptures par fissuration progressive

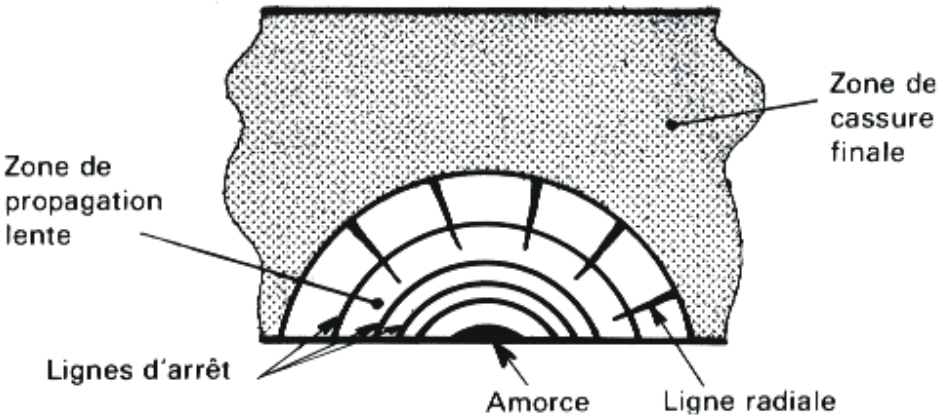
1 - Rupture de fatigue

3 stades :
1 - stade d'amorçage ou d'initiation
2 - stade de propagation lente
3 - stade de rupture finale



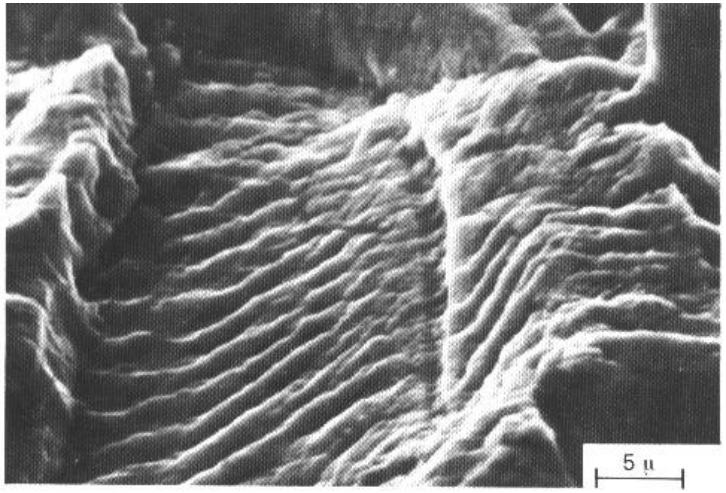
rupture de fatigue d'unetige de piston de 25cm de diamètre

échelle macroscopique :
- ***une zone lisse à grains fins (région de propagation par fatigue, souvent transgranulaire)***
- ***une zone ductile, semi-fragile ou fragile (région de rupture instantanée finale)***

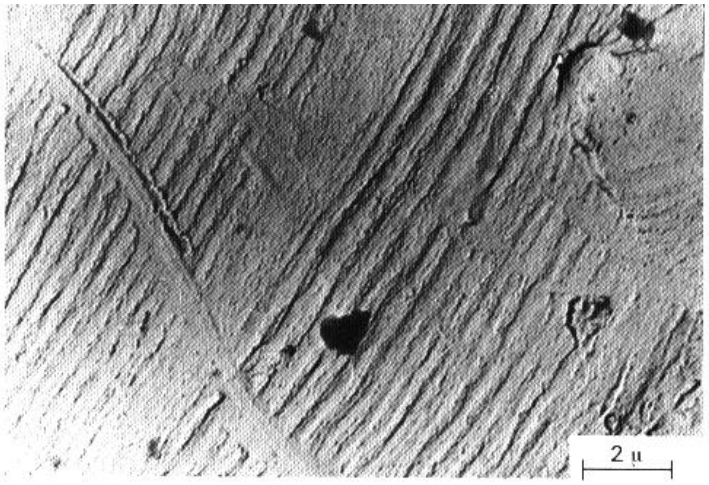


échelle microscopique :

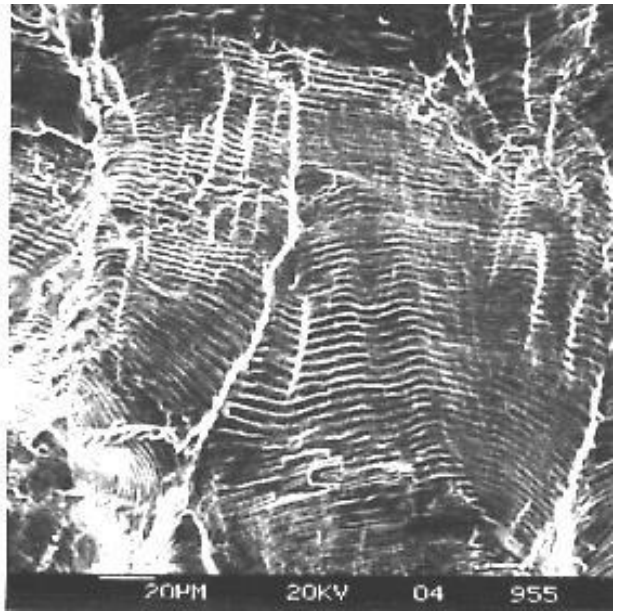
apparition de stries de fatigue, correspondant aux cycles de sollicitation (consolidation en extrémité de fissure à chaque arrêt de la contrainte)

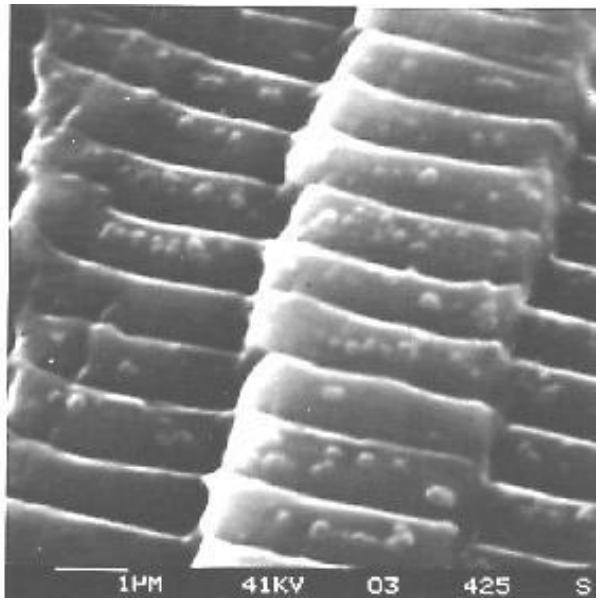


observations en MEB



observations en TEM

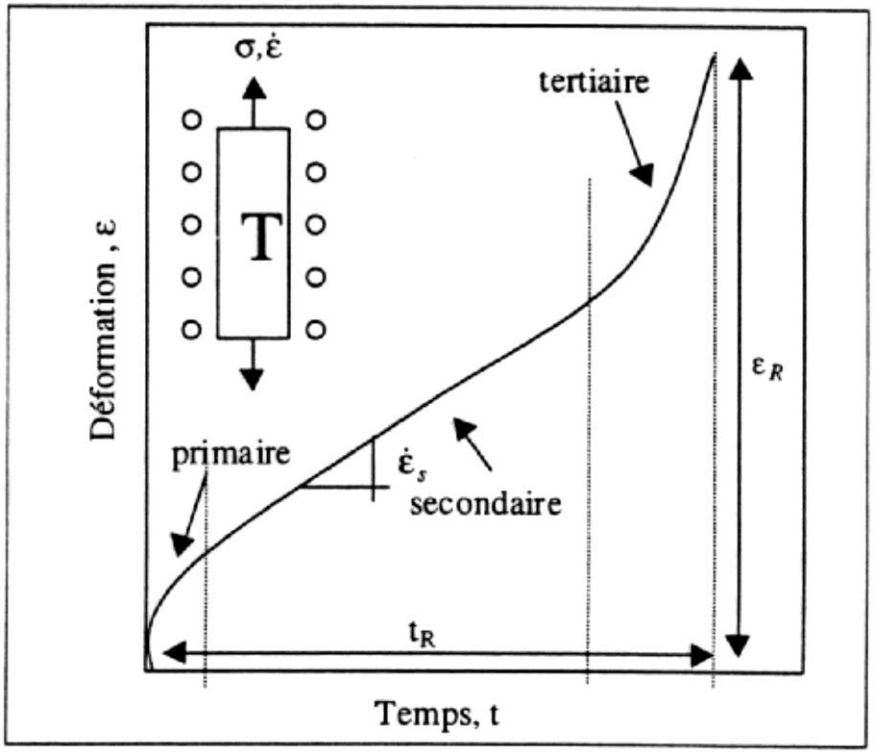




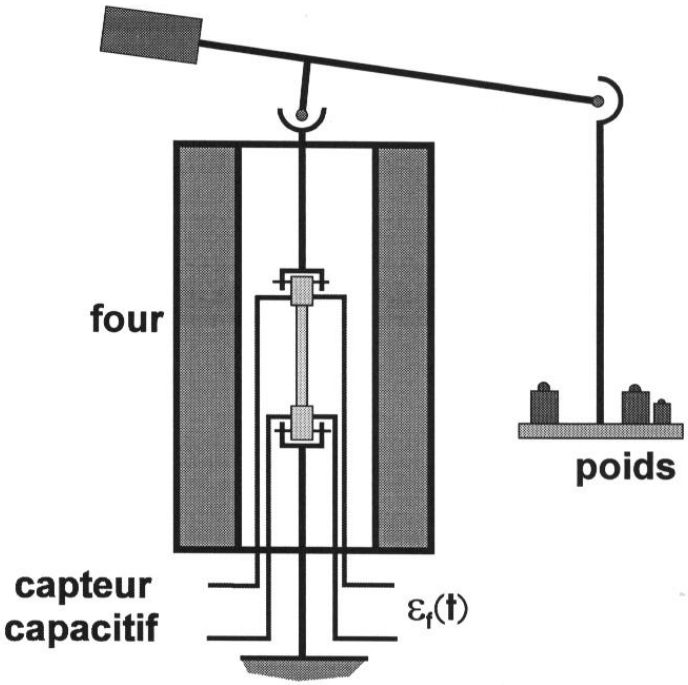
2 - Rupture de fluage

faible contrainte appliquée à une température de service élevée (>500°C) et pendant des durées très élevées (plusieurs milliers d'heures)

contrainte ➔ faible déformation ➔ diffusion (lacunaires) ➔ microcavités ➔ coalescence des microcavités ➔ fissures ➔ rupture



Courbe caractéristique du fluage



(mesure l'alongement de l'éprouvette)
sensibilité : de 0,1 à 0,01 μm
essai de fluage

Ib - La corrosion sous contrainte (ou « sous tension »

SCC : Stress Corrosion Cracking
IASCC : Irradiation Assisted SCC

Corrosion généralement intercristalline qui se produit lorsqu'il y a <u>simultanément</u> :

- **présence de contraintes appliquées** → **- externes**, **- de soudage**, **- traitement thermique...**
- **présence d 'un milieu corrosif** → **- gaz**, **- électrolyte**, **- sels fondus**, **- métal liquide…**

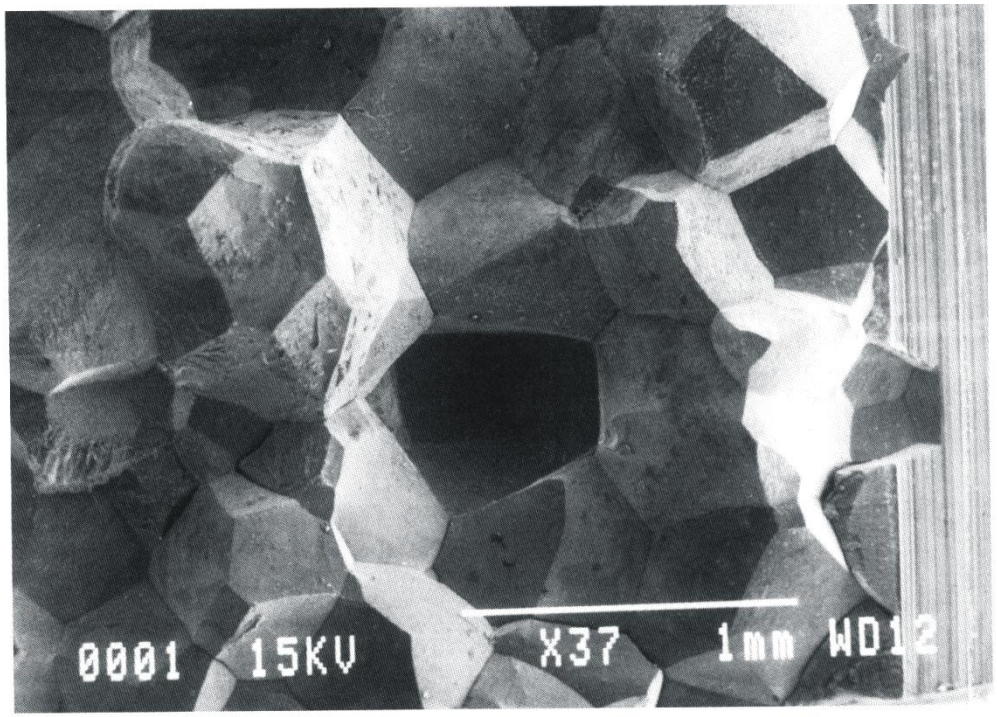
et qui séparément n'auraient pas d'action…

touche essentiellement les aciers inoxydables austénitiques, les alliages de Ni peu les ferritiques…

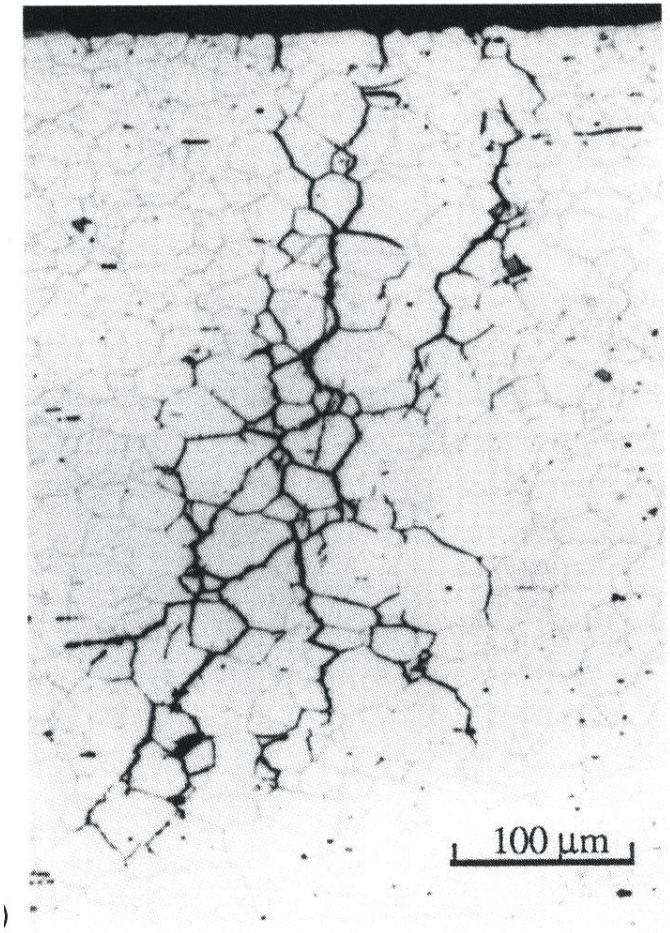
Il n'y a pas de modèles parfaitement satisfaisant !

- **dépassivation mécanique par déformation plastique**
- **dissolution anodique du métal dépassivé**
- **fragilisation par l'hydrogène**

➔ ***fissuration intergranulaire ou transgranulaire***



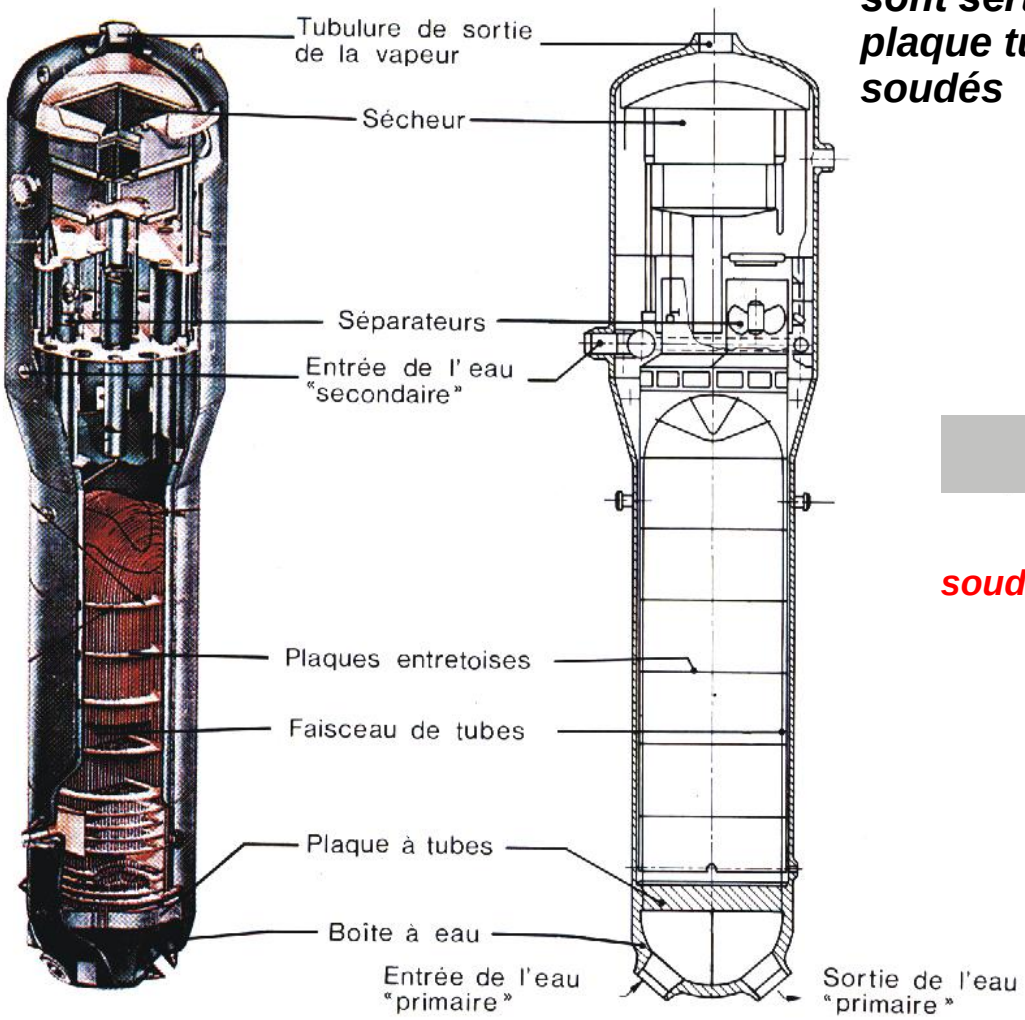
Surface de rupture fragile observée par microscopie électronique à balayage



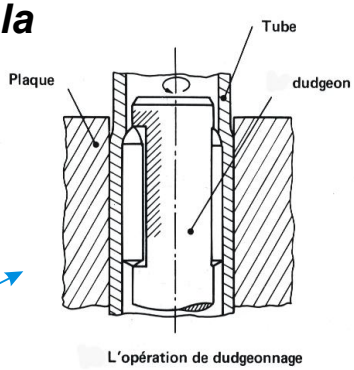
micrographie optique

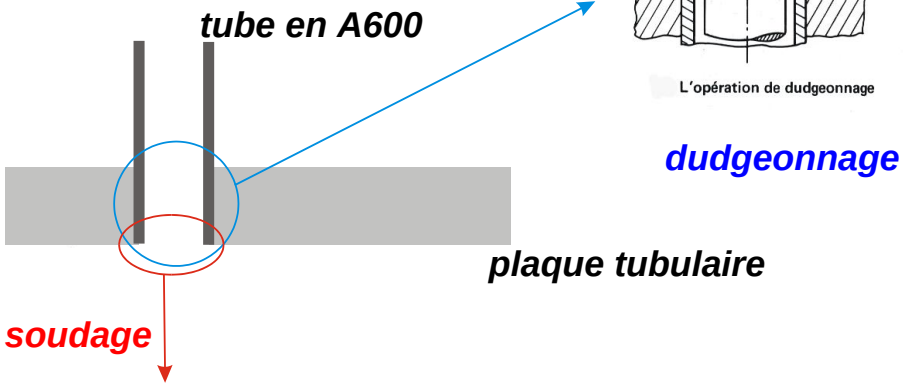
Fissuration intergranulaire par corrosion sous contrainte d'un acier austénitique (Z2 NCDU 25-20) en milieu caustique à 200°C

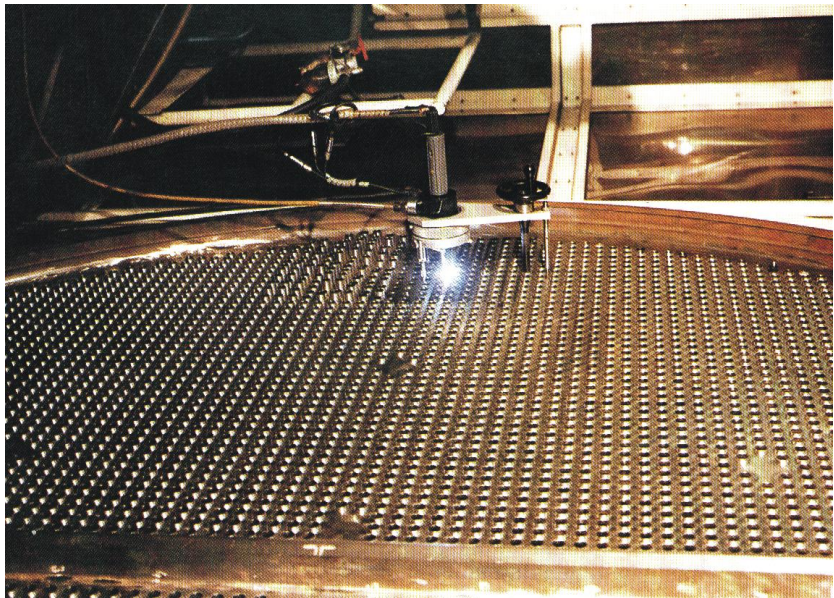
Un exemple de corrosion sous contrainte : les tubes des GV



Les tubes (où circule l'eau primaire) sont sertis ("dudgeonnés") dans la plaque tubulaire (en 16MND5) et soudés

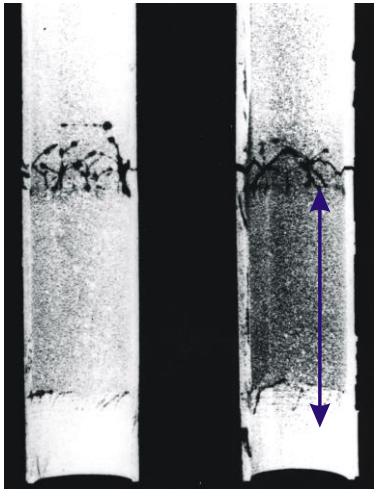




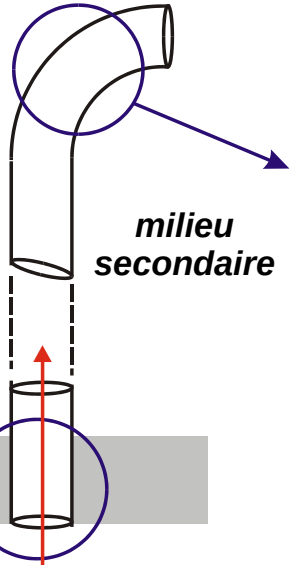


Le parc actuel représente 16.000 km de tubes !

zones sensibles à la corrosion sous contrainte :
- zones dudgeonnées
- cintres

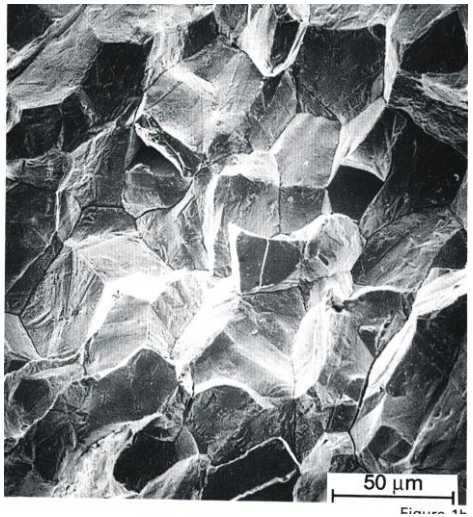


zone dudgeonnée



cintre

mise en évidence des contraintes résiduelles en peau externe de tubes après essais de 24h dans du MgCl2 bouillant à 155°C



Observation en MEB (intérieur de la fissure)

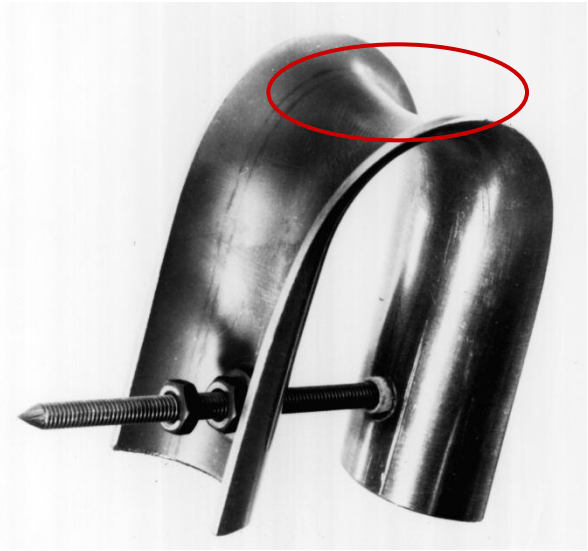
micrographie optique (fissures intergranulaires)

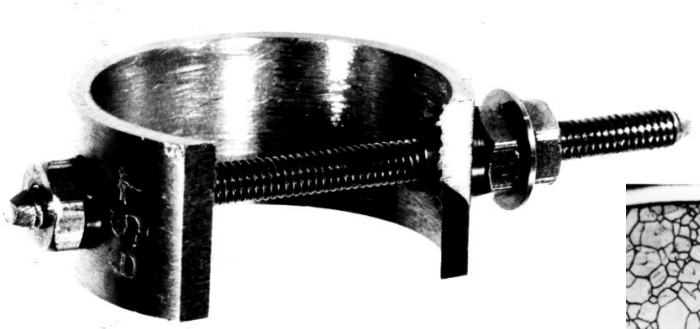
Fissuration par corrosion sous contrainte de l'alliage 600 en milieu primaire (eau + lithine + acide borique + hydrogène dissous, 300°C, 155 bar)

Comment étudier en laboratoire la corrosion sous contrainte ?

Eprouvettes de test de la corrosion sous contrainte

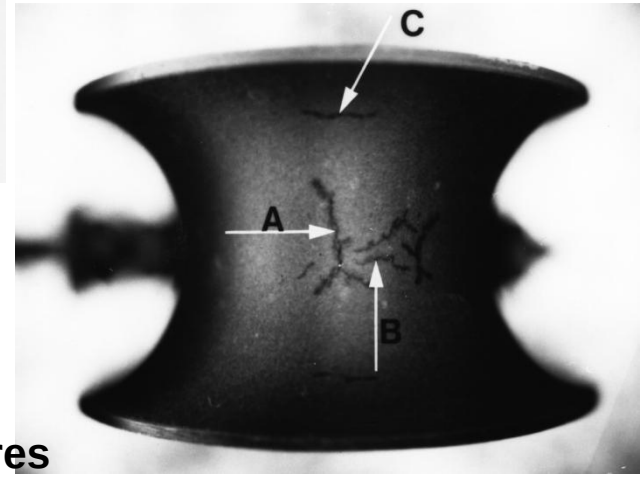
concentration de contraintes résiduelles



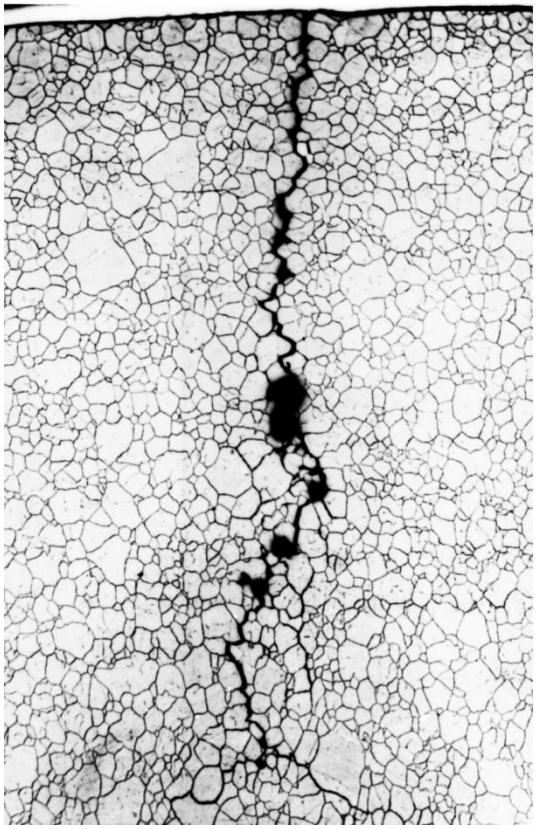


C-ring

selle-de-cheval



après essai :
apparition de fissures

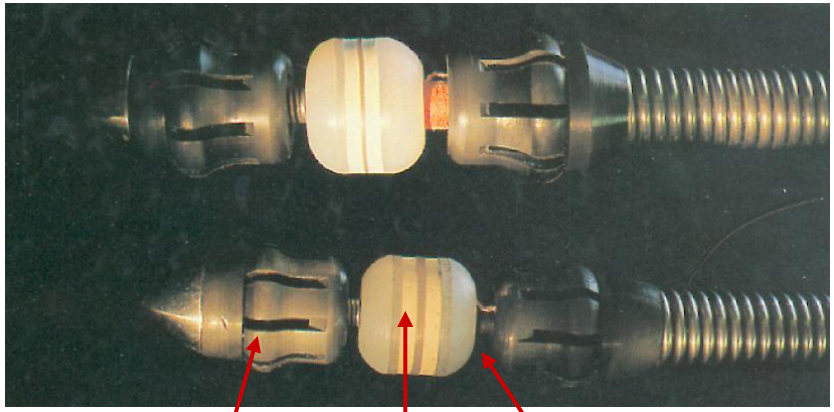


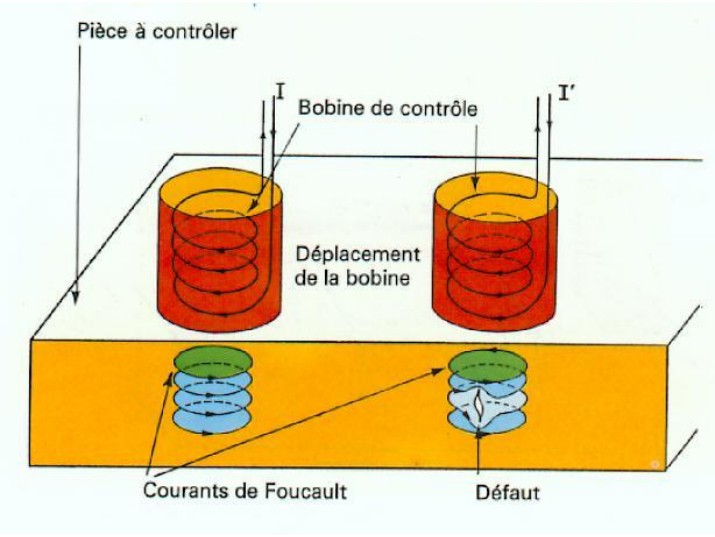
Comment détecter la présence de fissures dans les tubes de GV ?

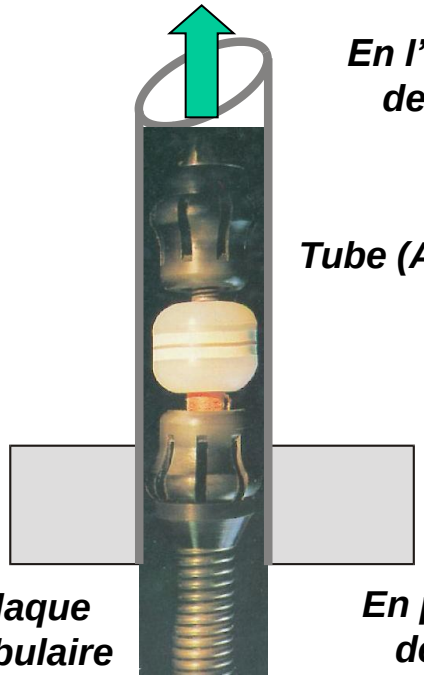
Utilisation des courants de Foucault (courants induits) (méthode CEA)

Une sonde constituée par une bobine alimentée en courant haute fréquence induit un courant dans la pièce (courant de Foucault), qui à son tour interfère avec la bobine.
La présence de défauts dans la pièce modifie les courants induits et donc le signal résultant.

Sonde utilisée pour la détection des défauts dans les tubes des GV





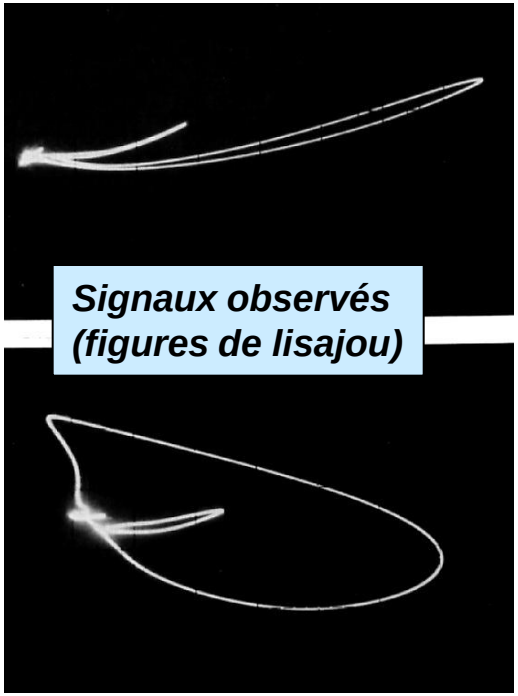


En l'absence de défaut

Tube (A600)

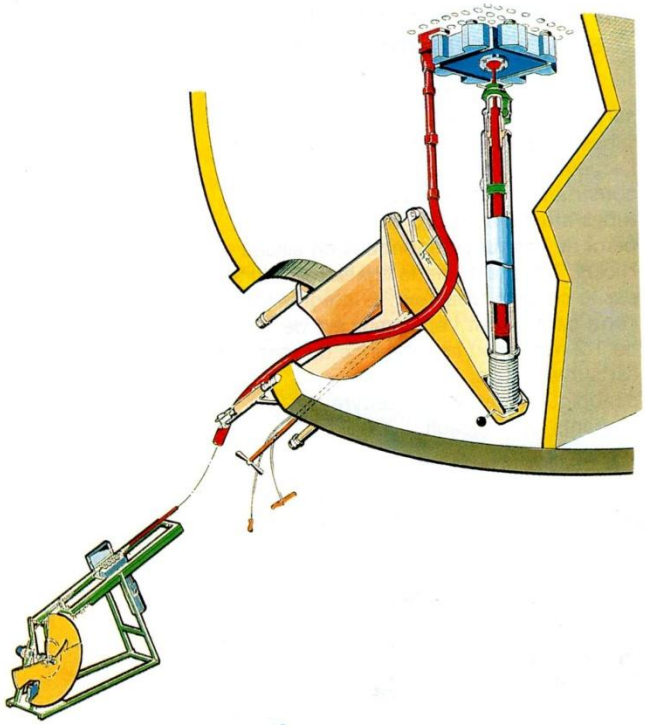
Plaque tubulaire

En présence de défaut



Contrôle des tubes

Utilisation d'une « araignée » placée manuellement



Opération automatisée par l'emploi d'un robot (MORPION) piloté de l'extérieur.

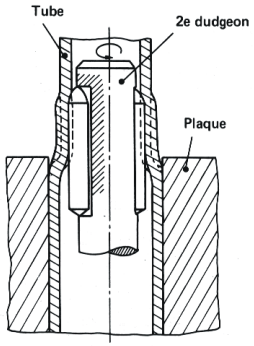
tubes non fissurés

Les remèdes...

- traitement thermique des cintres

un traitement thermique 12h 700°C permet de réduire le niveau des contraintes résiduelles (<50 Mpa)

- modifier le dudgeonnage



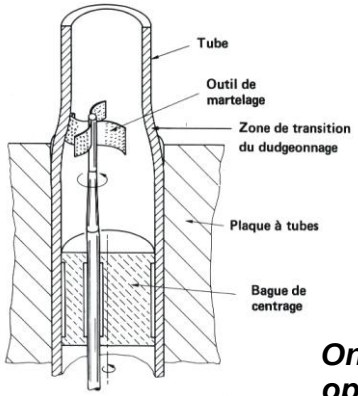
Le Dudgeonnage Amélioré Mécaniquement

Le dudgeonnage amélioré mécaniquement (DAM) permet de réduire les contraintes de tension en surface externe du tube
En face interne il modifie la distribution des contraintes limitant les risques de fissuration circonférentielles

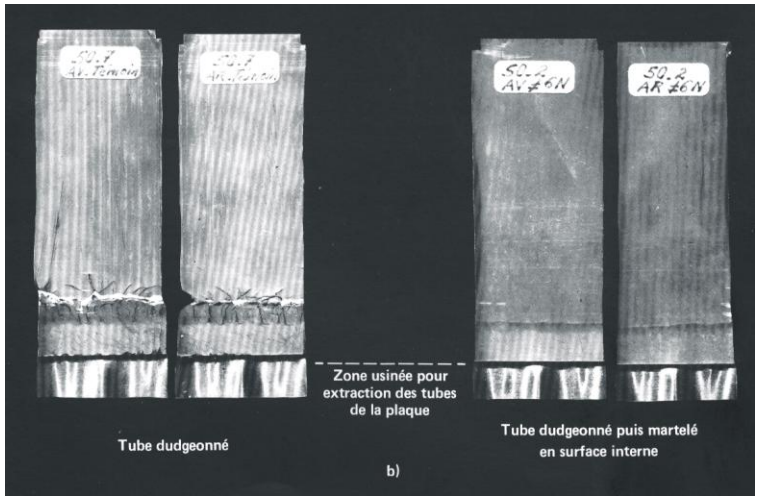
mais insuffisant pour éliminer tout risque de corrosion

- détensionner le tube après dudgeonnage

(introduire de contraintes de compression)



- grenaillage (ou micromartelage)



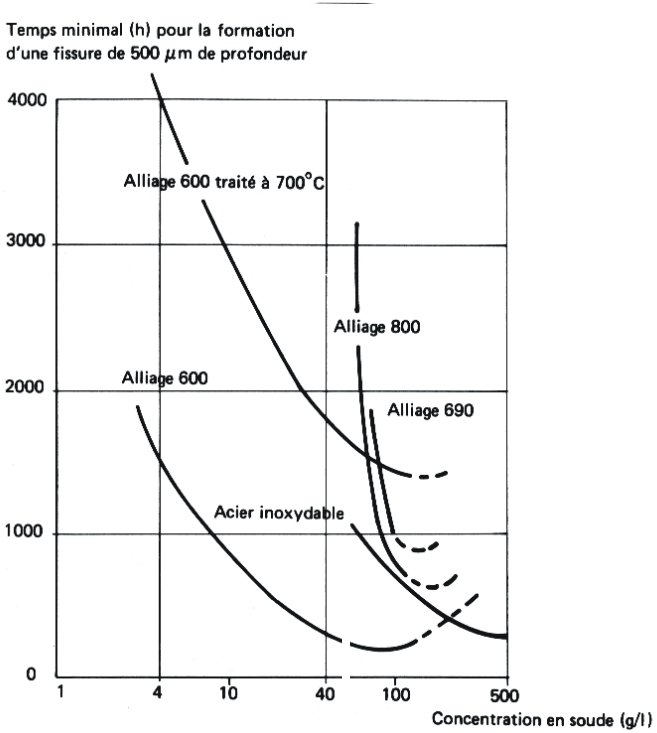
On introduit une petite déformation diamétralement opposée à la zone de contraintes, d'où une relaxation locale, à l'aide d'une brosse tournante portant des billes de grenaillage.

- changer l'alliage

alliage 690 sur les REP français, A800 sur les REP allemands

	Cr	Ni	Fe
A600 (NC15Fe)	16	74	8
A690 (NC30Fe)	29	60	9
A800 (Z2NC34-22)	21	33	43

temps minimum (h) pour la formation d'une fissure de 500 µm de profondeur en fonction de la concentration en soude pour différentes nuances d'alliage



tubes fissurés

- on les bouche
- on change le GV...

Ic – Les effets d'irradiation

Dans un réacteur nucléaire, les matériaux sont soumis à des rayonnements de haute énergie : radioactivité α, β, γ, neutrons, produits de fission…

1 – Rayonnements α

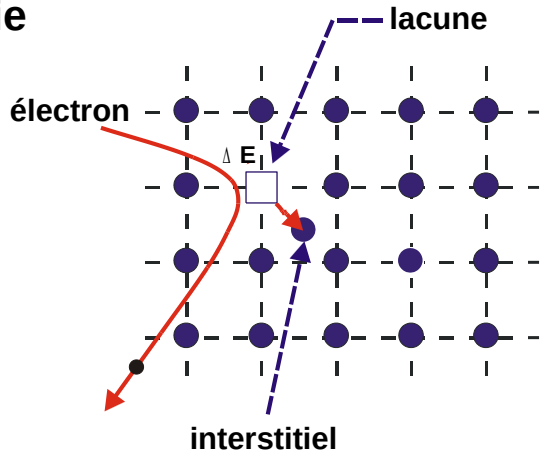
- **Proviennent essentiellement d'une réaction secondaire d'activation neutronique**
- **Apparition par coalescence de bulles de gaz (hélium) d'où gonflement**

2 – Rayonnements β

Par chocs élastiques, cèdent une fraction ΔE de leur énergie aux atomes, pouvant engendrer des défauts ponctuels (paires de Frankel)

$$\Delta E \leq 4E_0 \frac{mM}{(m+M)^2}$$

atome de fer
β de 100 keV
→ ΔE<4 eV

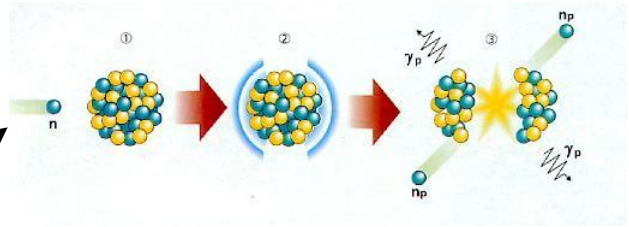


3 – Rayonnements γ

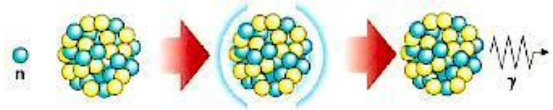
- **échauffement**
- **radiolyse de l'eau (décomposition avec émission d'hydrogène)**
- **ionisation…**

4 – Les neutrons

a – Absorption par un noyau



fission



transmutation, activation

- Absorption dans les barres de contrôle

$$\left\{\begin{array}{l} {}^{113}Cd \rightarrow {}^{114}Cd \\ {}^{107}Ag \rightarrow {}^{108}Cd \\ {}^{115}In \rightarrow {}^{116}Sn \end{array}\right. \rightarrow \textit{gonflement}$$

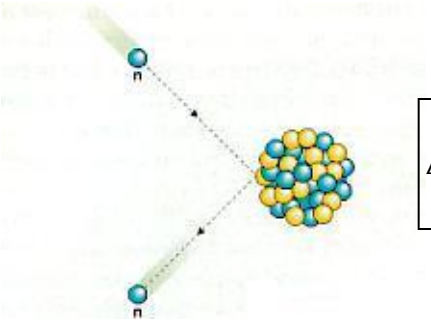
- transmutation → radioactivité

$${}^{59}Ni\ (n, \alpha)\ {}^{56}Fe \rightarrow$$ ***bulle d'hélium, gonflement***

$${}^{59}Co\ (n, \gamma)\ {}^{60}Co$$
$${}^{62}Ni\ (n, \beta)\ {}^{63}Ni$$

augmentation de la dosimétrie dans les GV par arrachement de particules métalliques et activation dans le cœur

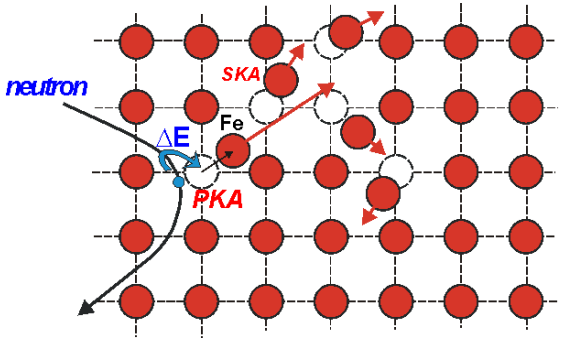
b – Diffusion élastique par un noyau



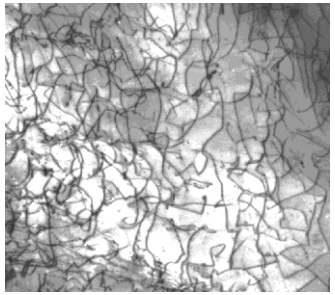
$$\Delta E \leq 4E_0 \frac{mM}{(m+M)^2}$$

atome de fer
n de 1 MeV
→ ΔE<70 keV

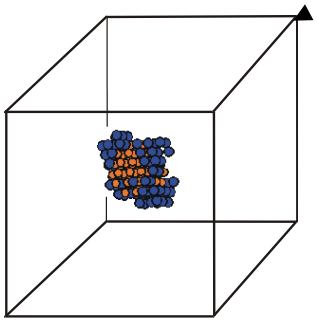
Cascade de déplacements atomiques

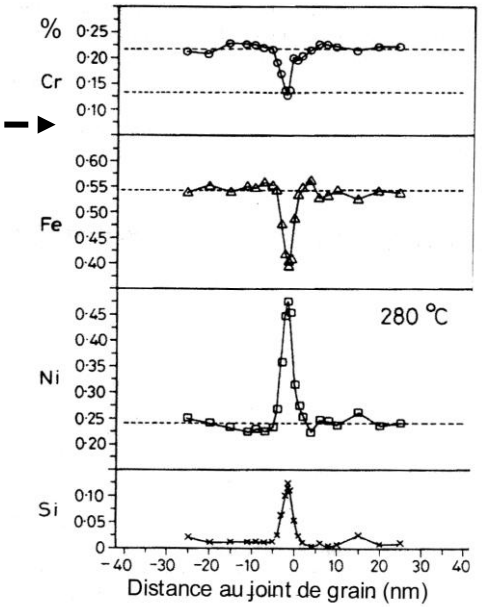


génération de défauts durcissants



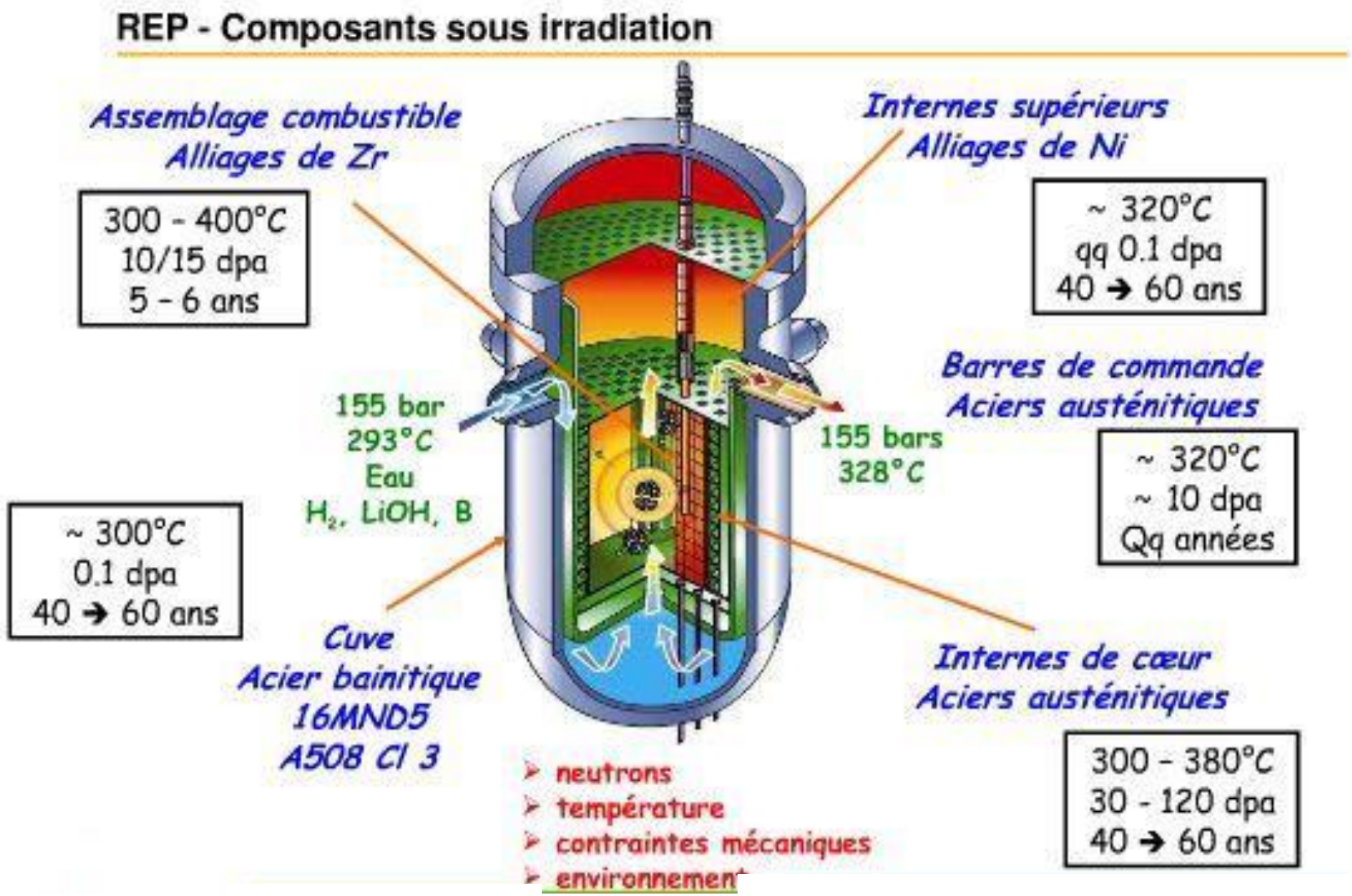
- *dislocations*
- *boucles lacunaires et interstitielles*
- *précipitations*
- *amas d'atomes de soluté*
- *ségrégations intercristalline*
- *…*





- **vieillissement**
- **fragilisation**
- **corrosion accélérée…**

Cuve, structures internes…

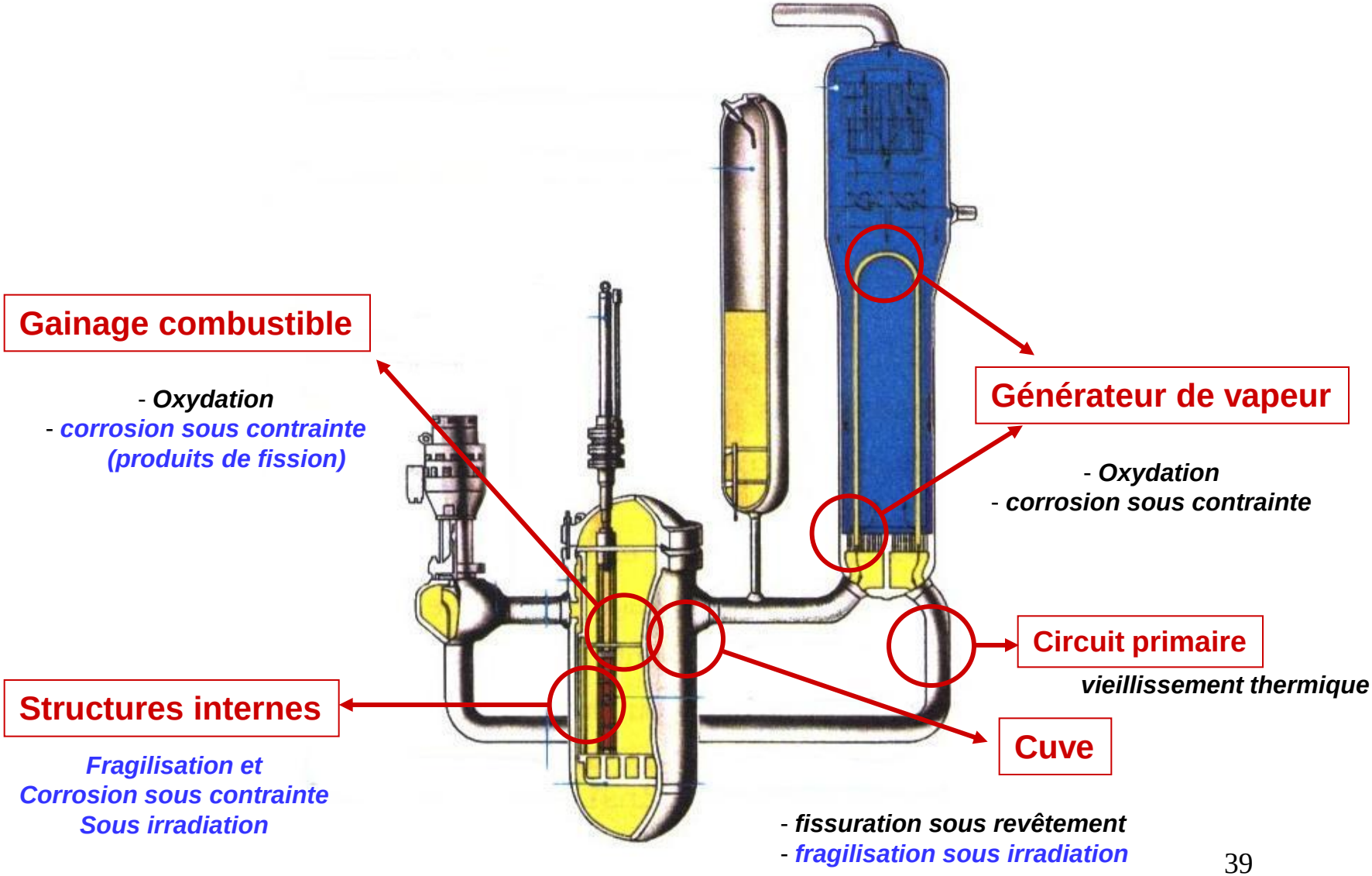


Les effets d'irradiation sont exprimés en « dpa » : « déplacements par atome »

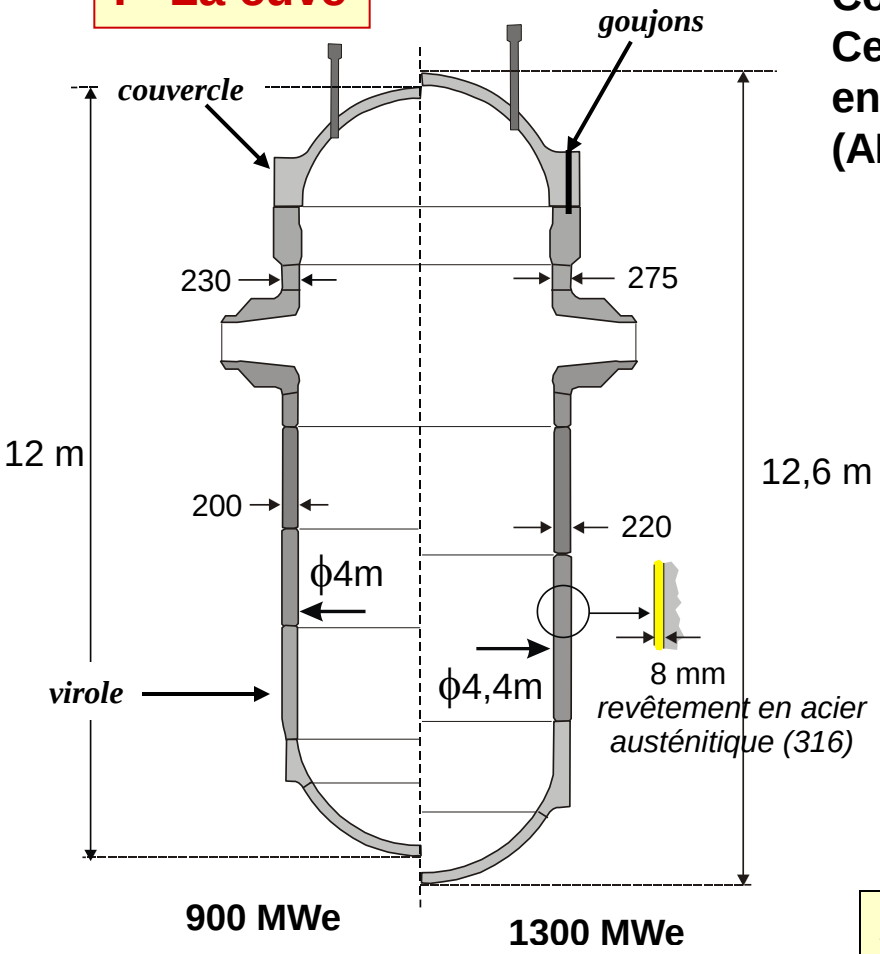
10 dpa signifie que chaque atome de la structure aura été déplacé 10 fois pendant sa durée de vie

II - Etudes de quelques problèmes de matériaux observés dans les réacteurs nucléaires à eau pressurisée (PWR)

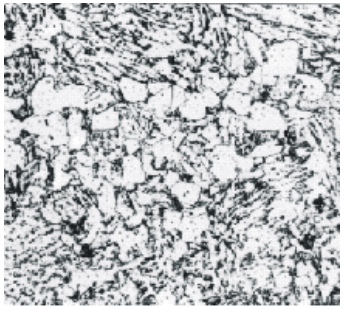
Quels sont les principaux sujets de préoccupation concernant les réacteurs à eau sous pression ?



I - La cuve



Constituée par des viroles soudées entre elles
Ces viroles sont réalisées à partir de lingots en acier ferritique faiblement allié
(AFNOR : 16MND5, Européenne : 16MnNiMo-5)



Coupe métallographique de l'acier de cuve 16MND5 (ASTM A508)

structure bainitique

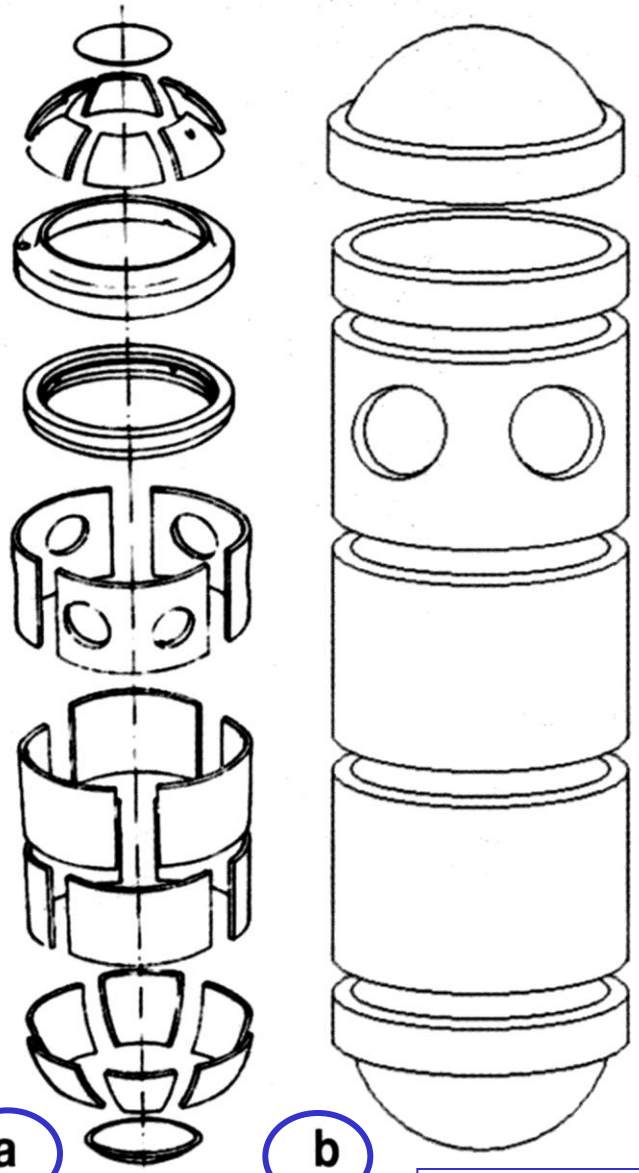
éléments d'addition						impuretés	
Mo	Mn	Ni	Cr	Si	C	P	Cu
0,50	1,4	0,60	0,15	0,30	0,15	0,008	0,08

- **bonne conductibilité thermique (3x inox)**
- **très bonne soudabilité**
- **bon comportement sous irradiation**
- **coût faible**

Poids :	900MW	1300MW
- cuve seule	260t	318t
- couvercle	54t	76t
- goujons et écrous	15,4t	24t

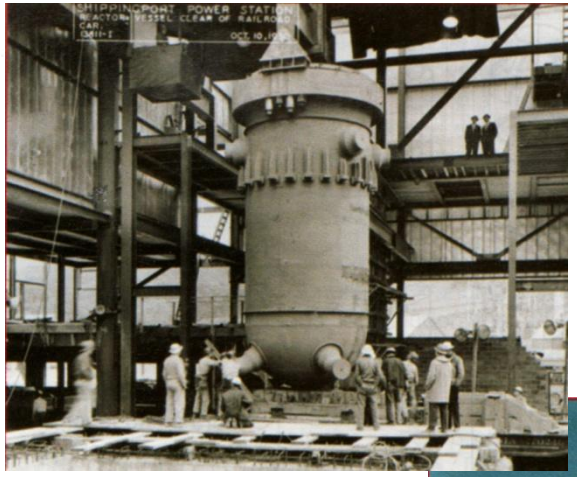
Pour éviter la corrosion, elle est revêtue intérieurement de 2 dépôts en acier inoxydable austénitique de 8mm d'épaisseur (dépôt par fusion)
1ère couche : 24%Cr – 12%Ni
2ème couche : 304L – 316L (18%Cr – 12%Ni)

Composition de l'acier 316 : 12%Ni-18%Cr-2%Mo



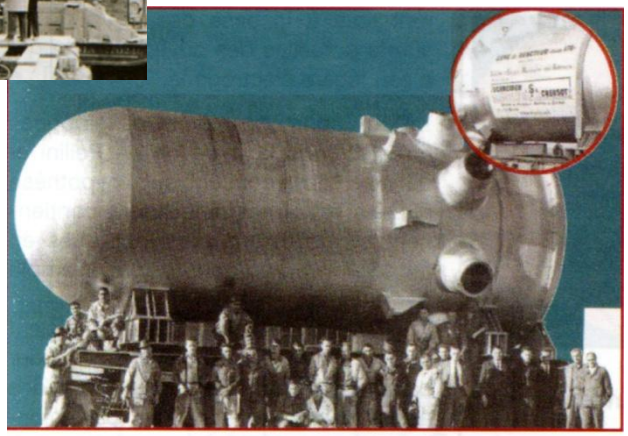
Cuve réalisée en tôles

Cuve réalisée avec des viroles forgées



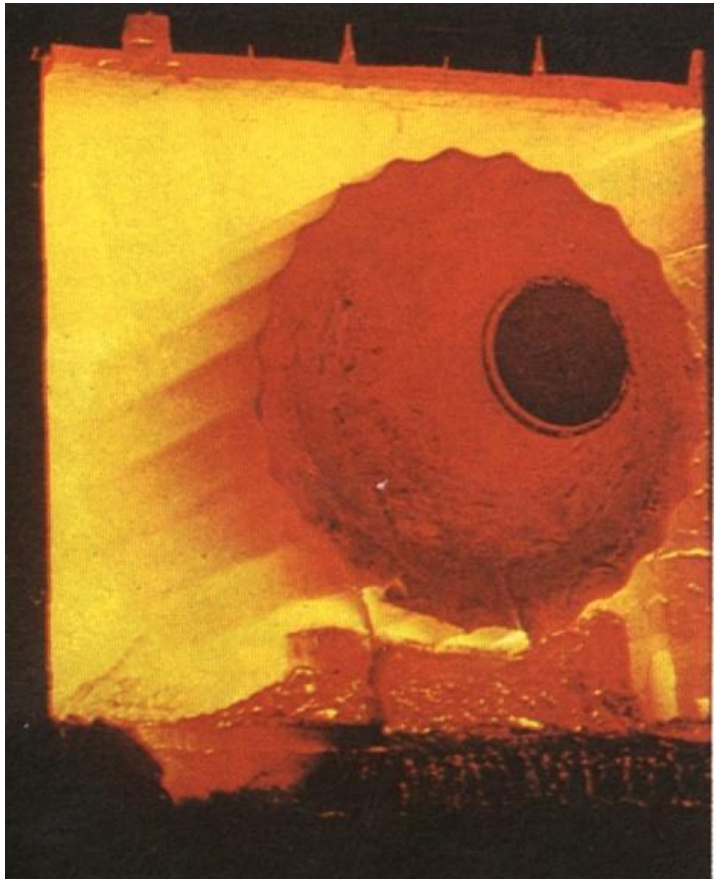
Shippingport
USA (1957)

Chooz 1
France (1964)



Cuve du réacteur de Chooz A en 1964.

EPR
(2008)



Lingot de virole au cours de réchauffage avant forgeage

Forgeage à la presse d'une virole

Après forgeage à chaud du lingot, on enlève la partie centrale puis on l'amène au diamètre et à l'épaisseur désirée par écrasement à chaud sur un mandrin (« bigornage »)

La longueur de la pièce n'est pas modifiée

forgeage (875°C)
trempe
revenu (650°C)

Atelier de construction des cuves au Creusot

Cuve de 900MW prête à être introduite dans le four de détensionnement

Elément de cuve de 1300 MW (viroles)

le choix de l'acier de cuve des REP

cahier des charges :

1) Tenue mécanique

- Températures de fonctionnement : 20 à 325°C
- Pression interne : 0 à 155 bars
- 200 000 à 300 000 heures de fonctionnement
- Irradiation de certaines pièces

2) Résistance à la corrosion

- Éviter les dégradations au contact de l'eau du milieu primaire
- Limiter la contamination des circuits par les produits de corrosion

3) Mise en œuvre

- Formage
- Soudage
- Traitements thermiques

4) Optimum économique

A l'achat et pour la maintenance

Choix de l'acier de cuve

- **Minimiser l'épaisseur de la cuve compte tenu de la pression interne de 155 bar :**
  Acier faiblement allié (pas d'acier inoxydable)
- **Optimiser résistance – ténacité :**
  Acier au manganèse
- **Acier suffisamment peu trempant pour éviter problèmes au soudage :**
  Ajouter molybdène (0,5% pour éviter fragilité de revenu réversible)
- **Acier suffisamment trempant pour obtenir une structure homogène dans toute l'épaisseur (200 mm)**
  Ajouter nickel
- **Limiter la fissuration à froid lors du soudage :**
  Optimiser C, Mo, Cr
- **Limiter la fissuration au réchauffage :**
  Optimiser Cr, Mo, V
- **Limiter les impuretés (S, P, Cu) pour améliorer le comportement sous irradiation**

↓

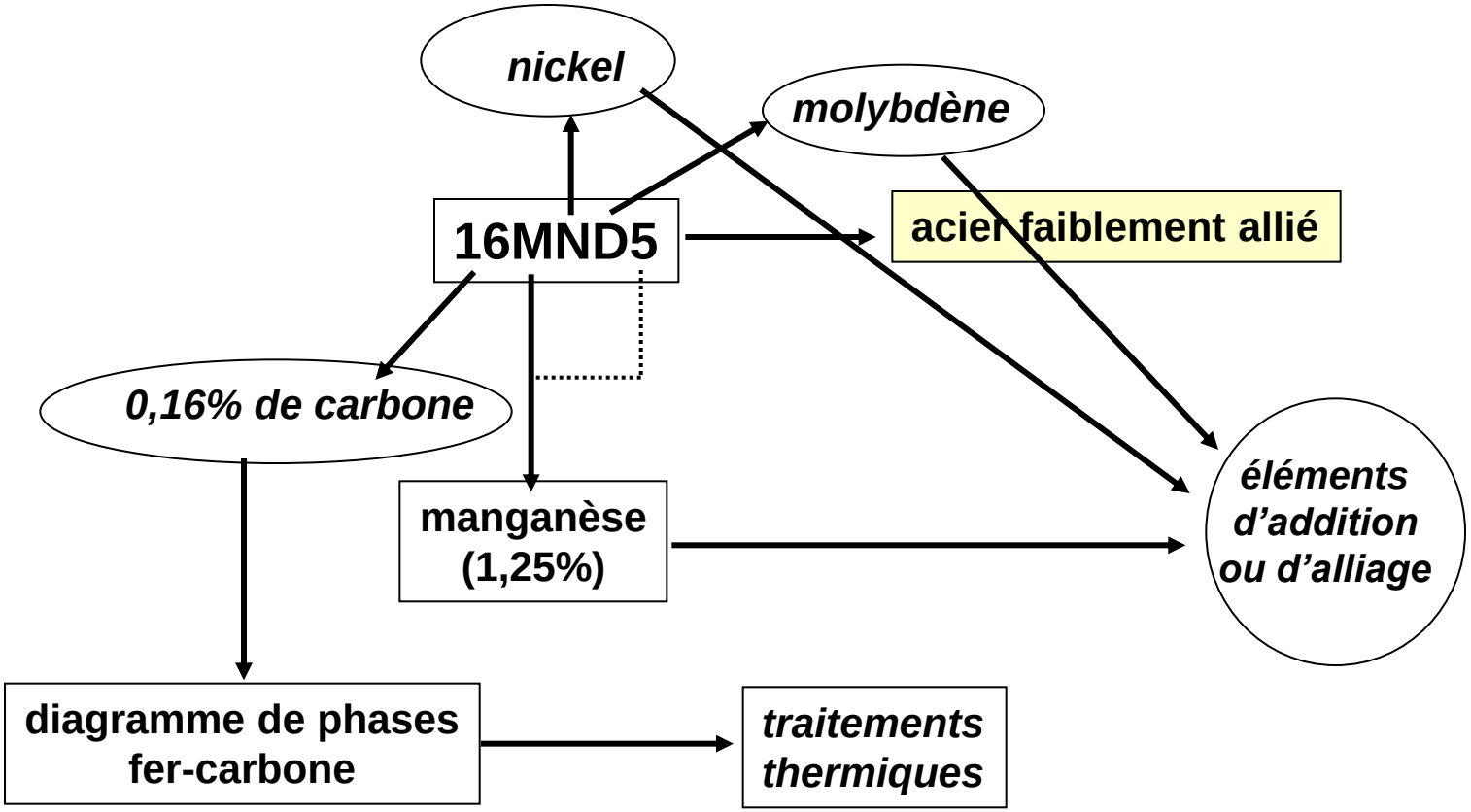
Choix :
Acier 16MND5 au Mn, Ni, Mo

avec revêtement en acier inoxydable pour tenue à la corrosion

Acier de cuve

nuance (AFNOR) : 16MND5 (16MnNiMo5)

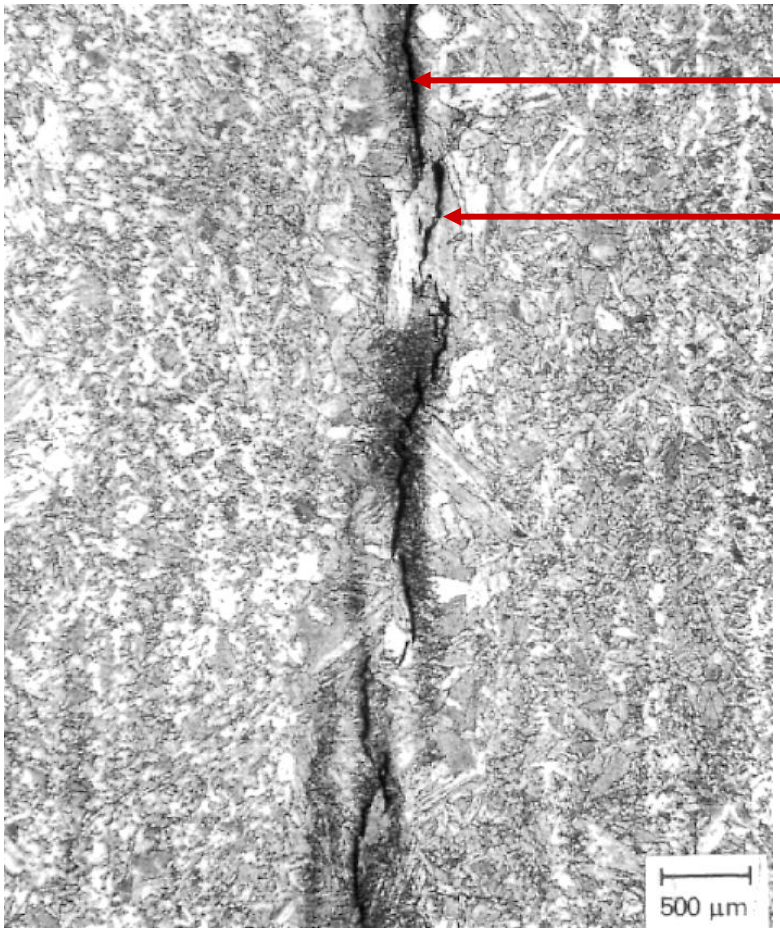
structure ferrito-bainitique



1) Fissurations sous revêtement

1980 : détection de fissures dans l'acier de cuve et prenant naissance à proximité du revêtement inoxydable
(fissuration sous revêtement)

Ces fissures étaient de plus localisées dans des zones particulières (dites « veines sombres ») et qui correspondent à des ségrégations mineures apparues lors de la fusion du lingot



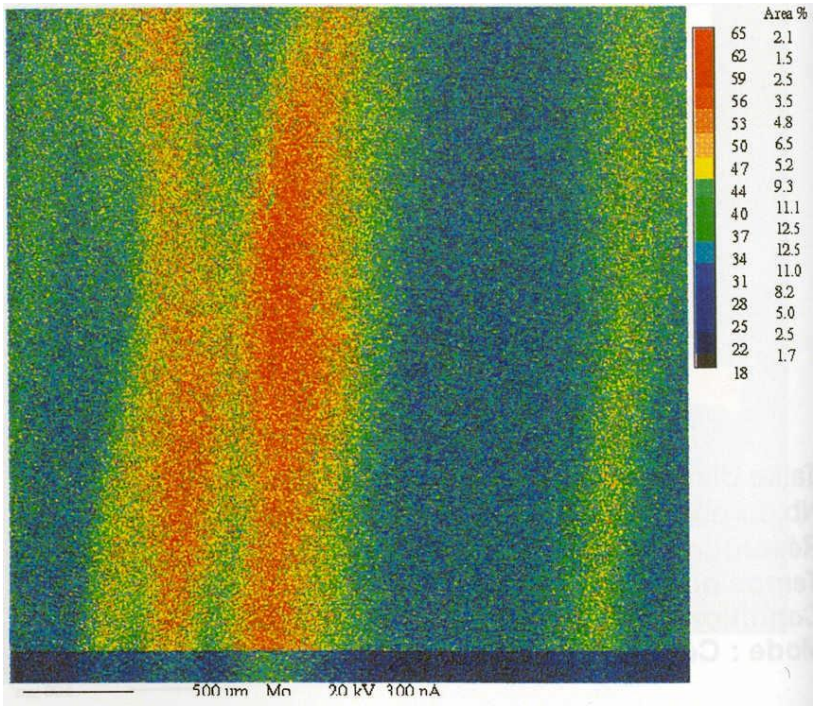
Veine sombre (« ghost lines »)

fissure

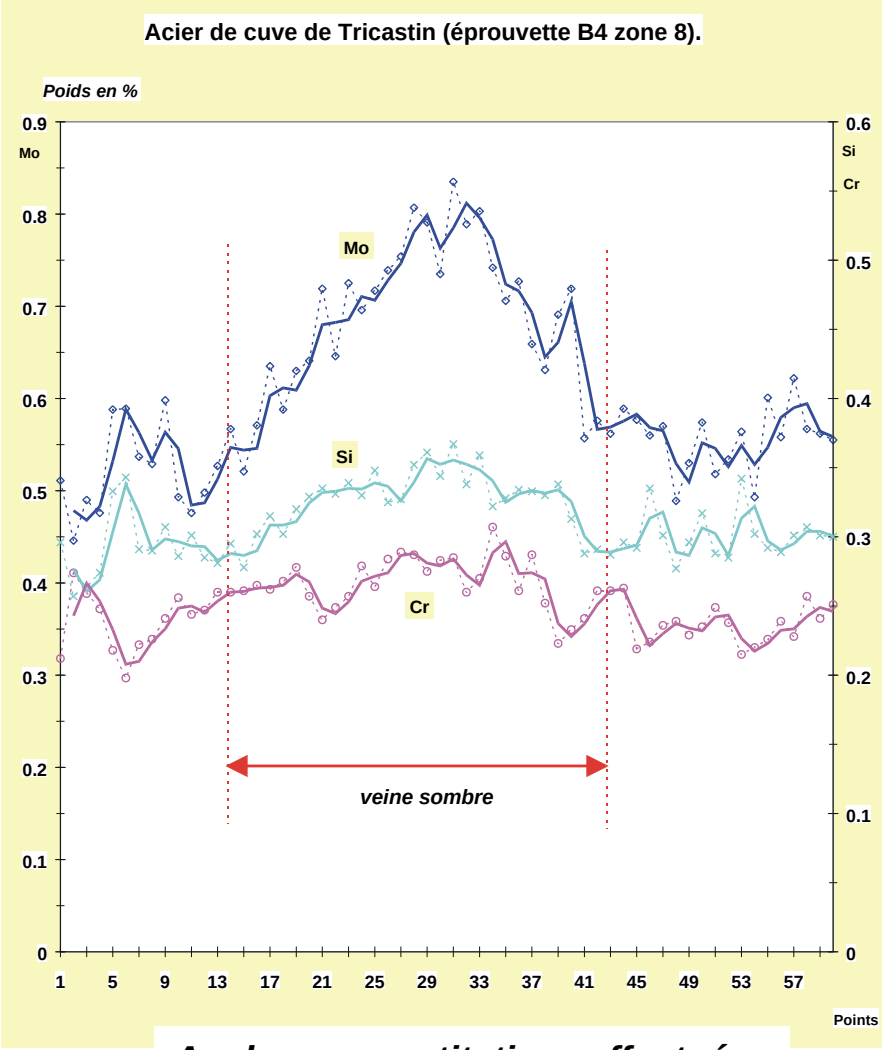
Coupe micrographique de l'acier de cuve montrant des « veines sombres »

Ces veines ont une composition très enrichie en éléments d'addition :

- **Mn de 1,3 à 2,2%**
- **Mo de 0,5 à 1,3%**
- **Cr de 0,2 à 0,3%**
- **Ni de 0,7 à 1 %**
- **Cu de 0,08 à 0,1%**
- **P de 50 à 250 ppm…**



Visualisation de veines sombres par cartographie X en Mo

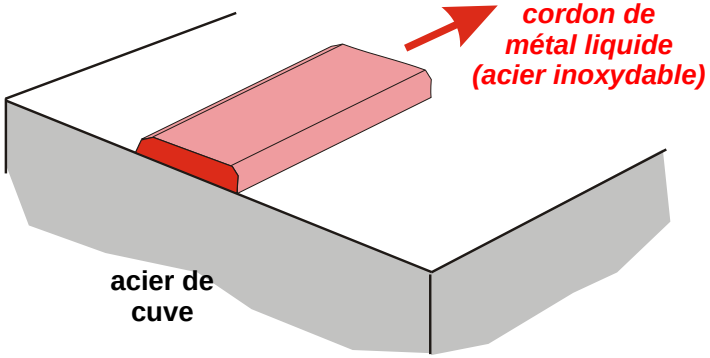


Analyses quantitatives effectuées par microanalyse X par sonde électronique, en traversée d 'une veine sombre

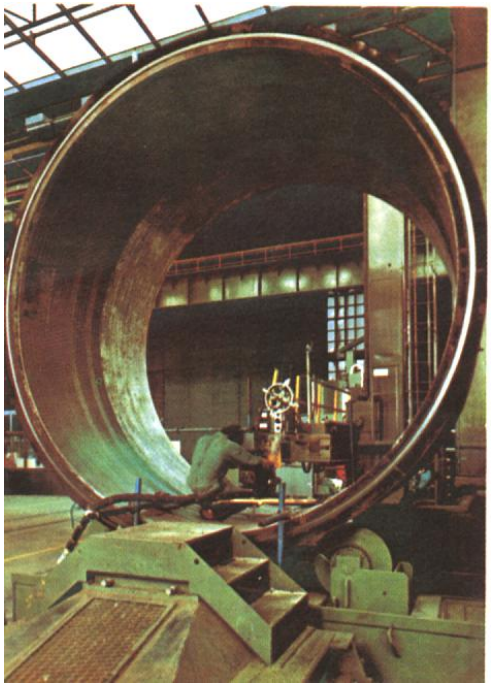
elles sont plus fragiles et plus sensibles au vieillissement

Revêtement (« beurrage ») de l ’acier de cuve par un dépôt d’acier inoxydable

Afin de protéger l’acier de cuve de la corrosion, on effectue un dépôt par fusion d ’acier inoxydable. L’acier inoxydable austénitique est fournie sous forme d’un ruban (feuillard) d’environ 8 cm de large qui est fondu en surface du métal à protéger (fusion à l’arc électrique sous flux)



Dépôt du revêtement par bandes successives par fusion à partir d’un ruban métallique



Revêtement de la surface interne d ’une virole en acier inoxydable (« beurrage »

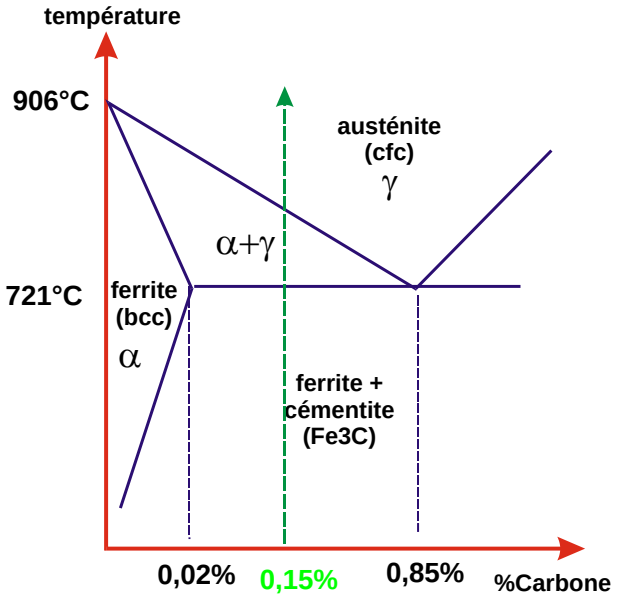
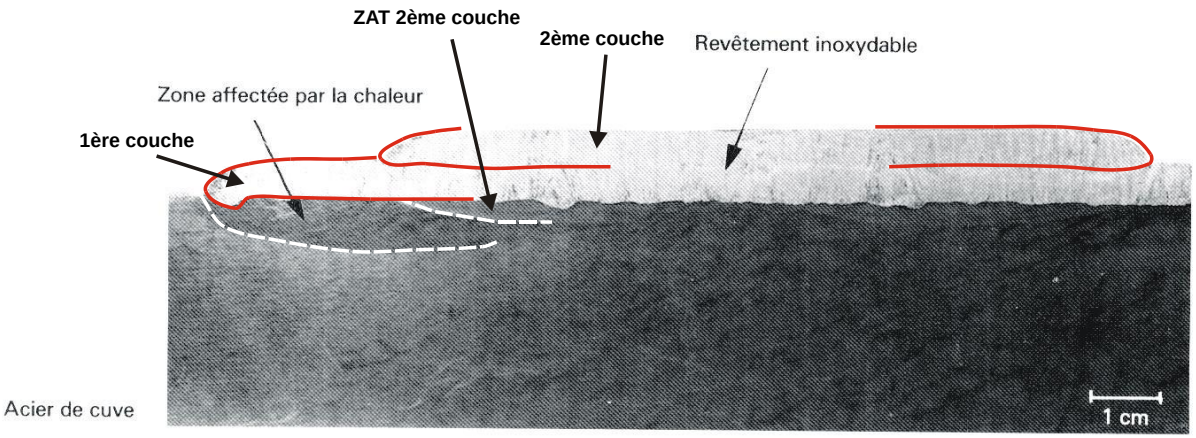
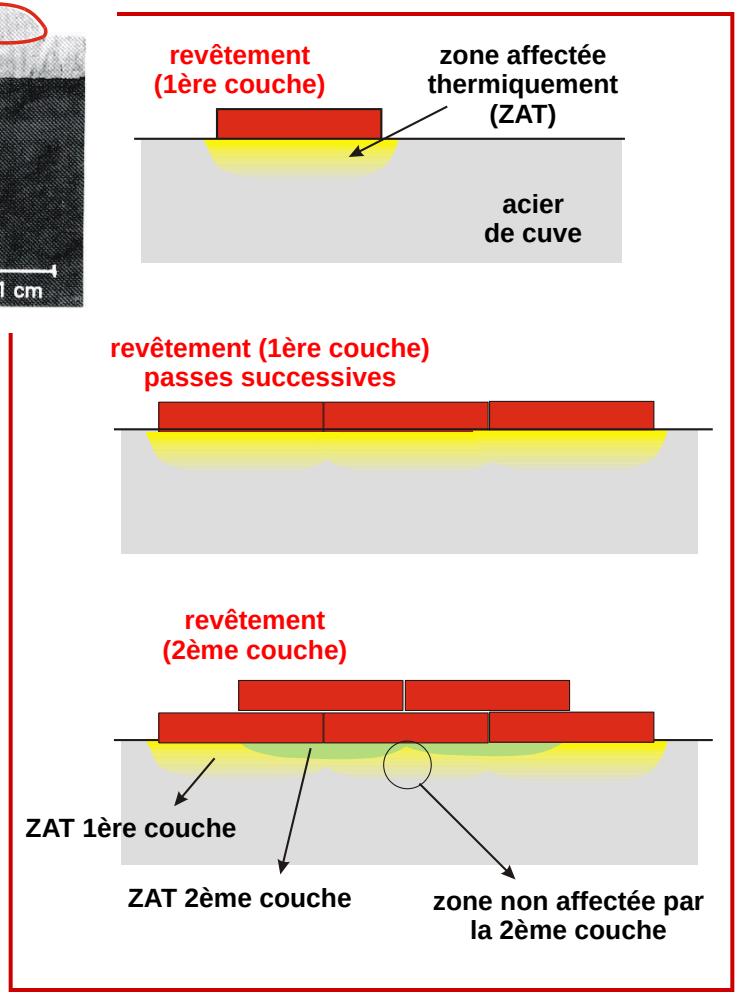


Diagramme de phases des aciers Fe-C

Lorsque l’on dépose l’acier inoxydable en fusion, localement la température de l’acier de cuve est suffisamment élevée pour provoquer un changement de phase (ferrite → austénite)(*Zone Affectée Thermiquement ou ZAT*)
Au refroidissement, il y a transformation inverse mais avec un structure à gros grains (recristallisation) et forte ségrégation

Une première épaisseur est déposée par couches parallèles.
Une deuxième épaisseur est ajoutée à la première en la décalant d'une demi-largeur..





Lorsque l'on effectue le 2ème dépôt, la température atteinte est plus faible (pas de transformation) mais il y a régénération du grain et réduction des ségrégations
Il subsiste cependant une zone qui n'est pas régénérée

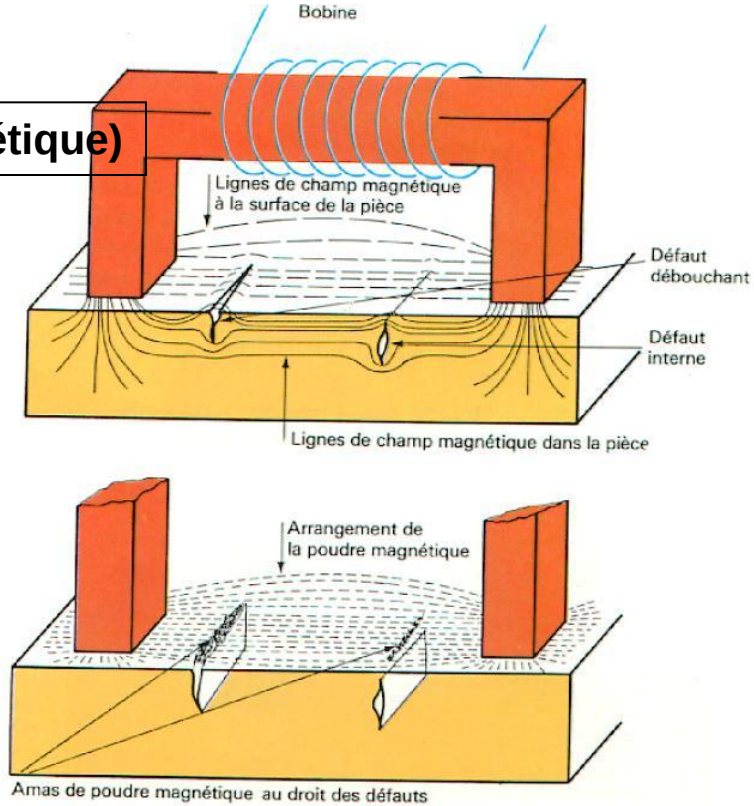
Si cette zone coïncide avec une veine sombre (très ségrégée) le risque d'apparition d'une fissure est maximum

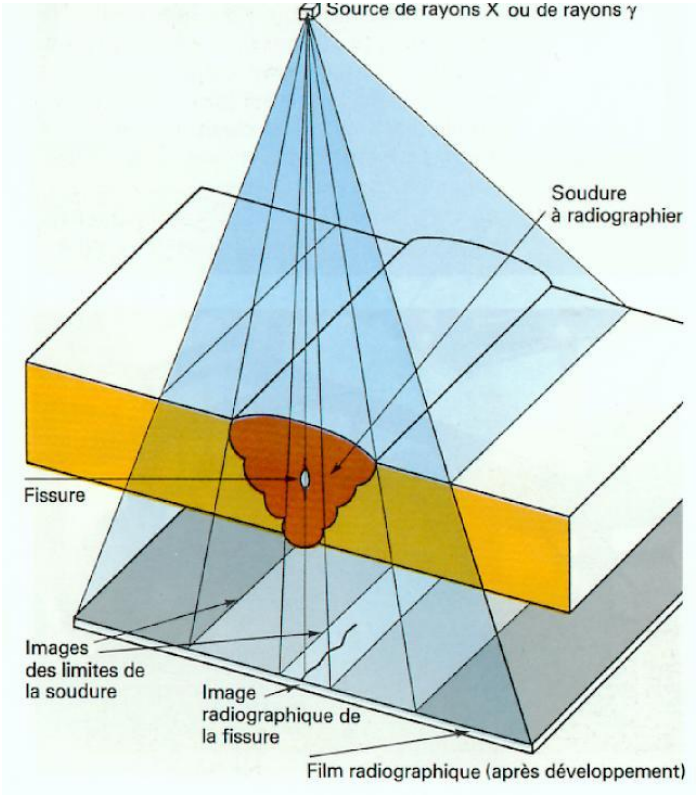
Solution : ***modifier la technique de dépôt afin d'éviter que de telles zones subsistent (chevauchement plus important des passes)***

Recherche de défauts par les contrôles non-destructifs (CND)

- Contrôle des soudures et des pièces de grande taille

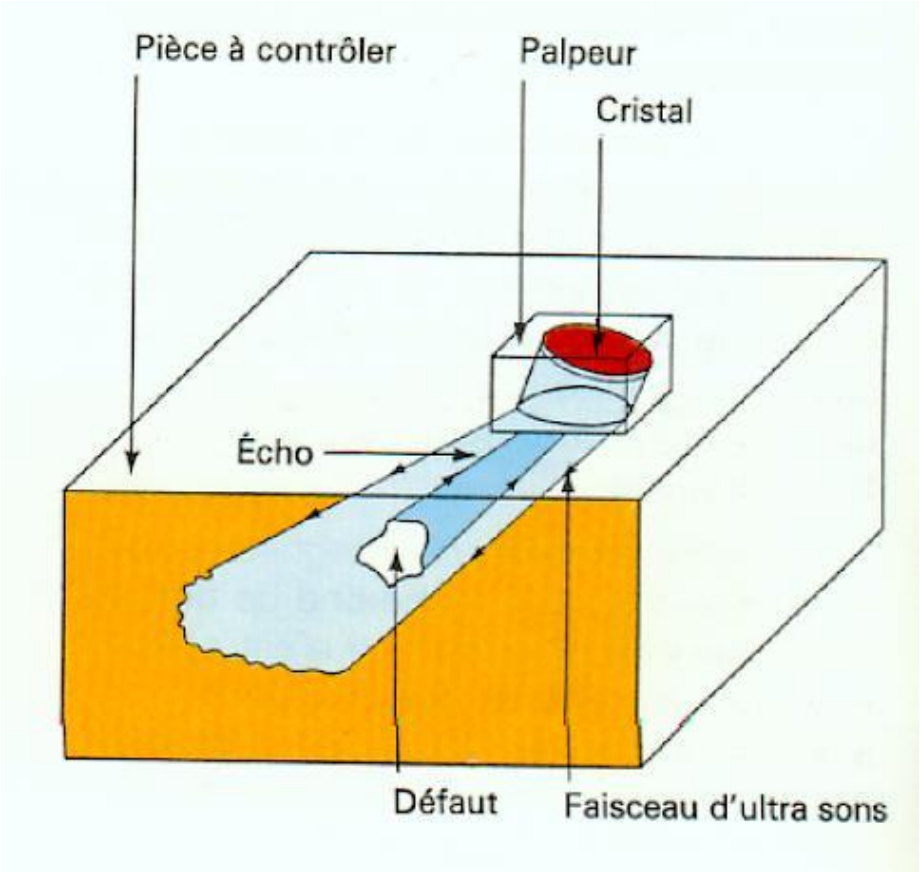
Contrôle par champ magnétique (poudre magnétique)





Radiographie (rayons X ou g)

Ultra-sons



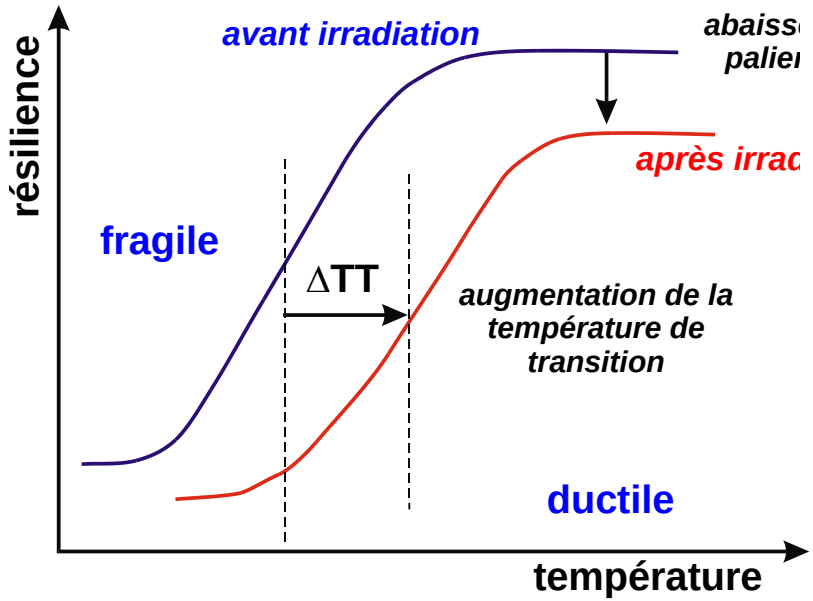
Soit par l'utilisation de sonde à capteur vertical (avec écho de fond)
soit par utilisation de sondes à capteurs inclinés (sans écho de fond)

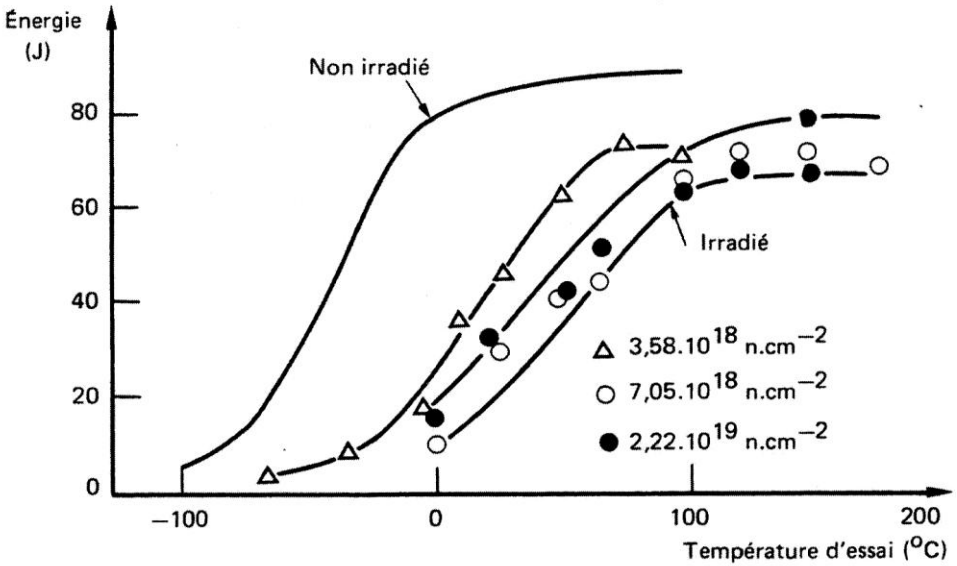
L'intervalle de temps entre le signal envoyé et l 'écho donne la distance du défaut...

2) Irradiation neutronique de l'acier de cuve (« vieillissement »)

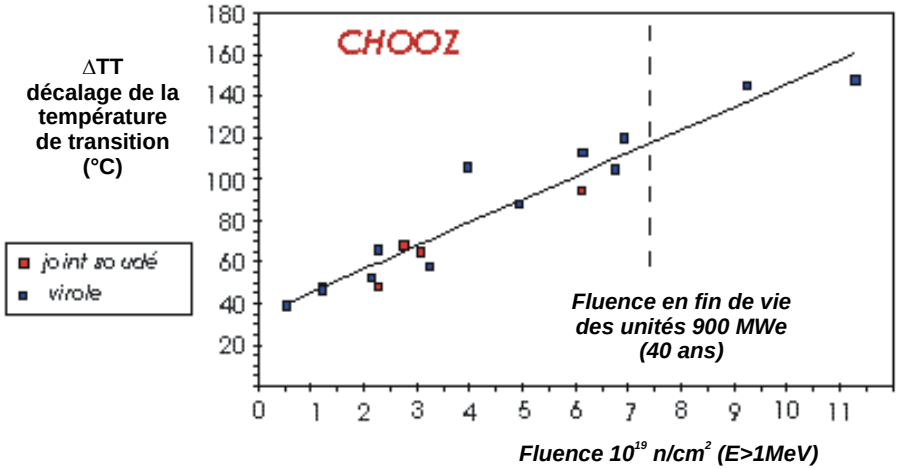
Sous l'effet du bombardement neutronique, on observe au cours du temps une dégradation des propriétés mécaniques de l 'acier :

- **augmentation de la dureté, de la charge à rupture et de la limite élastique**
- **diminution de la ténacité (résistance à la fissuration)**
- **diminution de la résilience (résistance aux chocs) et de la ductilité**
- **augmentation de la température de transition fragile-ductile**





Variation expérimentales de la résilience (courbe de transition) en fonction de la température pour l'acier de cuve, avant et après irradiation neutronique (à 290°C)



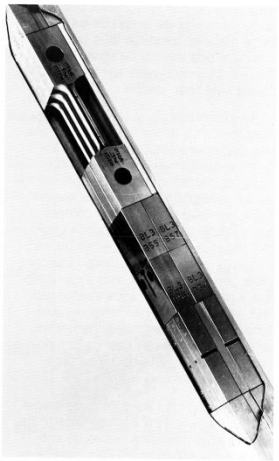
Evolution de la température de transition en fonction du temps mesurée sur la centrale REP de Chooz

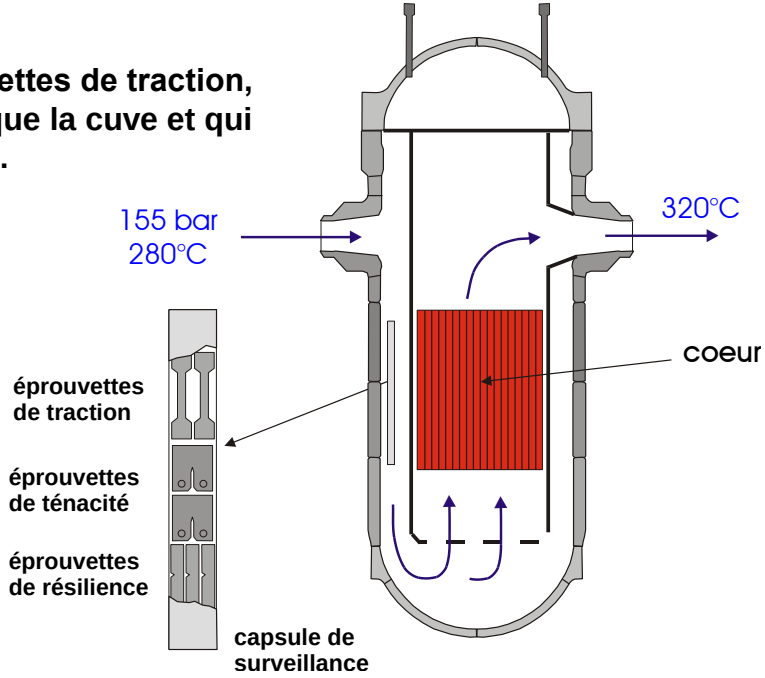
Pour contrôler cette évolution, on a mis en place un programme de surveillance des réacteurs nucléaires (France et USA)

Programme de surveillance de la centrale de Chooz après 17 ans d'irradiation

A l 'intérieur de la cuve, on a disposé 8 paniers contenant des éprouvettes de traction, de ténacité et de résilience qui sont irradiées 3 fois plus rapidement que la cuve et qui sont représentative de l 'acier de cuve, de la ZAT et des joints soudés.

Régulièrement (3, 5 7, 11…ans) on en prélève et on mesure les caractéristiques mécaniques. On peut ainsi anticiper sur l évolution réelle de la cuve.





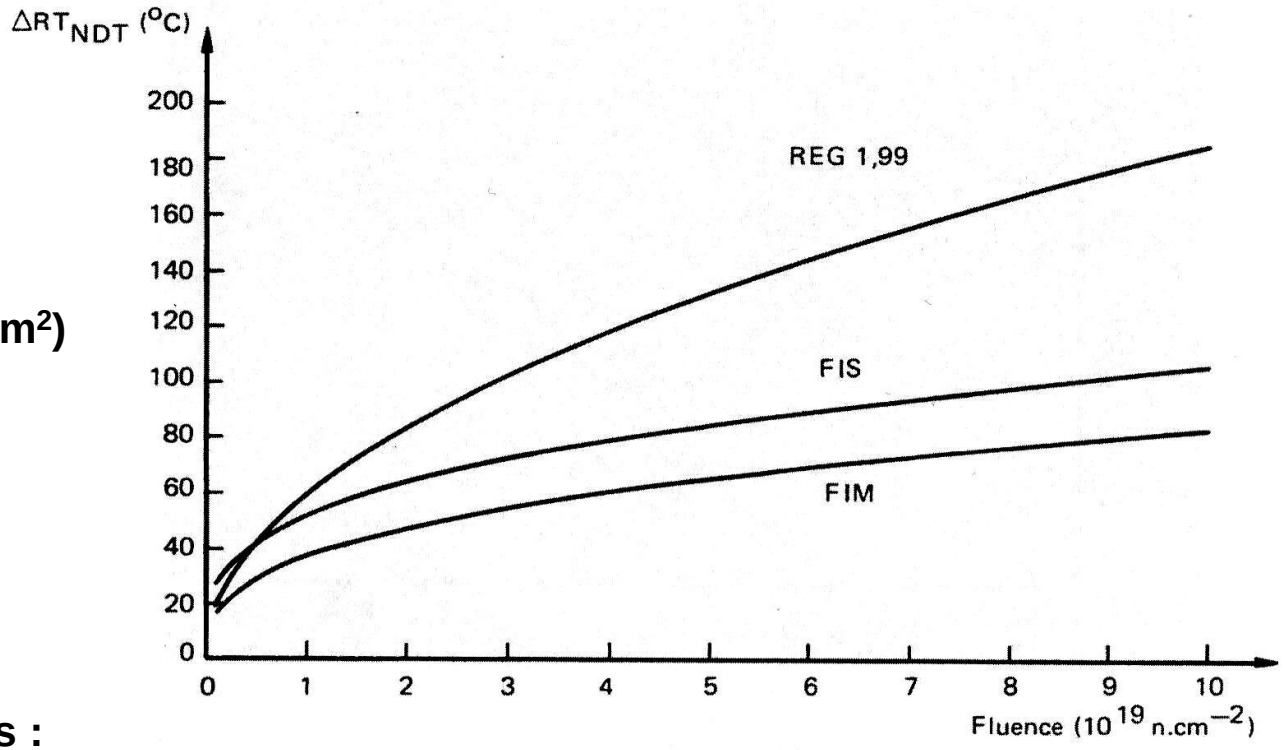
Base de données
formules prévisionnelles

Formules prévisionnelles de l'accroissement de la température de transition (RT_{NDT})

Cuves américaines : REG1,99

$$\Delta RT_{NDT} = [12 + 556 \times (\%Cu - 0{,}08) + 2\,778 \times (\%P - 0{,}008)] \times (F/10^{19})^{1/2}$$

F : fluence (neutrons par cm²)



Cuves françaises :

FIS :valeur supérieure - FIM :valeur moyenne

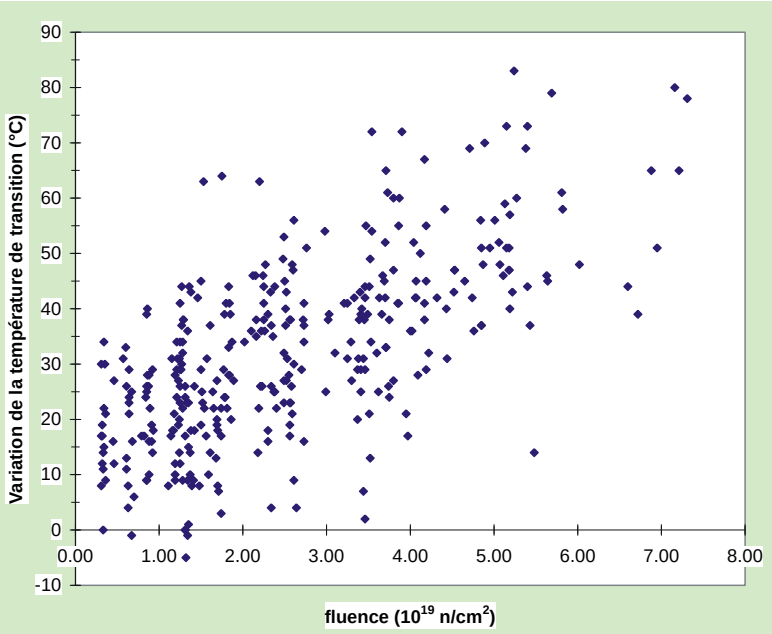
$$\text{FIS} : \Delta RT_{NDT} = 8 + [24 + 1\,537 \times (\%P - 0{,}008) + 238 \times (\%Cu - 0{,}08) + 192 \times (\%Ni^2\ \%Cu)] \times (F/10^{19})^{0{,}35}$$

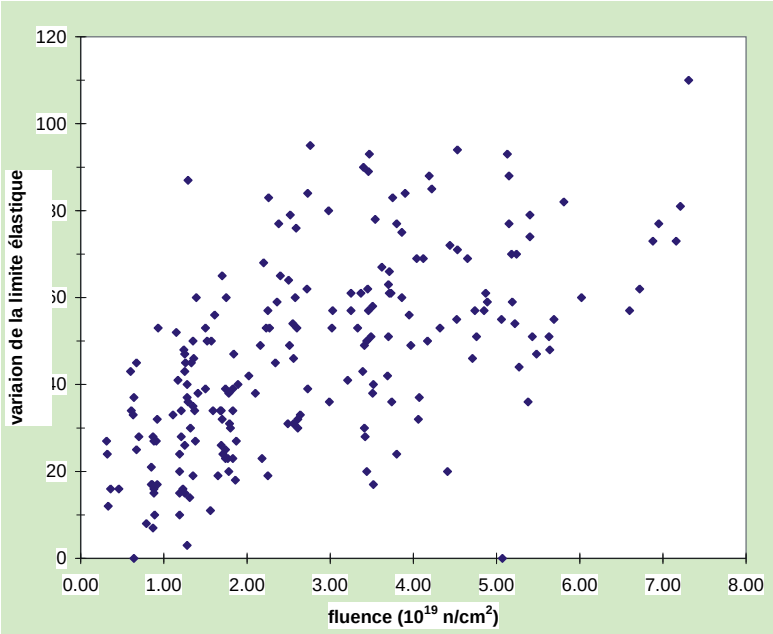
$$\text{FIM} : \Delta RT_{NDT} = [17{,}3 + 1\,537 \times (\%P - 0{,}008) + 238 \times (\%Cu - 0{,}08) + 192 \times (\%Ni^2\ \%Cu)] \times (F/10^{19})^{0{,}35}$$

Quels sont les mécanismes du vieillissement?

Pour les comprendre :

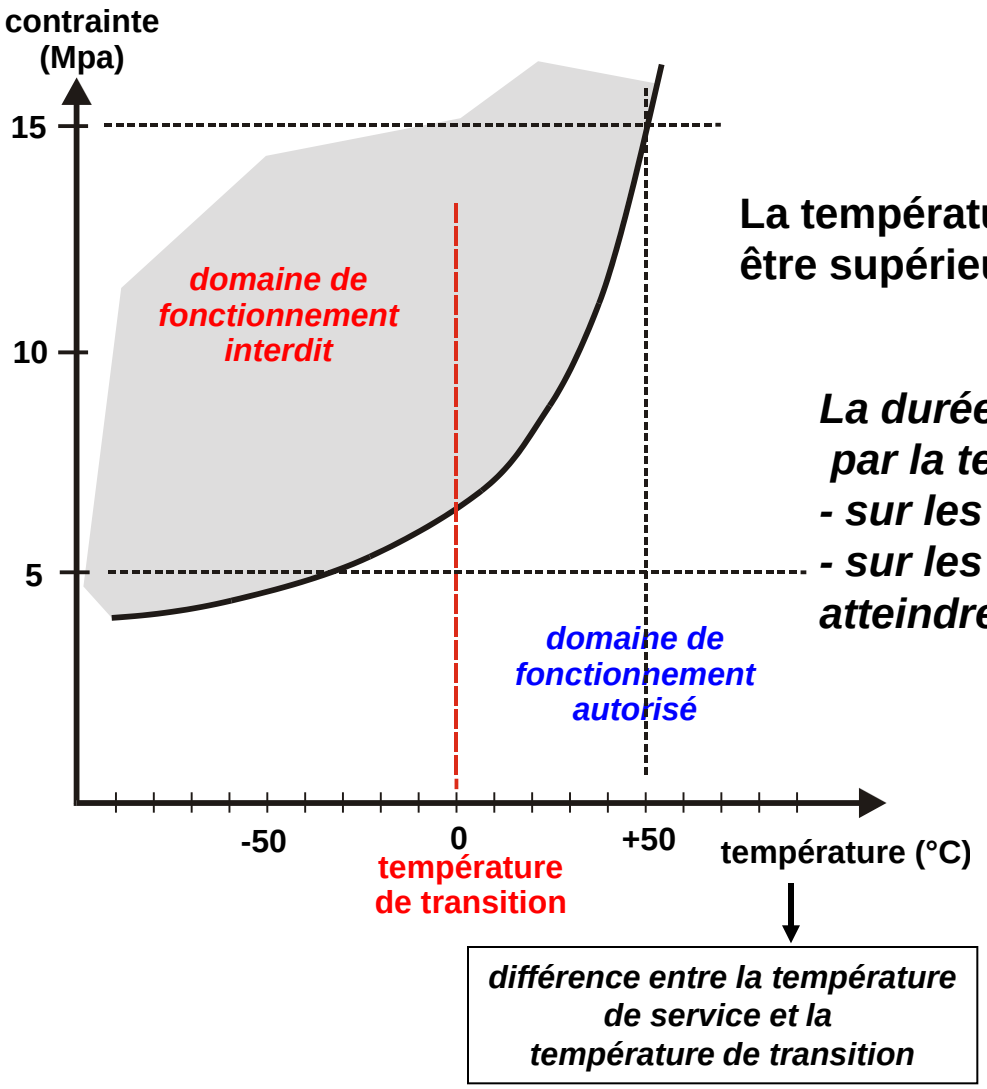
- **calculs statistiques sur la base de données (française et US)**
- **irradiations expérimentales : électrons (>1MeV), ions et neutrons**
  - **acier de cuve**
  - **alliages modèles**
- **analyse par « sonde atomique tomographique »,**
  « diffusion des neutrons aux petites angles » et
  « annihilation de positons »
- **simulation numérique (dynamique moléculaire, Monte Carlo…)**





Programme de surveillance : variation de la température de transition et de la limite élastique en fonction de la fluence (343 données) (tous matériaux et toutes compositions chimiques confondus)

La température de transition détermine le domaine de fonctionnement du réacteur.



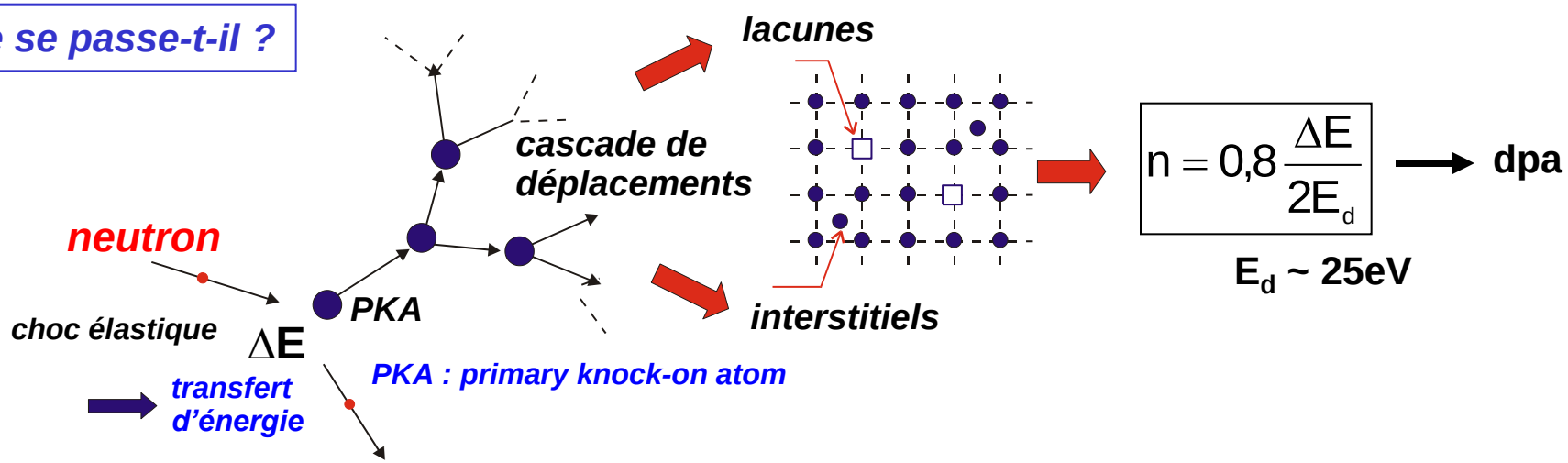
155 bars = 15 MPa

La température de la cuve (286°C) doit toujours être supérieure de 50°C à sa température de transition

La durée de vie de la centrale est déterminée par la température de transition :
- sur les 900 MW, on peut espérer atteindre 40ans
- sur les 1300 MW (moins irradiés) on peut espérer atteindre 70 à 75 ans...

La cuve de l'EPR a été conçue pour de très longues durées de vie (>80 ans)

Que se passe-t-il ?



Le neutron dont l'énergie est comprise entre 0,025 eV (neutron thermique) et quelques MeV (neutron rapide) cède un peu de son énergie (de quelques eV à plusieurs centaines de keV) lors de chocs élastiques avec les atomes du métal.
L'atome heurté (PKA) est projeté hors de son site et vient heurter d 'autres atomes et ainsi de suite….
Il en découle une « cascade de déplacements » atomiques, engendrant des défauts ponctuels (lacunes et interstitiels).
Cette cascade, dont la durée totale est inférieure à 10 ps (10^{-11} seconde), ne peut être étudiée que par simulation numérique (dynamique moléculaire)

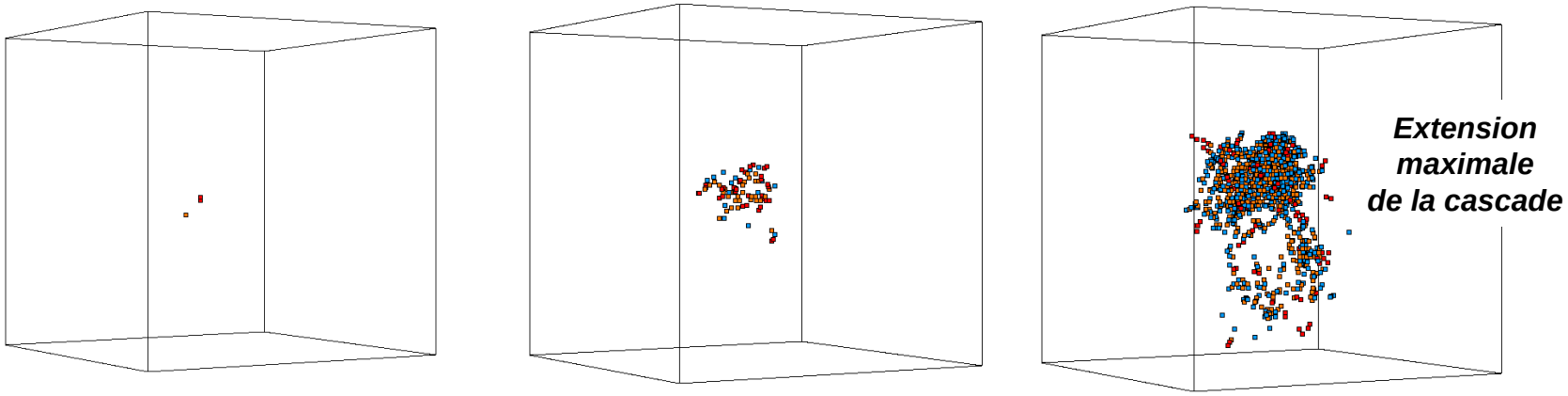
On caractérise l 'irradiation par le dpa (déplacement par atome) :
- ***acier de cuve : 0,1 dpa en fin de vie (1 atome sur 10 sera déplacé)***
- ***structures internes : 100 dpa en fin de vie… (1 atome sera déplacé 100 fois !)***

En France, pour calculer les effets d'irradiation on ne tient compte que des neutrons de plus de 1 MeV

Simulation d'une cascade de déplacements par dynamique moléculaire

Fe 4keV
600 K

Phase de collision (expansion de la cascade)

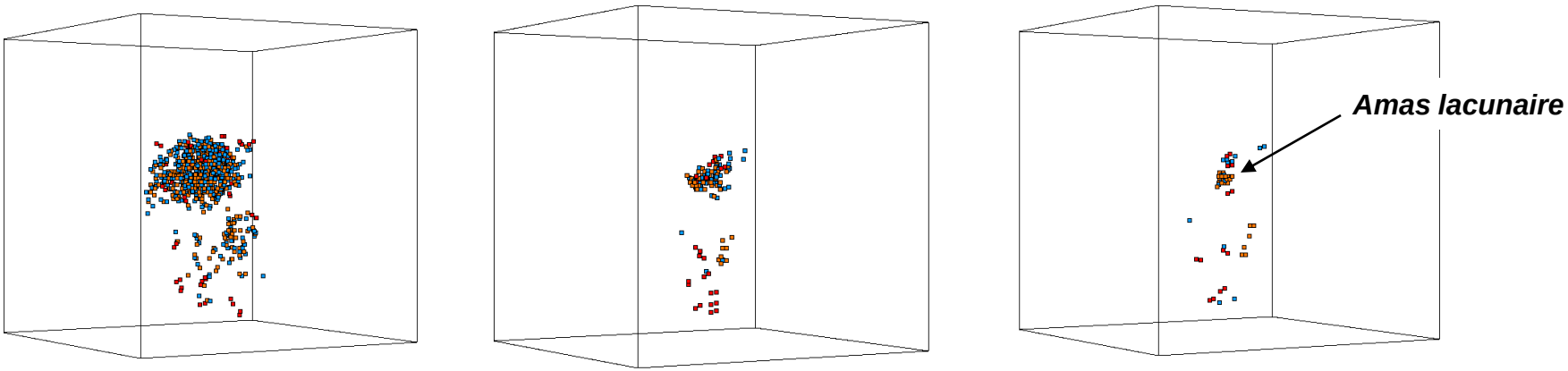


0,01 ps

0,05 ps

0,26 ps

Pic balistique



1,86 ps

3,86 ps

6,86 ps

Défauts résiduels

Phase de recombinaison des défauts

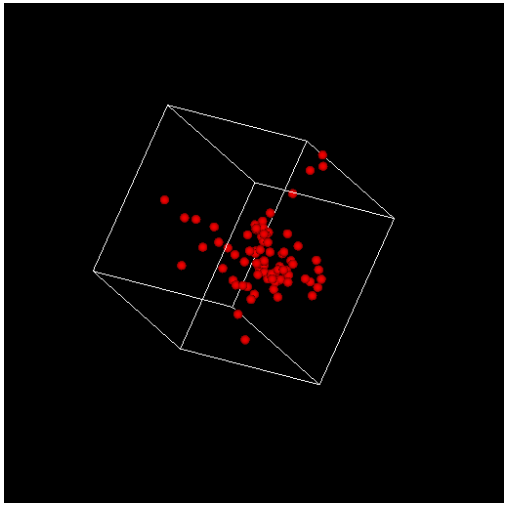
-bleu : interstitiels
- rouge : lacunes

En fin de cascade, il subsiste quelques défauts résiduels qui vont évoluer plus lentement.

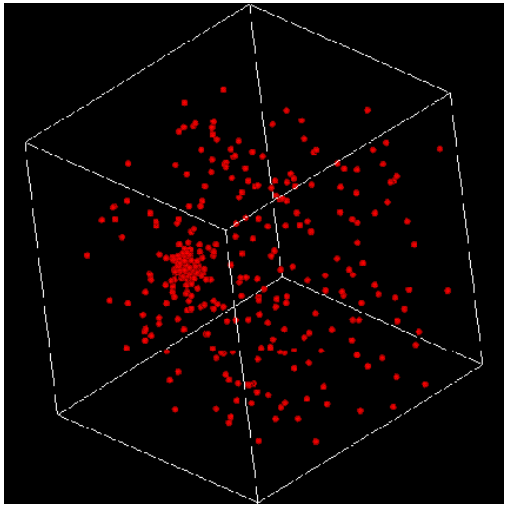
Il y aura formation de :

- ***amas de défauts ponctuels (micro-cavités pour les lacunes)***
- ***complexe « atome de soluté-lacunes »***
- ***précipitation (de cuivre pur par exemple pour les aciers de cuve riches en Cu)***
- ***amas diffus (« atmosphères ») d 'atomes de solutés***
- ***ségrégations importantes (aciers inoxydables des internes)***
- ***boucles de dislocations ….***

Ces défauts peuvent être observés (sonde atomique, annihilation de positons,…) ou simulés (Monte Carlo d'échange ou cinétique)

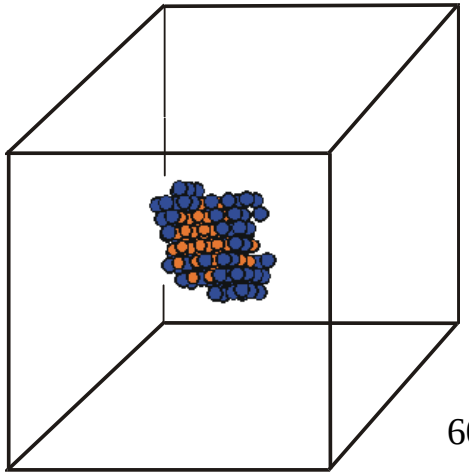


« atmosphère » de cuivre observée par sonde atomique dans un alliage Fe-0,2%Cu irradié aux neutrons

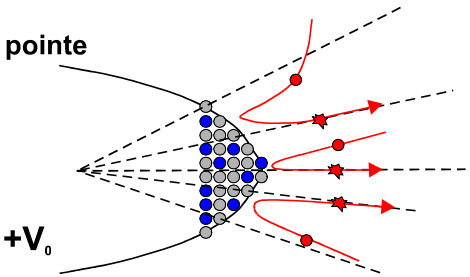


précipité de cuivre observée par sonde atomique dans un alliage Fe-1,5%Cu irradié aux neutrons

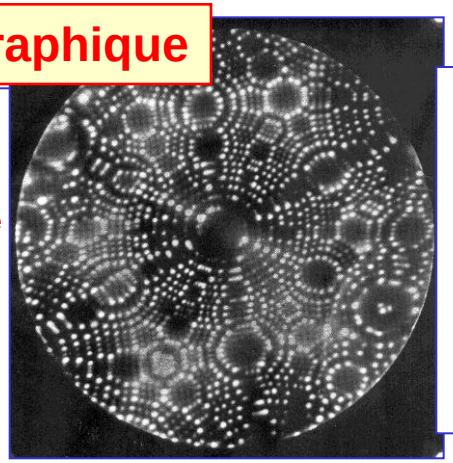
amas de cuivre (bleu) et de lacunes (rouge) obtenu par simulation numérique (Monte Carlo d 'échange) dans un alliage Fe-0,2%Cu



Complément : La sonde atomique tomographique



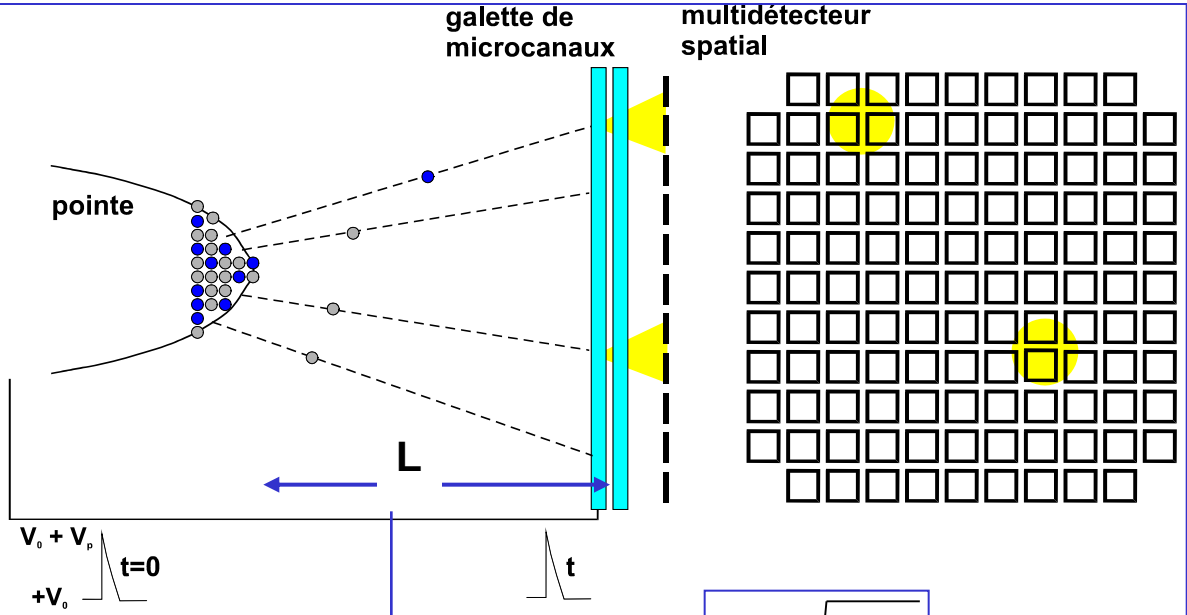
Microscopie ionique à champ (FIM)



L'échantillon est sous forme d'une pointe fine. les atomes d'argon sont ionisés au niveau des atomes de la pointe en raison du fort champ électrique et forment sur l'écran l'image de leur position.

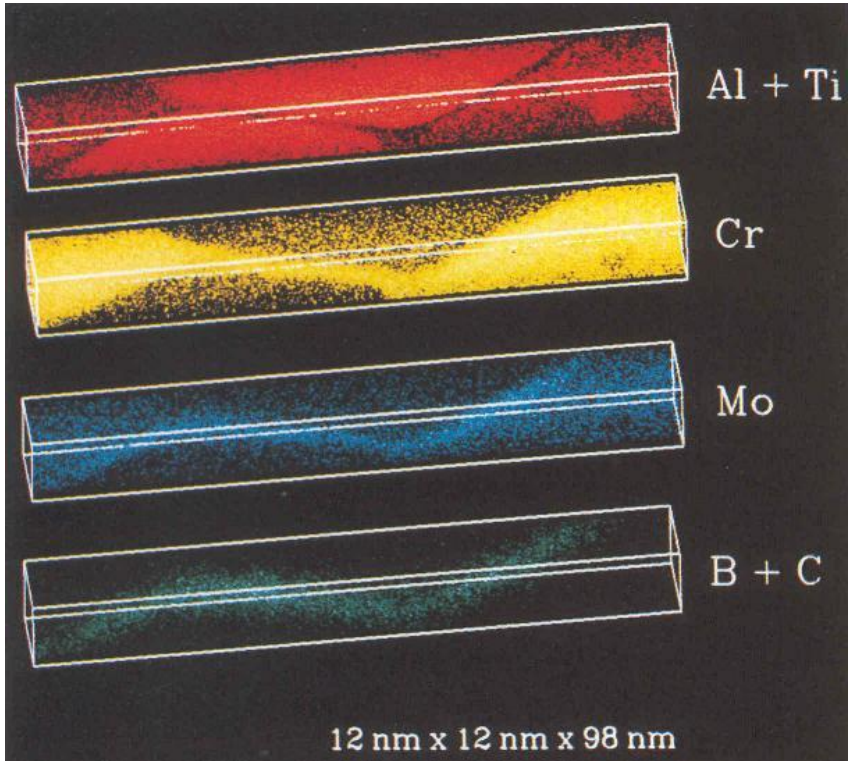
En appliquant une augmentation brève de tension, on abrase couche par couche les atomes. Leur nature est analysée par un spectromètre à temps de vol (la vitesse est inversement proportionnelle à la masse) et leur position par un détecteur à localisation spatiale.

Sonde atomique tomographique (TAP)

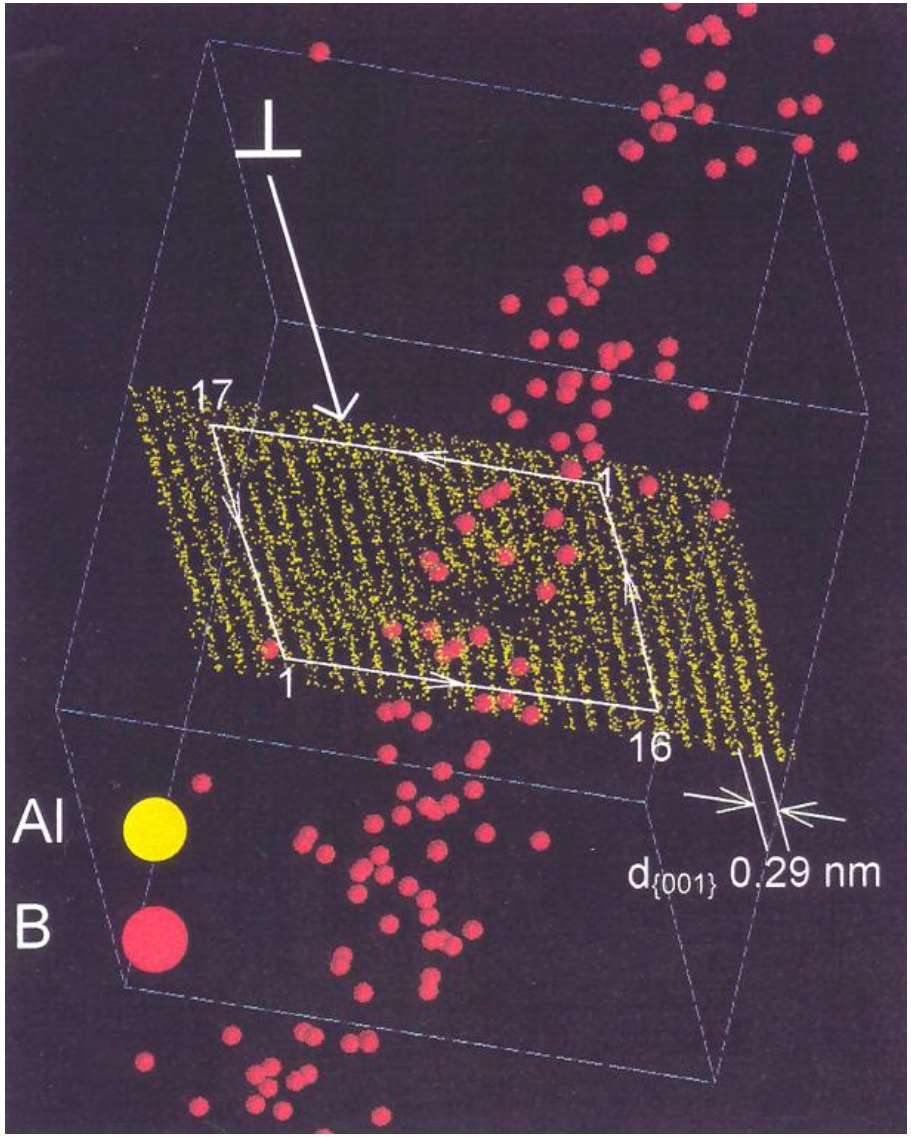


spectromètre à temps de vol (TOF)

$$t = L\sqrt{\frac{m}{2qV}}$$



ségrégations dans un joint de grains (superalliage Astroloy)



Décoration d'une ligne de dislocation coin dans de l'Al par des atomes de B (« atmosphère de Cottrell ») (Ph. Pareige – INSA Rouen)

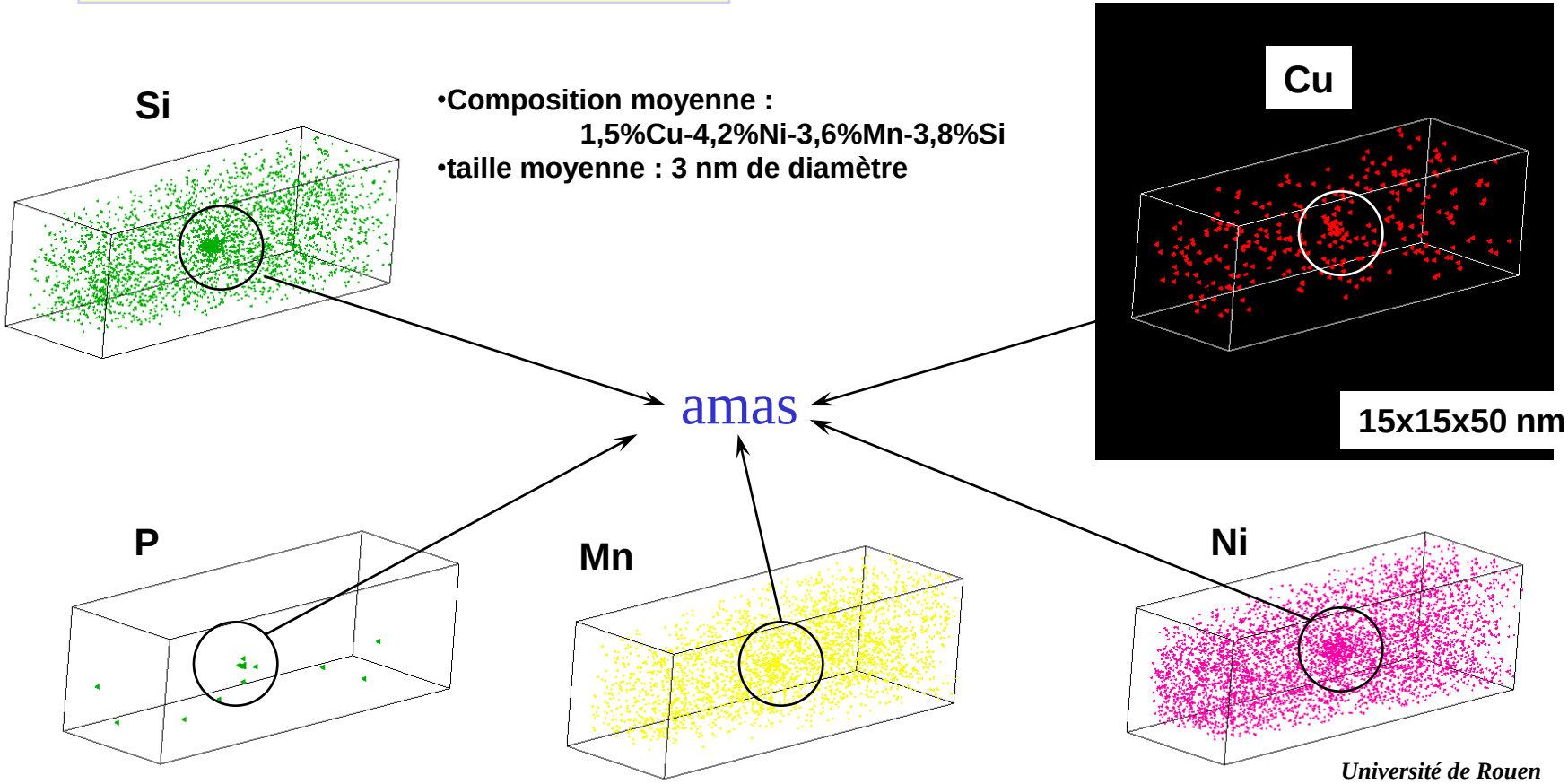
Un plan atomique d'Al a été représenté montrant une dislocation vis, les atomes de bore (en rouge) sont localisés autour de la ligne de dislocation.

« atmosphères» d'atomes de soluté observées par sonde atomique tomographique dans un acier de cuve (Dampierre) après irradiation

- *la composition et la taille ne changent pas avec la fluence*
- *la quantité croît avec la fluence*

Dampierre 4
5.2 x10^{19} n/cm^2

- **Composition moyenne : 1,5%Cu-4,2%Ni-3,6%Mn-3,8%Si**
- **taille moyenne : 3 nm de diamètre**



La formation des défauts (« atmosphères », amas…) est favorisée par la teneur en cuivre

Solutions

Pour les réacteurs existants :

- **suivre l'évolution des propriétés mécaniques (programme de surveillance)**
- **effectuer des traitements thermiques de recuits (solution russe)**

Les cuves des VVER sont en effet plus riches en Cu et en P, la température est plus faible (270°C), la fragilisation doit donc être plus importante.
En l'absence d'un programme de surveillance, les russes ont opté pour des recuits de régénération de 430 à 500°C.

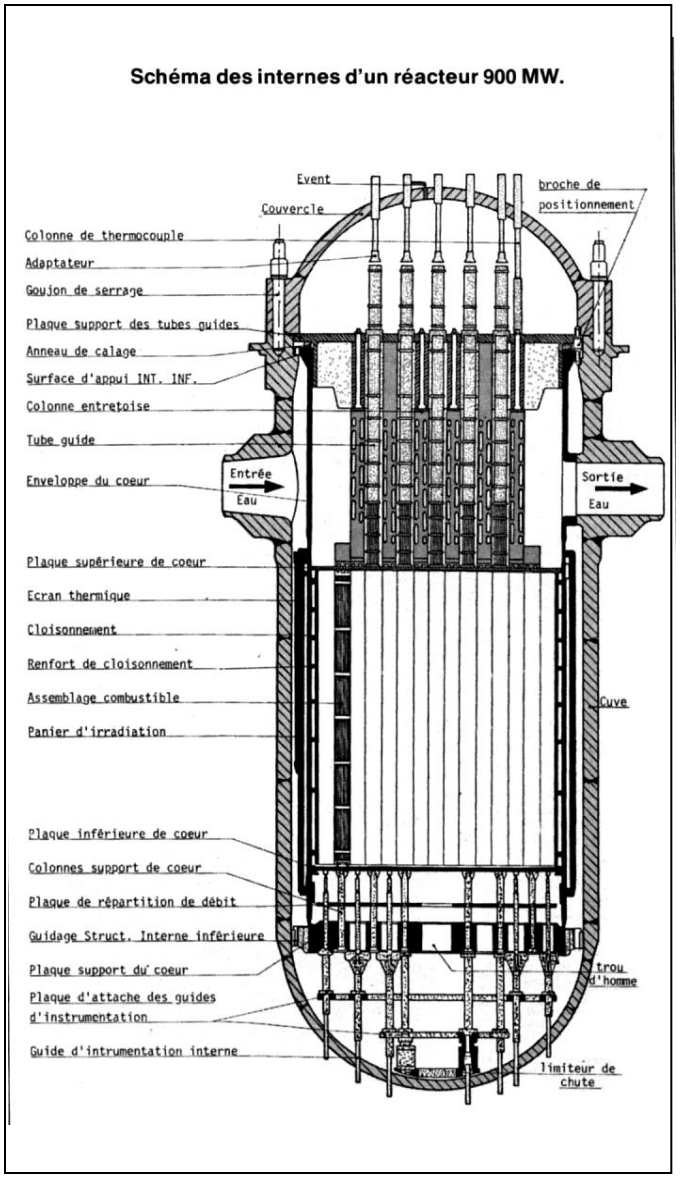
Pour les nouveaux réacteurs :

1) Modifier la composition chimique de l'acier (réduire la teneur en Cu)

2) utiliser un acier moins sensible au vieillissement
(par exemple le 2¼Cr-2Mo ou 10CD9-10 au lieu du 16MND5)

3) réduire l'irradiation de la cuve en modifiant sa géométrie

II – Les structures internes de cuve



LEUR ROLE

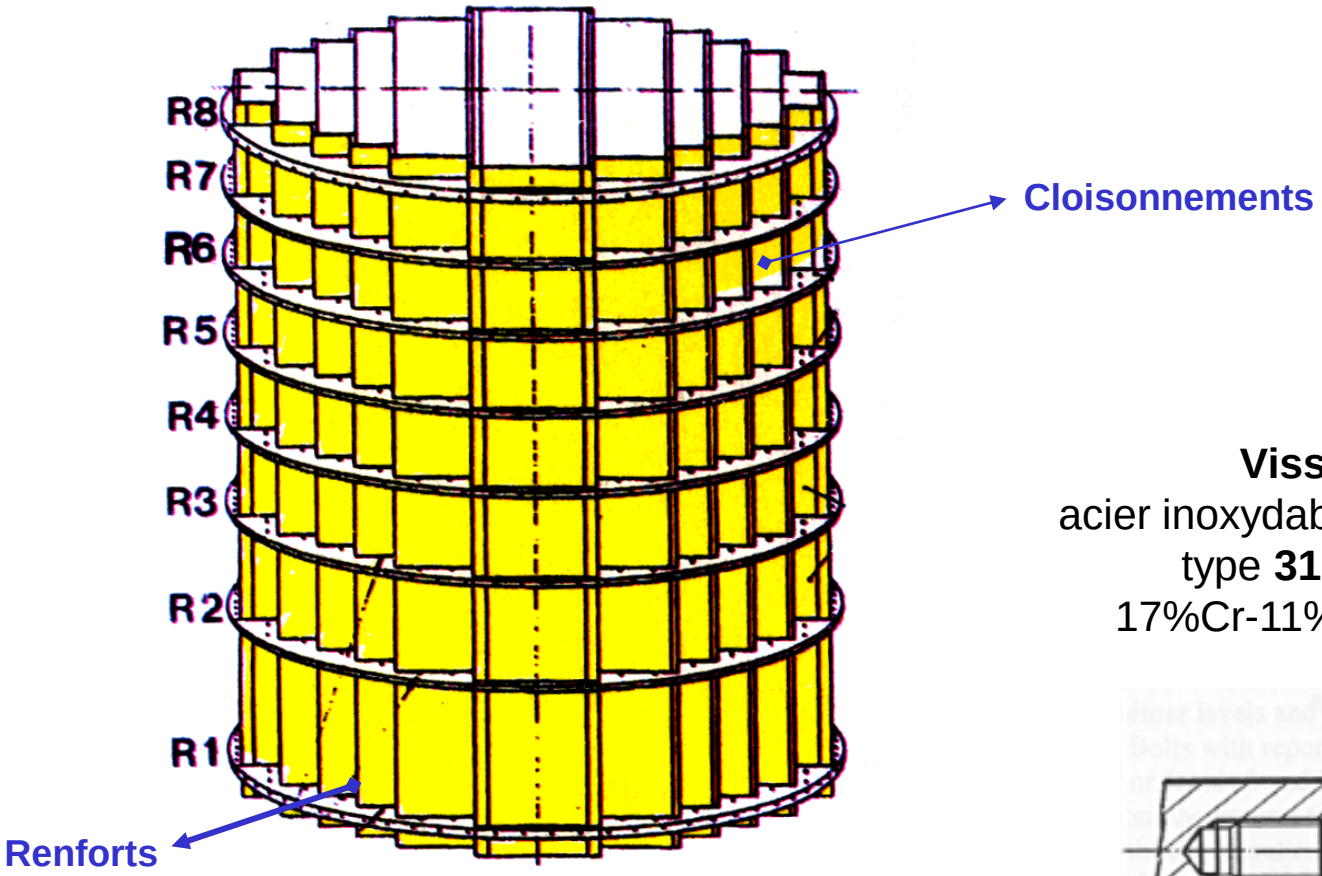
<u>Les structures internes inférieures</u> :

- **Porter le poids du cœur,**
- **Maintenir en alignement les assemblages combustibles, les grappes de commande et l'instrumentation,**
- **Canaliser l'écoulement du fluide caloporteur,**
- **Protéger la cuve contre les <u>rayonnements émis par le cœur</u>** *(➔ vieillissement sous irradiation),*
- **Conserver toujours une grande rigidité étant donné la précision d'alignement requise,**

<u>Les structures internes supérieures :</u>

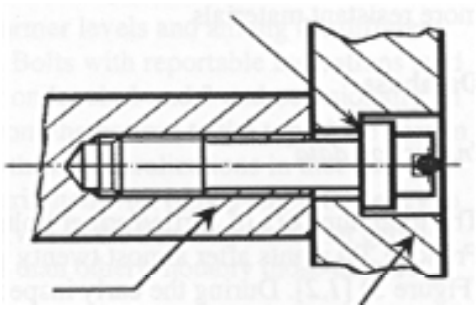
- **Positionner les grappes de commande dans l'axe des assemblages combustibles**
- **Immobiliser les assemblages combustibles**

Les internes de cuve



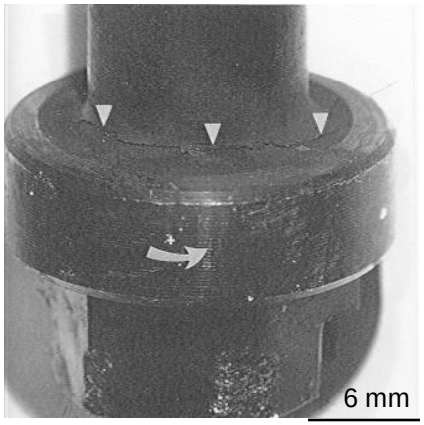
Cloisonnements et renforts :
acier inoxydable austénitique
type **304 hypertrempé**
18%Cr-10%Ni

Visserie :
acier inoxydable austénitique
type **316 écroui**
17%Cr-11%Ni-2,5%Mo

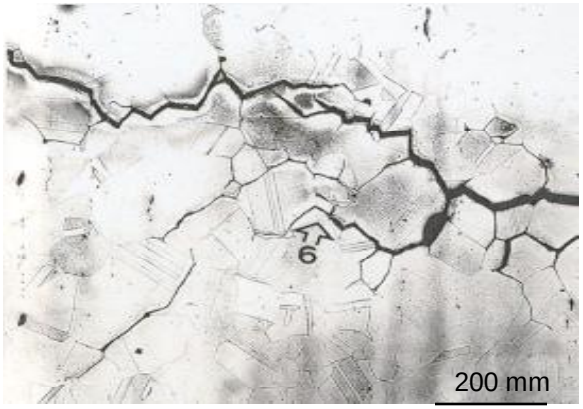


Problème : vieillissement important sous irradiation (100dpa)

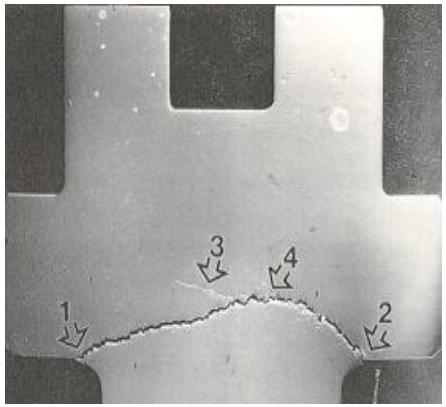
Fissuration en service des vis du cloisonnement par corrosion sous contrainte assistée par l'irradiation (IASCC)



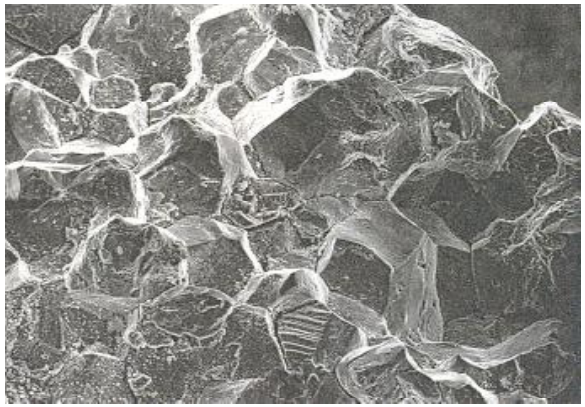
Aspect macrographique d'une vis fissurée



Aspect micrographique d'une fissuration intergranulaire



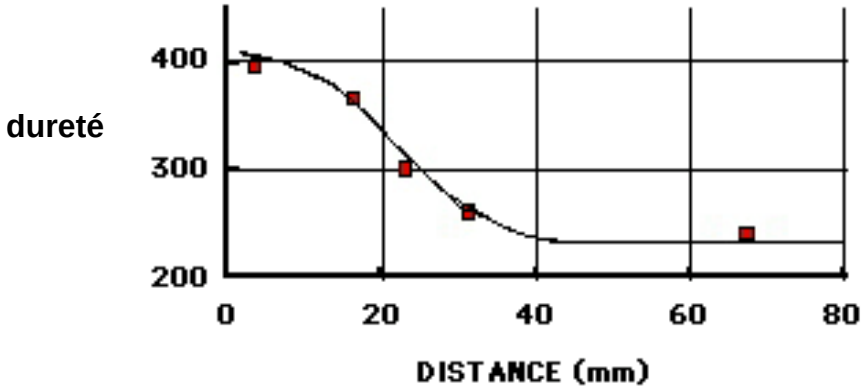
Vue en coupe d'une vis fissurée



Faciès de rupture intergranulaire d'une vis fissurée

Durcissement des vis en fonction de la dose d'irradiation reçue

Etant à proximité du cœur, les structures internes sont très fortement irradiées : de l'ordre de 100dpa en fin de vie, soit $2x10^{23}$ n/cm^2 (x 1000 par rapport à la cuve)



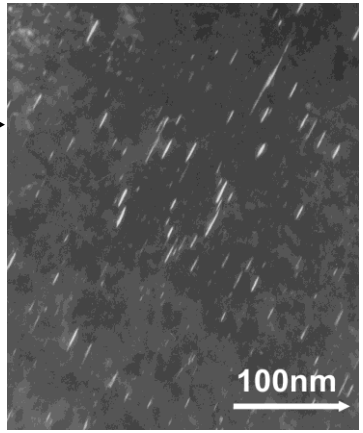
On observe une augmentation importante de la dureté en fonction de l'irradiation

Que se passe-t-il dans le matériau ?

<u>Rappel</u> : L'irradiation provoque la formation de défauts ponctuels : lacunes et interstitiels créés en permanence dans l'acier et se déplaçant vers des puits (dislocations, joints de grains, surface) où ils peuvent disparaître.

Boucles de dislocations :

- Regroupement des interstitiels sous forme de « disques » dans la matrice



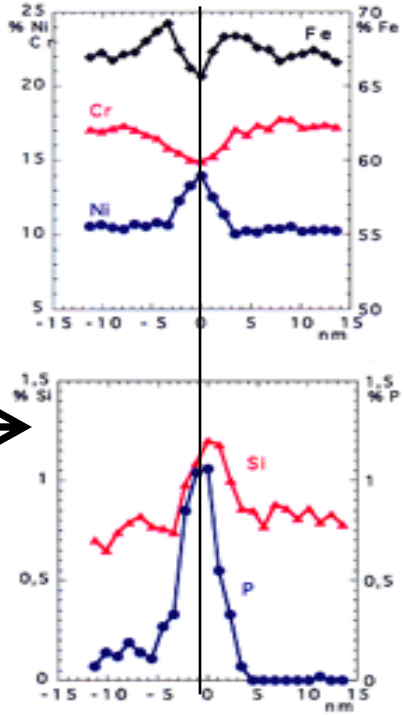
Images MET

ségrégations aux joints de grains (10 nm) :

- Flux de lacunes de la matrice vers le joint, entraînant un flux inverse d'atomes (Fe, Cr, Ni),
flux d'autant plus fort que le coefficient de diffusion sera élevé : Cr diffusera donc plus vite que Ni du joint vers la matrice...

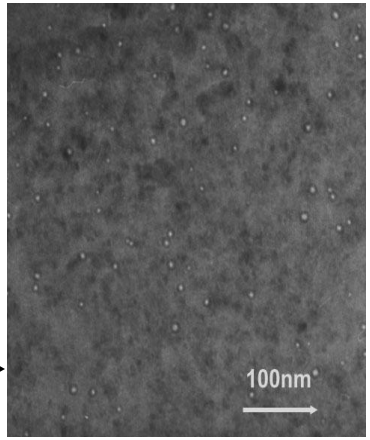
- Flux d'atomes interstitiels (Fe, Cr, Ni) de la matrice vers le joint,
flux d'autant plus fort que le coefficient de taille sera faible : Le Cr diffusera plus lentement de la matrice vers le joint...

Joint de Grain



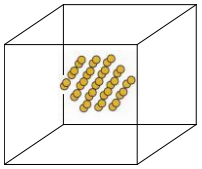
Cavités, bulles d'hélium :

- Regroupement des lacunes (et/ou des atomes de gaz) sous forme de cavités (ou bulles)



Conséquences de l'évolution microstructurale sur les propriétés des matériaux d'internes de cuves

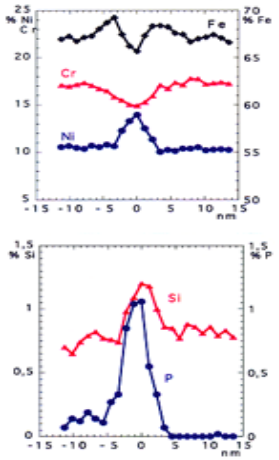
Boucles de dislocations :



→ **DURCISSEMENT**

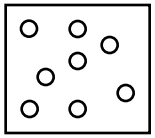
↓

Ségrégations aux joints de grains :



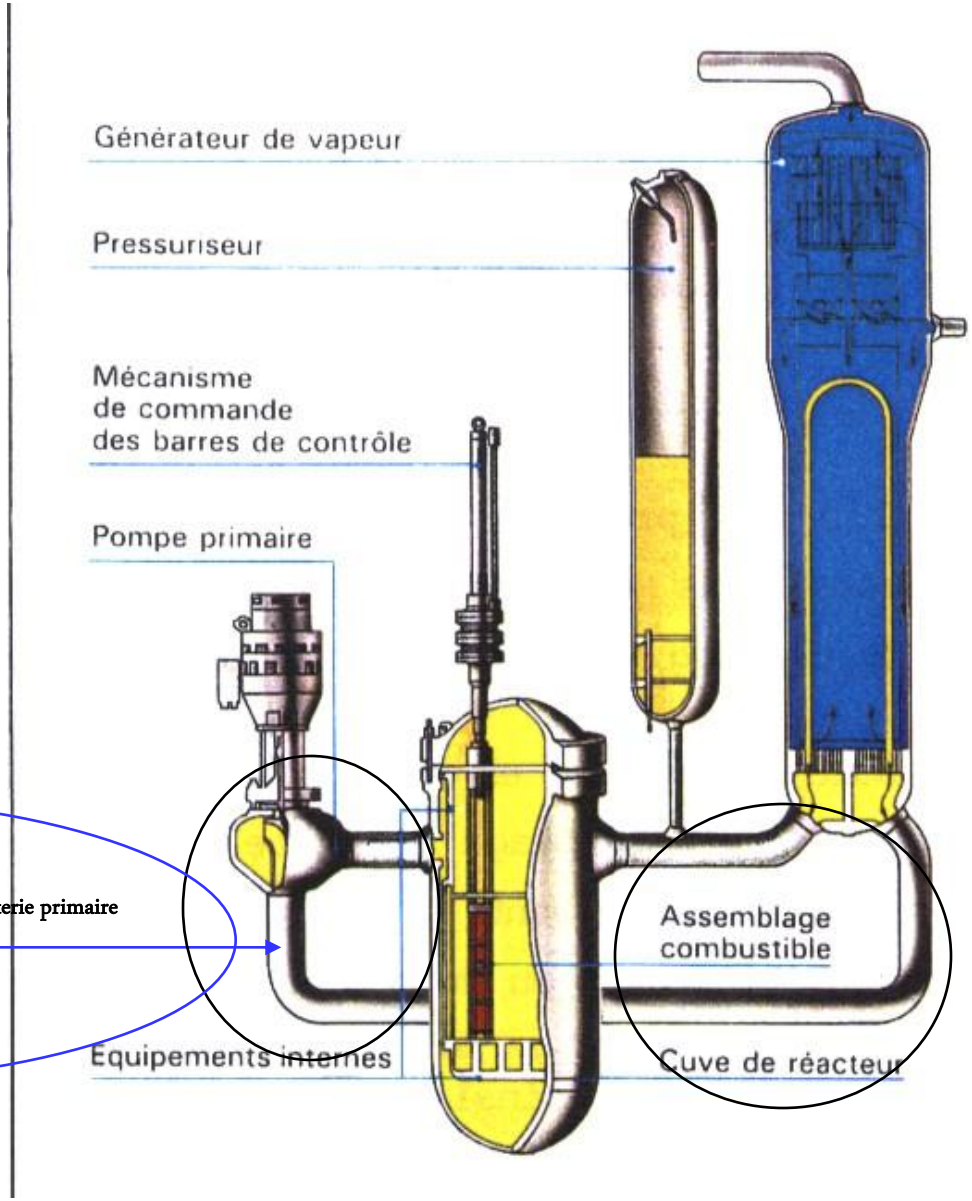
→ **SENSIBILISATION POTENTIELLE A LA CORROSION**

Cavités, bulles d'hélium :



→ **GONFLEMENT POTENTIEL**

III- La tuyauterie du Circuit Primaire

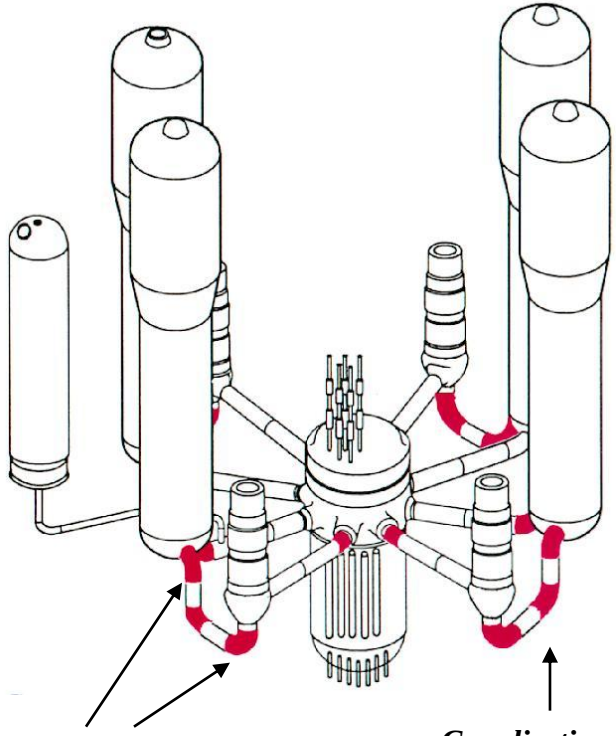


VIEILLISSEMENT THERMIQUE

Tuyauterie primaire

VIEILLISSEMENT THERMIQUE DES PRODUITS MOULES DU CPP
Principales caractéristiques des composants

Le circuit primaire : les coudes moulés



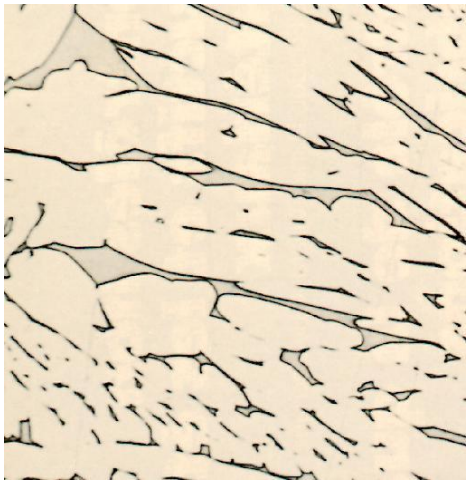
« Coudes moulés »

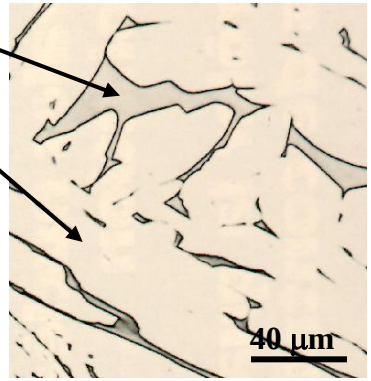
Canalisations primaires

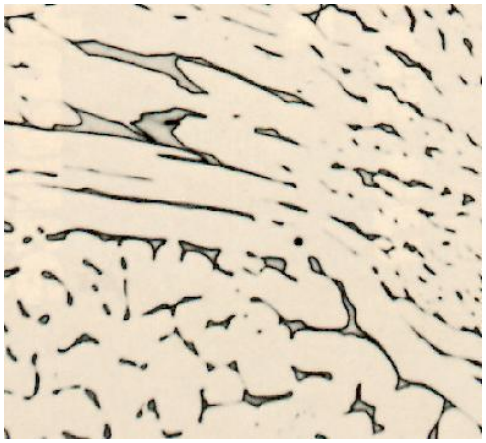
Les coudes du circuit primaire sont moulés.
On a choisi des aciers austéno-ferritiques qui présentent une bonne aptitude au moulage.

Z3CND20-10M ou Z3CN19-10M
20% Cr - 10% Ni - 2,5% Mo - 1% Si – 0,003% C

Ces aciers sont biphasés :
- une phase bcc (ferrite)(5 à 25%)
- une phase fcc (austénite)







En refroidissant à partir de l'état liquide , vers 1500°C apparaissent les premiers cristaux de ferrite. Vers 1450°C, l'acier est solidifié et entièrement ferritique. A partir de 1350°C, des germes d'austénite apparaissent aux joints de grains, puis croissent.

VIEILLISSEMENT THERMIQUE DES PRODUITS MOULES DU CPP
Raisons du choix de l'acier

Gros composants formes compliquées

↓

MOULAGE
Problèmes :
Retassures
Fissuration à chaud

↓

Solution : solidification ferritique ou austénoferritique

Bonne résistance à la corrosion (milieu primaire)

↓

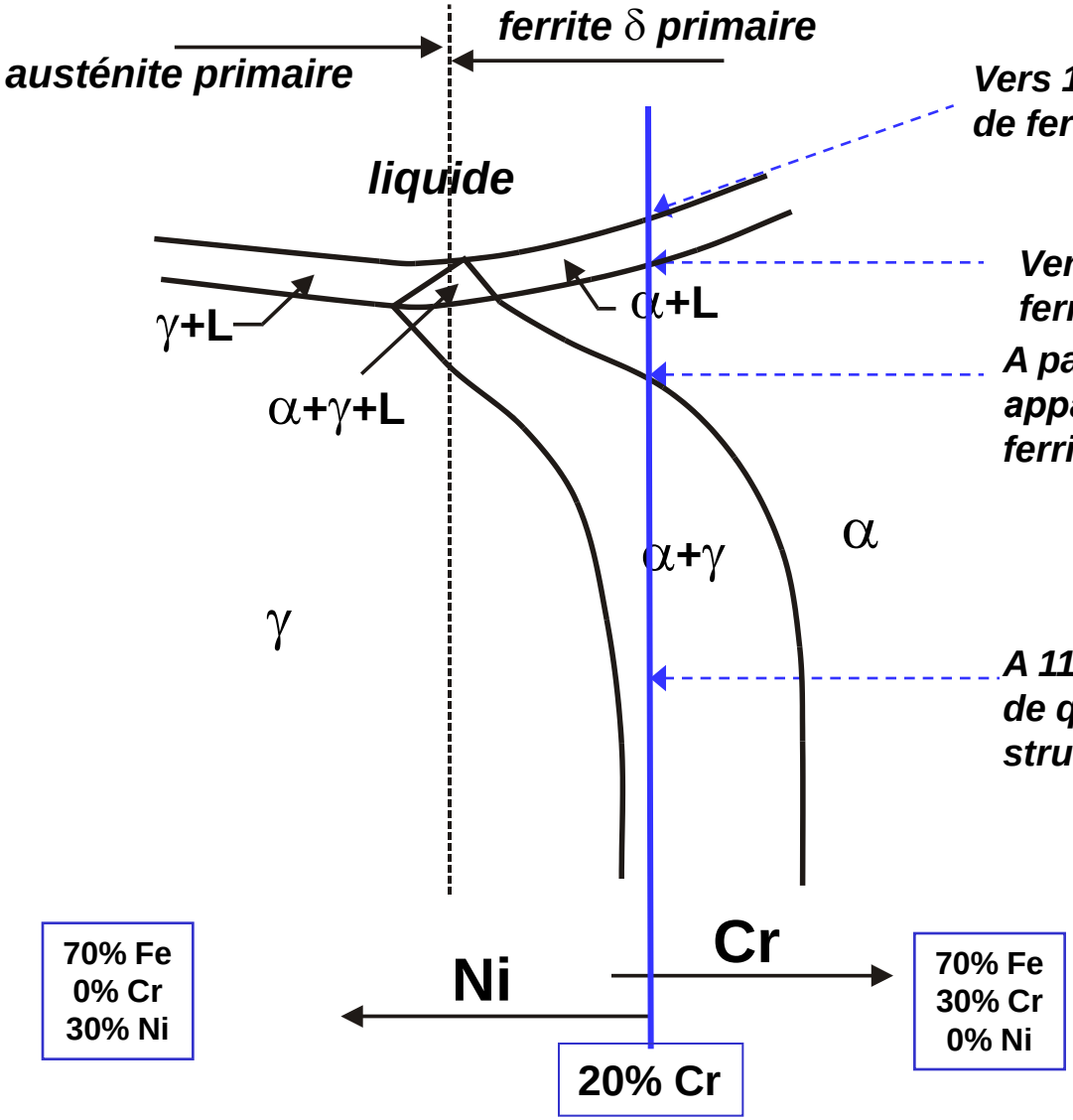
ACIER INOXYDABLE

CHOIX : Acier inoxydable austénoferritique **Z8CND20-10M** (5 à 25 % de ferrite), puis **Z2CND20-10M** pour diminuer la sensibilité à la corrosion intercristalline, puis **Z2CN19-10M** pour diminuer la sensibilité au vieillissement thermique

De plus la ferrite permet d'améliorer la résistance à la corrosion intercristalline et les caractéristiques mécaniques (20% de ferrite, gain de 100 MPa sur la limite d'élasticité)

VIEILLISSEMENT THERMIQUE DES PRODUITS MOULES DU CPP

Solidification des aciers austéno-ferritiques



Vers 1500°C apparaissent les premiers germes de ferrite dans le bain liquide.

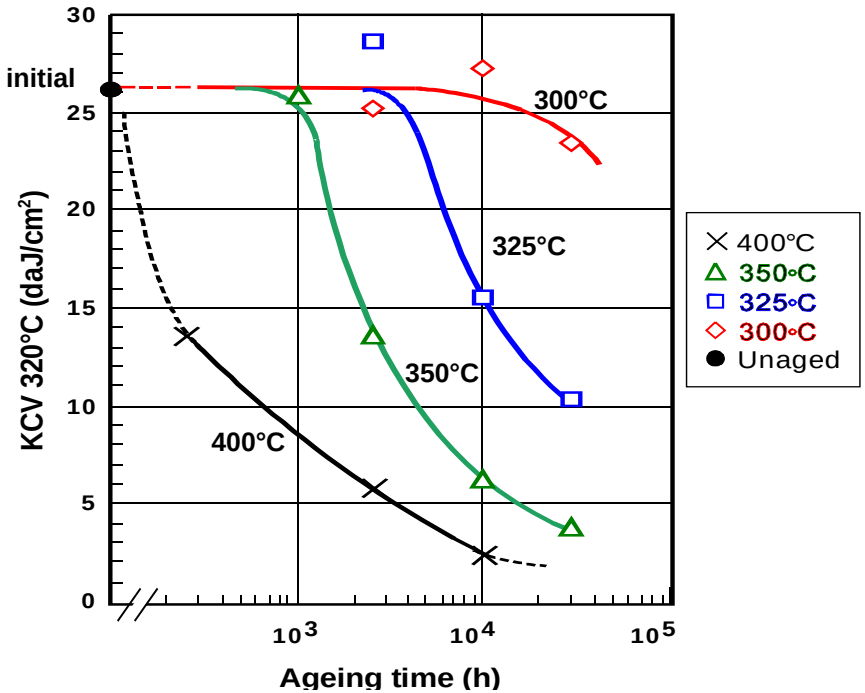
Vers 1450°C, l'acier est solidifié et entièrement ferritique.

A partir de 1350°C, des germes d'austénite apparaissent à l'état solide aux joints de grains ferritiques, puis croissent.

A 1100°C (température du dernier traitement de qualité : « traitement d'hypertrempe »), la structure est austéno-ferritique.

VIEILLISSEMENT THERMIQUE DES PRODUITS MOULES DU CPP
Problème

Sous l'effet de la température de service (290°C-325°C)
4. Durcissement et fragilisation des composants en aciers austénoferritiques



Cinétiques d'évolution de la résilience avec la durée du vieillissement à différentes températures

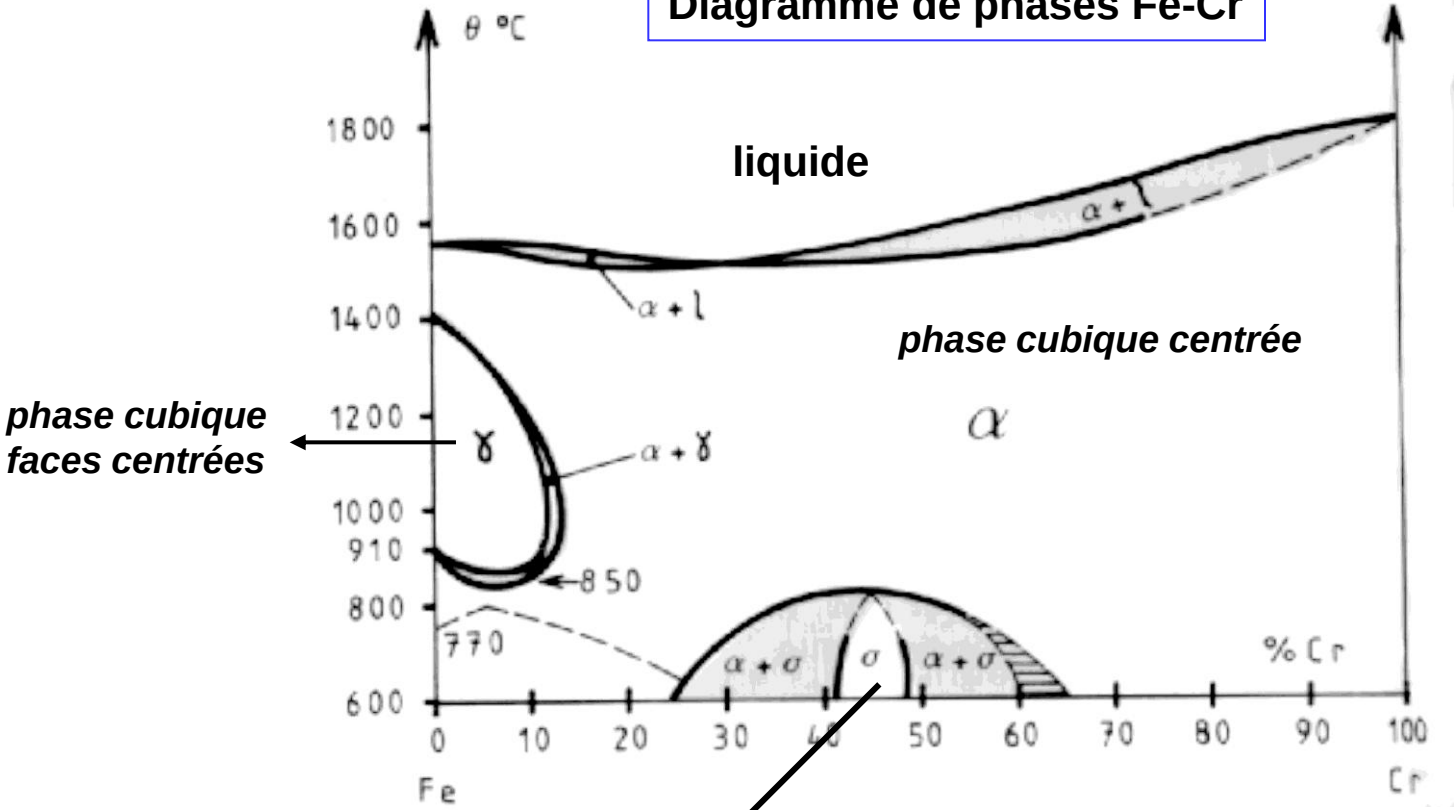
Ce type d'acier est connu pour présenter une fragilisation pour des maintiens prolongés (« vieillissement ») vers 475°C.
Les réacteurs fonctionnant à des températures comprises entre 280 et 330°C, il ne devait pas y avoir de risque.

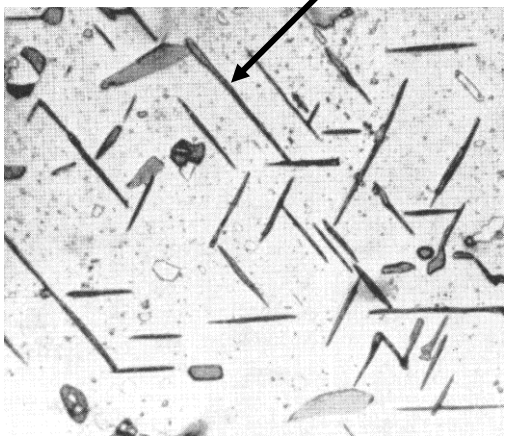
Or, lors d'essais, il est apparu que ces aciers pouvaient également vieillir à ces températures, et ceci d'autant plus que leur teneur en Mo était élevée.

La première décision a été d'interdire les aciers au Mo…

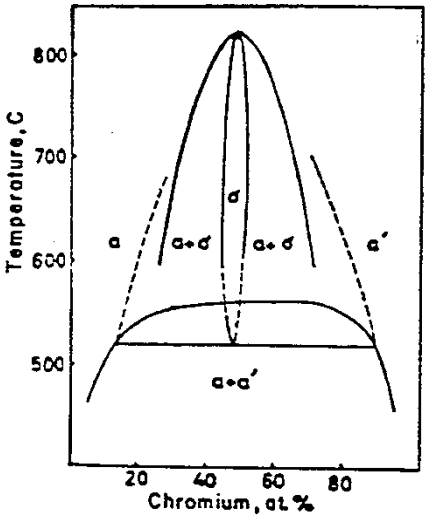
Mais le plus important était de comprendre l'origine de la fragilisation

Diagramme de phases Fe-Cr





phase σ et
lacune de miscibilité



VIEILLISSEMENT THERMIQUE DES PRODUITS MOULES DU CPP

Que se passe-t-il dans le matériau?

4. *Décomposition spinodale de la ferrite*

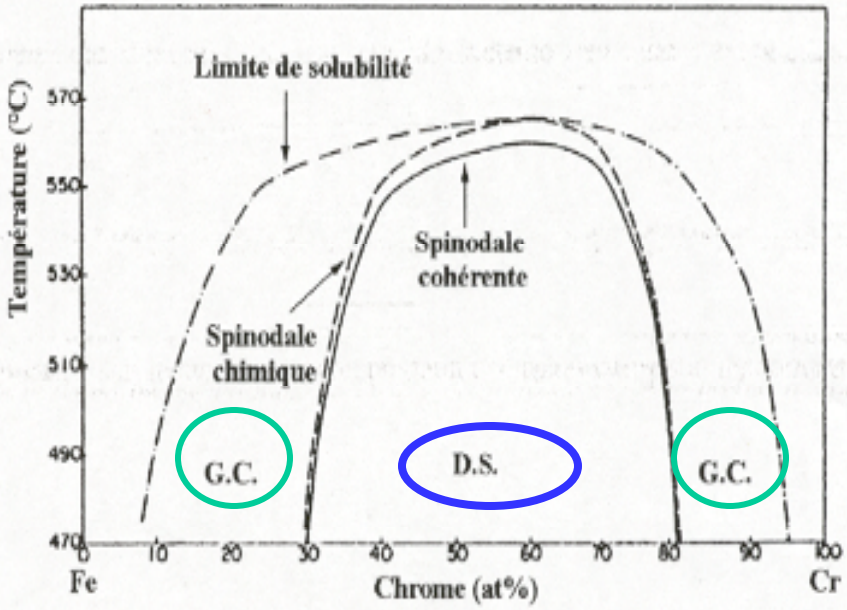
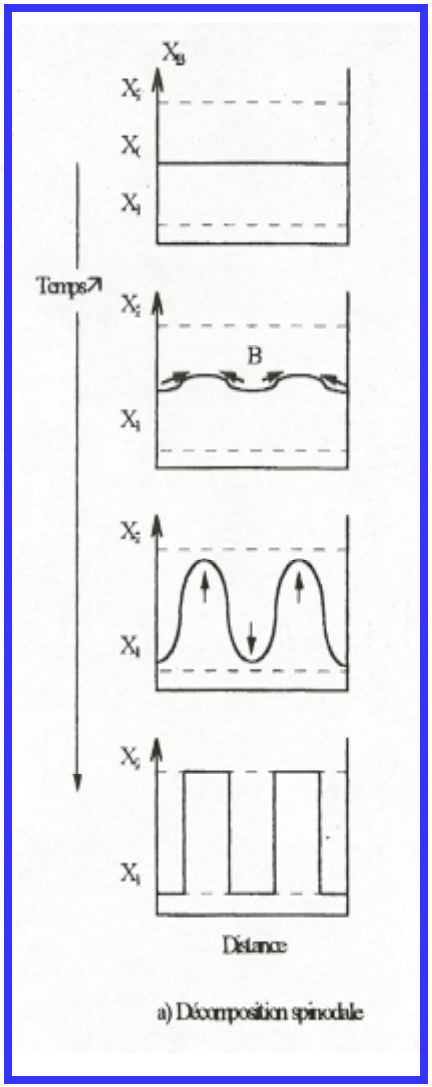
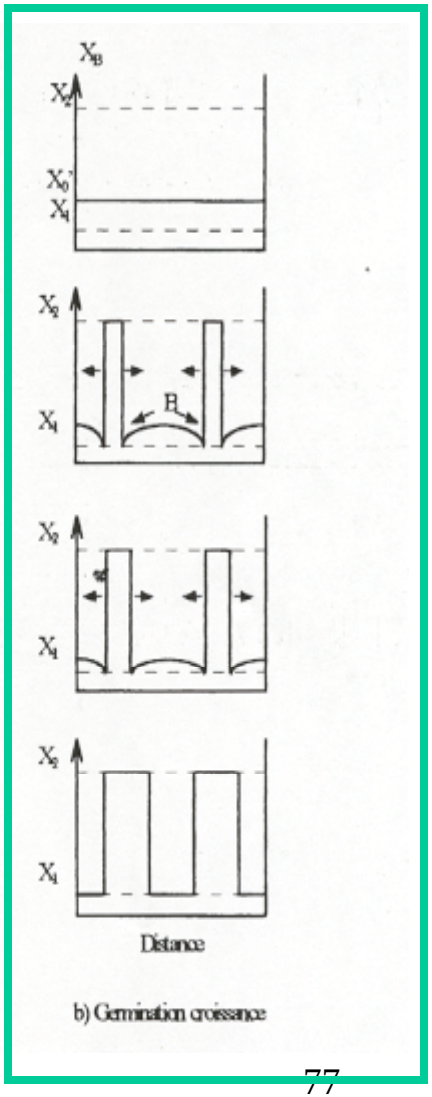


figure I. 7
Lacune de démixtion du système Fe-Cr [CHA71]

D.S. Décomposition Spinodale
G.C. Germination Croissance



a) Décomposition spinodale



b) Germination croissance

VIEILLISSEMENT THERMIQUE DES PRODUITS MOULES DU CPP
Que se passe-t-il dans le matériau?

1 - DANS L'AUSTÉNITE : PAS D'ÉVOLUTION
2 - DANS LA FERRITE :

Décomposition spinodale de la solution solide ferritique en zones respectivement

- riches en fer (α),
- riches en chrome (α') .

Phases intermétalliques
(type G, structure $Ni_{16}Ti_6Si_7$),

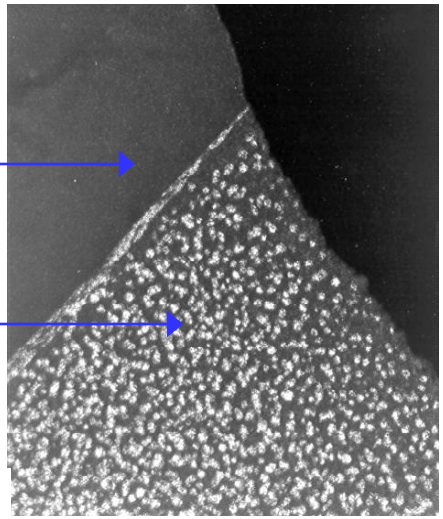
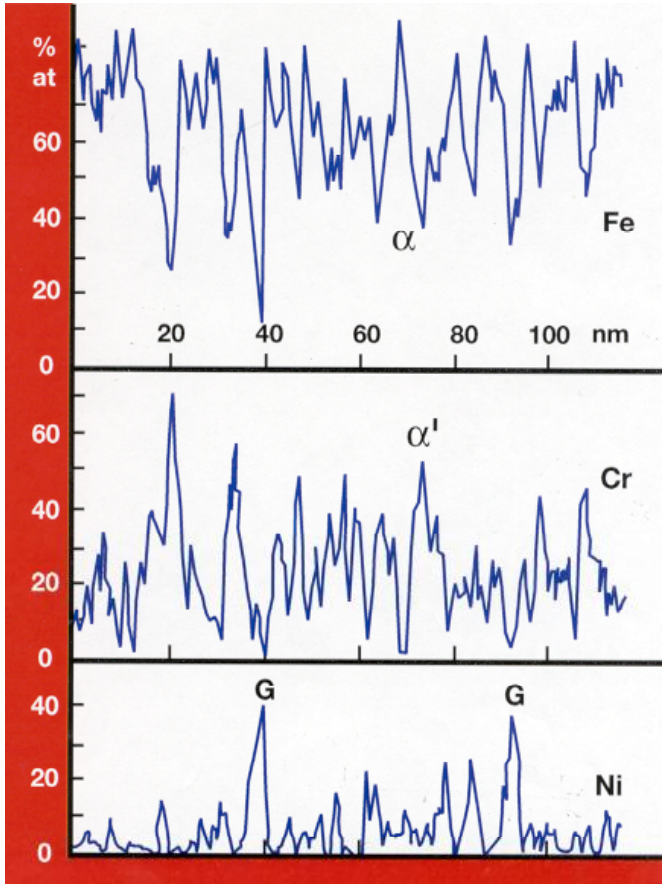


Image MET en champ sombre de la phase G dans la ferrite d'un acier vieilli 10 000 h à 400°C

VIEILLISSEMENT THERMIQUE DES PRODUITS MOULES DU CPP
Identification et Quantification de la Décomposition Spinodale de la ferrite vieillie par Sonde atomique



Profils à l'intérieur de la ferrite vieillie 10 000 h à 400°C
Zones riches en Cr et pauvres en fe
Zones riches en Fe et pauvres en Cr

- **Mise en évidence, analyse et quantification de la décomposition spinodale α, α' .**

- **Analyse de la précipitation de phase G (Echelle atomique, statistique ?)**

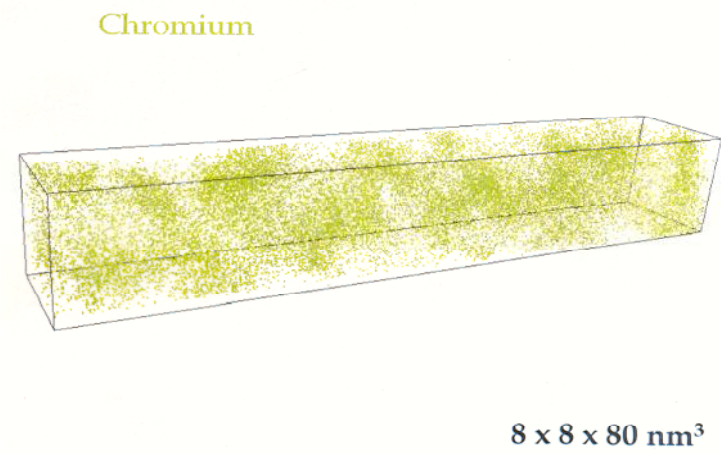


Image en 3-D de la répartition des atomes de Cr à l'intérieur de la ferrite vieillie 30 000 h à 400°C

Université de Rouen

Solutions

réacteurs en service :

suivre les évolutions microstructurales de l'acier par CND (PTE)

nouveaux réacteurs :

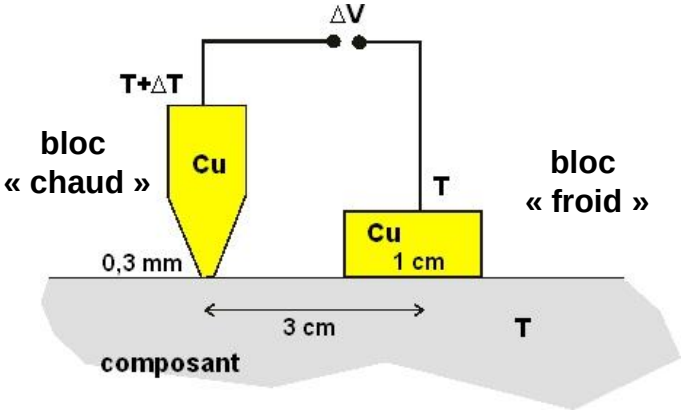
- **modifier la composition des aciers austéno-ferritiques (moins de ferrite)**
- **utiliser d'autres nuances d'aciers (en éliminant l'étape « moulage »)**

Sur les nouvelles centrales (N4) les coudes sont en aciers austénitiques forgés

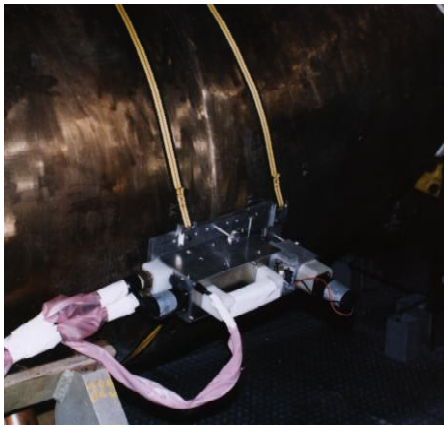
Le PTE (pouvoir Thermoélectrique)

développé par EDF en collaboration avec l'INSA de Lyon pour le contrôle non destructif des circuits des centrales nucléaires

lié à l'effet Seebeck :



Il permet de suivre le vieillissement des structures et des composants de grandes dimensions (ténacité, résilience) sans prélèvement de matière



$$\Delta V = (S_{ech} - S_{bloc}).\Delta T = \Delta S.\Delta T$$

T=15 à 25°C
ΔT=10°C
S : µV/K →

sensible à :
- **la composition de la solution solide ($\Delta S = \Sigma b_i C_i$)**
- **la microstructure et les défauts cristallins (dislocations)**
- **les traitements thermiques et la précipitation**

Avantages :
- **technique non destructive**
- **mesure facile et rapide**
- **indépendante de la géométrie de l'échantillon *(application à la cuve, au circuit primaire …)***
- **très grande sensibilité**

Inconvénients :
- **sensibilité « multifactorielle » *(déconvolution difficile)***
- **peu d'études sur les paramètres sensibles**

IV- Les gaines de combustible

1ère barrière de confinement entre les produits de fission et l'environnement doit assurer l'étanchéité durant la vie du combustible, dans le réacteur, dans les piscines de refroidissement et éventuellement durant le stockage à long terme.

Alliage actuel :
Zircaloy 4

Sn	1,20 - 1,7
Fe	0,18 - 0,24
Cr	0,07 - 0,13

(% en poids)

Alliage futur :
M5
(Zr - 1%Nb)

RAISONS DU CHOIX DU MATERIAU

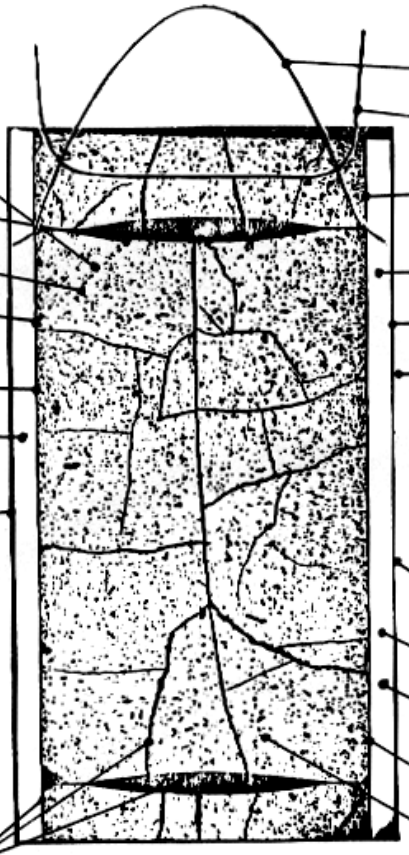
- **très faible section efficace d'absorption des neutrons thermiques**
- **très bonnes propriétés mécaniques (fluage)**
- **bonne résistance à la corrosion**

hc → βcc (864°C) → fusion 1855°C

La gaine est sujette à :
1 – une oxydation sur la face externe (milieu aqueux primaire)
2 – une oxydation sur la face interne (contact avec l'oxyde combustible)
3 – une déformation due au contact avec le combustible (IPG) avec risque de fissuration par corrosion sous contrainte

IPG : Interaction Pastille-Gaine

Les phénomènes physiques auxquels sont soumis la gaine et le combustible sont nombreux, complexes et pas entièrement compris...



MECANIQUE

- Comportement élastoplastique du combustible
- Comblement évidements
- Repositionnement des fragments
- Composée d'interface (proprétés mécaniques)
- Conditions d'accrochage
- relaxation des contraintes par la gaine (comportement viscoplastique)
- Effet de la couche de zircone

THERMIQUE

- Gradient thermique radial
- Profil de génération de puissance
- Transfert thermique dans le jeu rôle des composés d'interface
- Transfert thermique dans la gaine
- Transfert thermique dans la zircone
- Transfert thermique zircone/réfrigérant

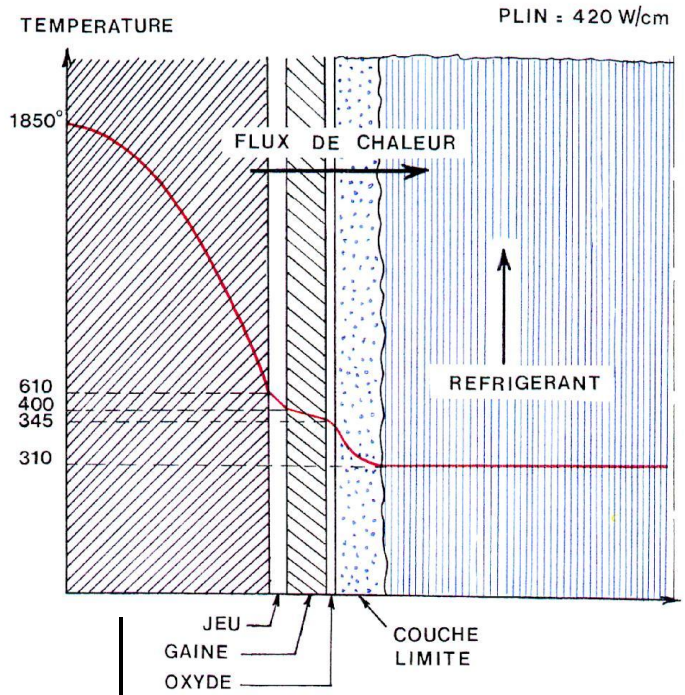
PHYSICO-CHIMIE

- Formation de zircone
- Hydruration
- Evolution des propriétés mécaniques de la gaine
- Formation des composés d'interface
- Combustible:évolution des propriétés locales:
  - Densité: densification, gonflement solide et gazeux
  - Relâchement des gaz (Xe et Kr)
  - Conductivité thermique
  - Stoechiométrie et chimie
  - Taille de grains

PRESSION INTERNE DES GAZ

- Volumes d'expansion et leur températures:
  - Jeu
  - Chambre supérieure
  - Trou central
  - Fissures thermiques
  - Porosité ouvertes
  - Eclats et chamfreins
  - Evidement d'extrémité

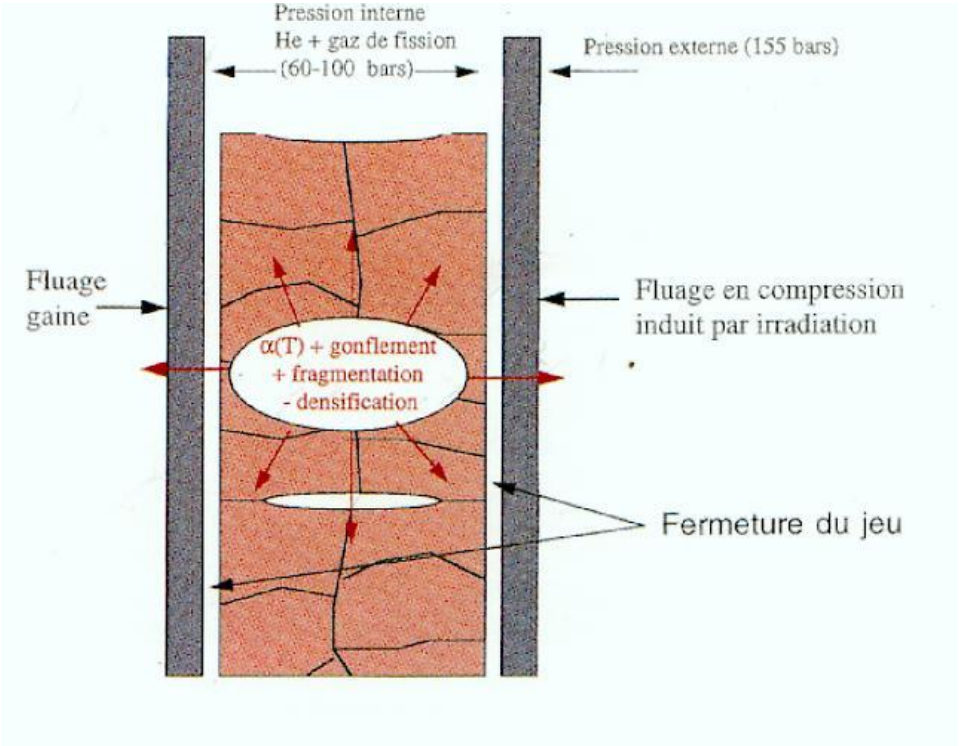
Température :



L'oxyde est un mauvais conducteur thermique, d'où un fort gradient interne (400 à 700°C et 1200°C en limite autorisée)

La gaine a une très bonne conductibilité d'où un faible gradient (40°C) la zircone est par contre un bon isolant..

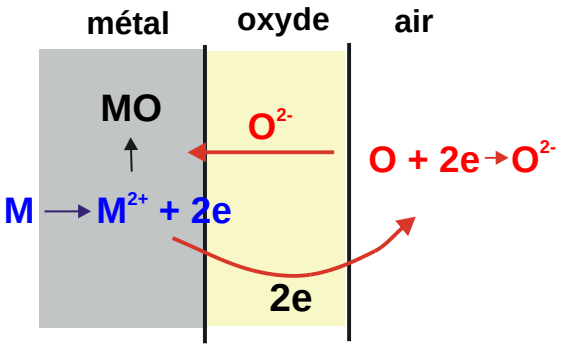
Pression :



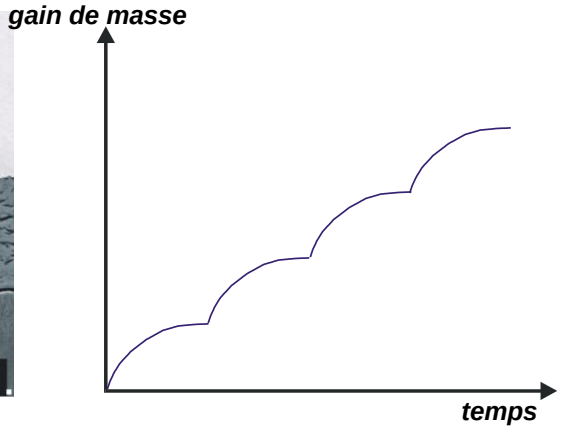
Pression externe : 155 bars
Pression interne :
- **initiale (He) : 25 à 30 bars**
- **en service : 60 bars**

1 – Oxydation et corrosion de la face externe du tube

Dans le cas de l'oxydation du Zr, le métal diffuse très lentement dans l'oxyde. L'oxydation se produit donc par diffusion de l'oxygène à travers l'oxyde, celui-ci se développant à partir de l 'interface métal-oxyde.



Dans ce type d'oxydation, la diffusion de l'oxygène diminue lorsque l'épaisseur de l'oxyde croît. La courbe caractéristique est une parabole (avec saturation)



Dans le cas du Zr, la zircone (ZrO_2) est poreuse et se fissure dès qu'elle est trop épaisse, la diffusion de l'oxygène peut alors reprendre, d'où une croissance continue par palier...

La proportion de métal diminuant en conséquence, il y a risque de rupture si l'oxydation devient trop importante...

2 – Déformation de la gaine, IPG et risque de corrosion sous contrainte

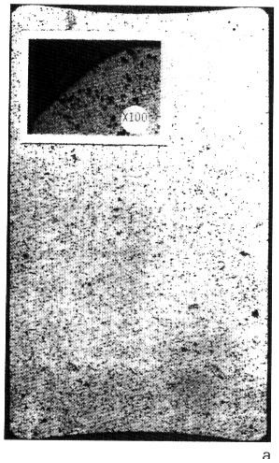
La pastille de combustible

(UO_2 enrichie à 4-5% ^{235}U)

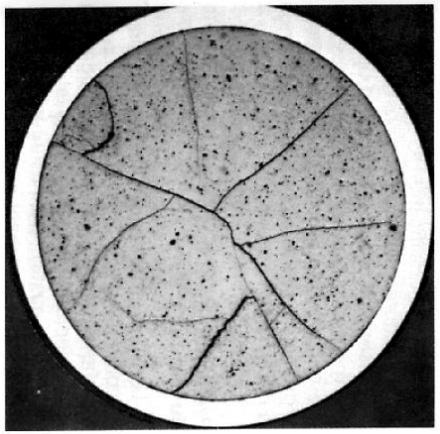
Sous l'effet de la température :

- fracturation

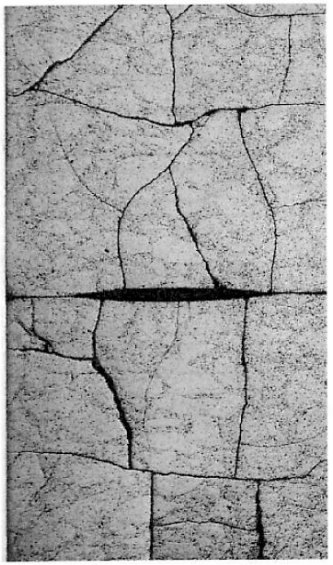
En raison du fort gradient thermique, le centre de la pastille se dilate plus vite que la périphérie, créant un champ de contraintes supérieur à la limite de rupture du matériau et provoquant une fissuration radiale et axiale...



Pastille neuve non irradiée



Fissuration radiale

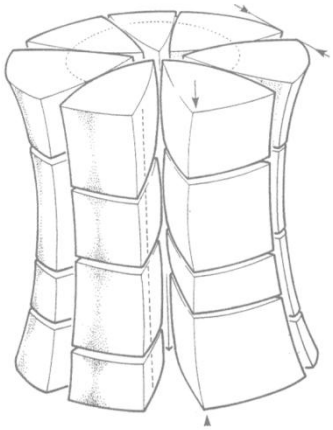


Fissuration axiale

- densification

Il subsiste une certaine porosité qui sous l'effet de la température et de l'irradiation entraîne une poursuite du frittage. Ce mécanisme est appelé « densification »

- déformation de la pastille (effet diabolo)



Fragmentation en forme de diabolo due à ce que la dilatation thermique dans la direction axiale est plus forte au centre qu'à la périphérie.
De plus, le frittage sous irradiation est plus élevé au centre.

Effet diabolo

- recristallisation de l 'oxyde

Modifications radicales de la structure physico-chimique de l 'oxyde.

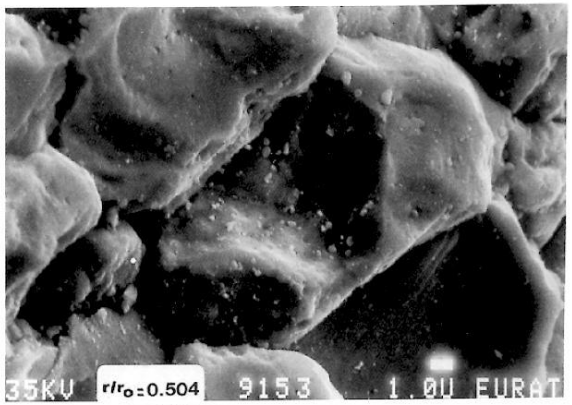


Image des grains initiaux

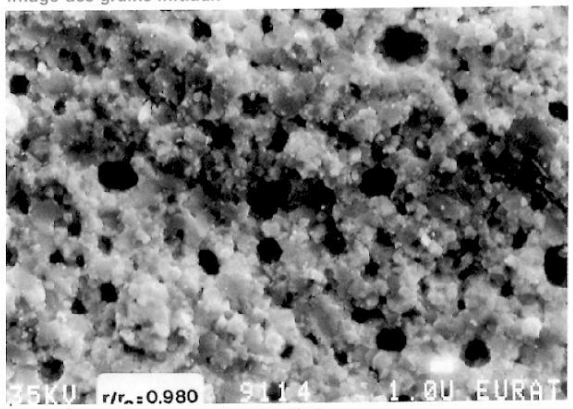


Image lorsqu'il y a eu restructuration

Observations en microscopie à balayage de la surface de rupture

gonflement

Fission ⟶ **produits de fission**

- **solide (70%)**
- **gazeux ou volatils (30%)(Xe, Kr, I_2, Cs)**

Conséquences

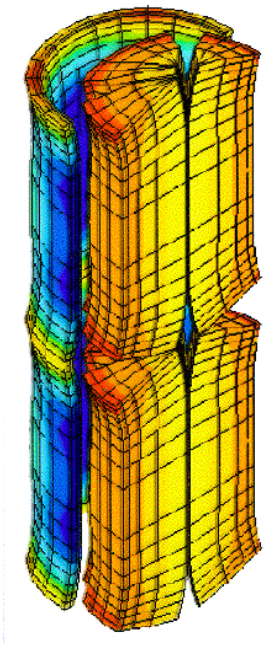
La déformation de la pastille va d'abord fermer le jeu pré-existant, puis déformer la gaine. La contrainte interne passe de 30 bars à 60 bars. La rupture de la couche d 'oxyde interne protectrice peut entraîner la diffusion de produits de fission (iode et césium) dans la gaine. L'iode favorise très fortement la corrosion sous contrainte du Zr, provoquant la fissuration (inter puis transgranulaire) et la rupture de la gaine.

Ce mode de rupture a été observé dans les réacteurs à eau bouillante, mais jamais jusqu 'à présent sur les réacteurs à eau sous pression.

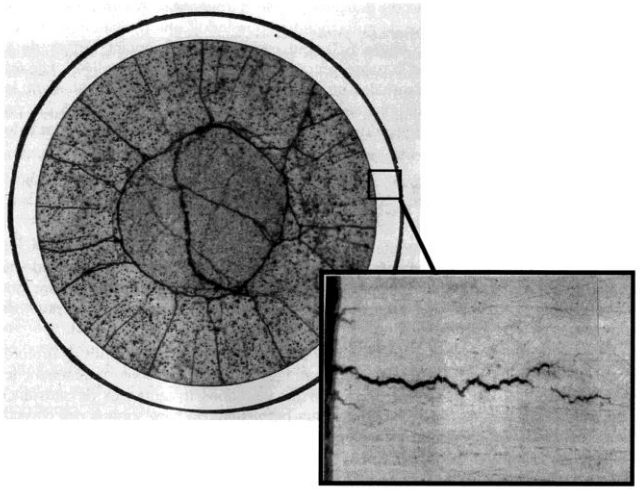
La gaine étant la première barrière entre les produits de fission et l'environnement, il est primordial de préserver l 'intégrité de celle-ci.

D'importantes études expérimentales ou de simulation (code CYRANO) sont menées pour comprendre les mécanismes précis de cette corrosion.

Le risque est également important dans le cas de l 'entreposage longue durée du combustible usagé



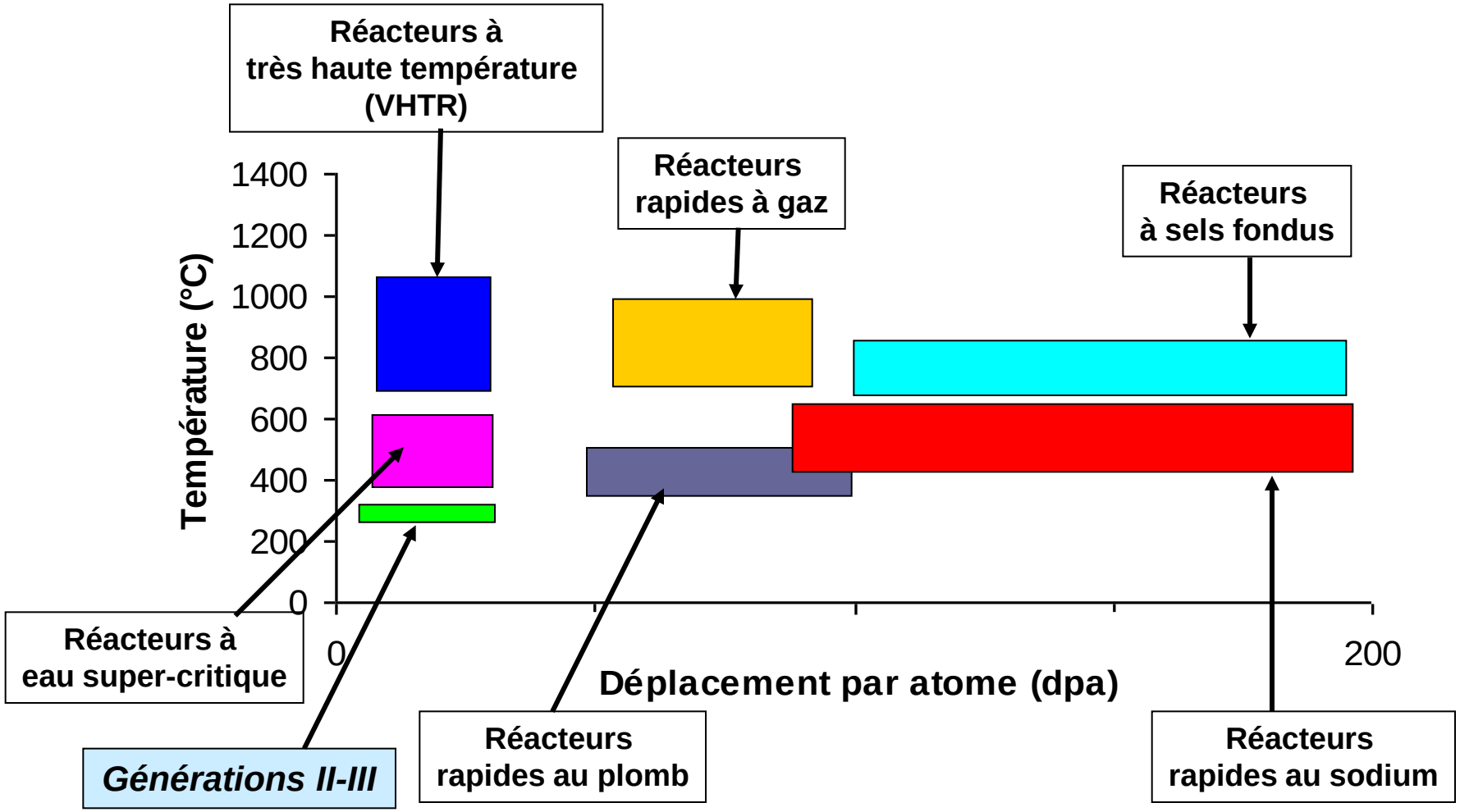
Simulation par éléments finis de l 'interaction pastille gaine (IPG)



Fissuration de la gaine liée à l'IPG

Les réacteurs de 4ème génération : quelques problèmes de matériaux

Dans les réacteurs du futur, par rapport aux réacteurs actuels, on devra faire face à des températures plus élevées et/ou à une irradiation beaucoup plus importante.



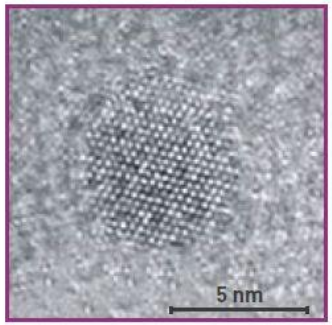
Matériaux pour systèmes nucléaires de 4ème génération

	SFR (RNR Na)	GFR (RNR gaz)	LFR & ADS cible	VHTR	SCWR (super critique)	MSR (sels fondus)	Fusion	
Caloporteur T (°C)	Na liquide <5 bars 400-550°C	He, 70 bars 480-850°C	Plomb & PbBi 380-500°C	He, 70 bars 350-950°C	Eau 280-550°C 24 MPa	Sels fondus, 500-720°C	He, 80 b 300-550°C	Pb-17Li 480-700°C
Structures du cœur	Tube hexagonal *Aciers F/M* Gainage *Aciers F/M Avancés F/M ODS*	Gainage combustible et structures du cœur *Composite SiCf-SiC*	Gainage combustible & Cible, fenêtre *Aciers F/M ODS*	Cœur *Graphite* Barres de contrôle *C/C SiC/SiC*	Gainage combustible & structures du cœur *Alliages base Ni & Aciers F/M*	Structures du cœur *Graphite* *Hastelloy*	Couverture Première paroi *Aciers F/M ODS SiCf-SiC*	
Temp. °C	*400-700*	*550-1200*	*380-550*	*400-1600*	*350-620*	*500-800*	*350-750*	
Dose	Gainage *200 dpa*	*60/90+ dpa*	Gainage *~100 dpa* ADS/cible *~100 dpa*	*7/25 dpa*			*~ 100 dpa* 10 ppmHe/dpa 45 ppmH/dpa	
Autres composants		Echangeur intermédiaire ou turbine *Alliage Ni*		Echangeur intermédiaire ou turbine *Alliage Ni*				

Aciers F/M : aciers à structure ferritique-martensitique
AFMA : aciers ferrito-martensitiques avancés
ODS : Oxide Dispersed Strenghtened, durcis par dispersion de nanoprécipités d'oxydes

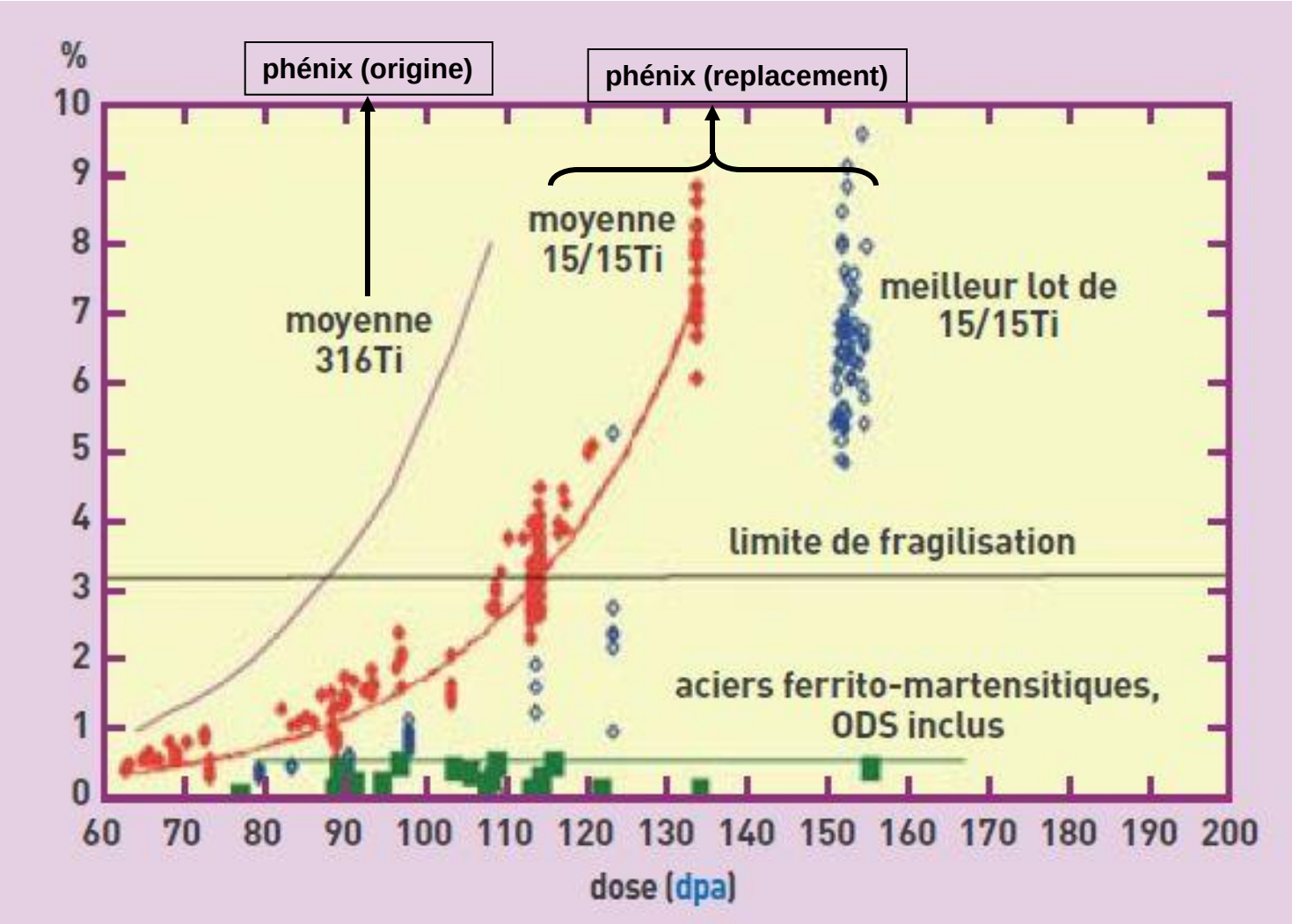
12YWT (Fe – 13%Cr-3%W, Ti – Y_2O_3)
MA957 (Fe – 14%Cr-3%Mo, Ti – Y_2O_3)

Observation en TEM d'une nanoparticule de $Y_2Ti_2O_7$



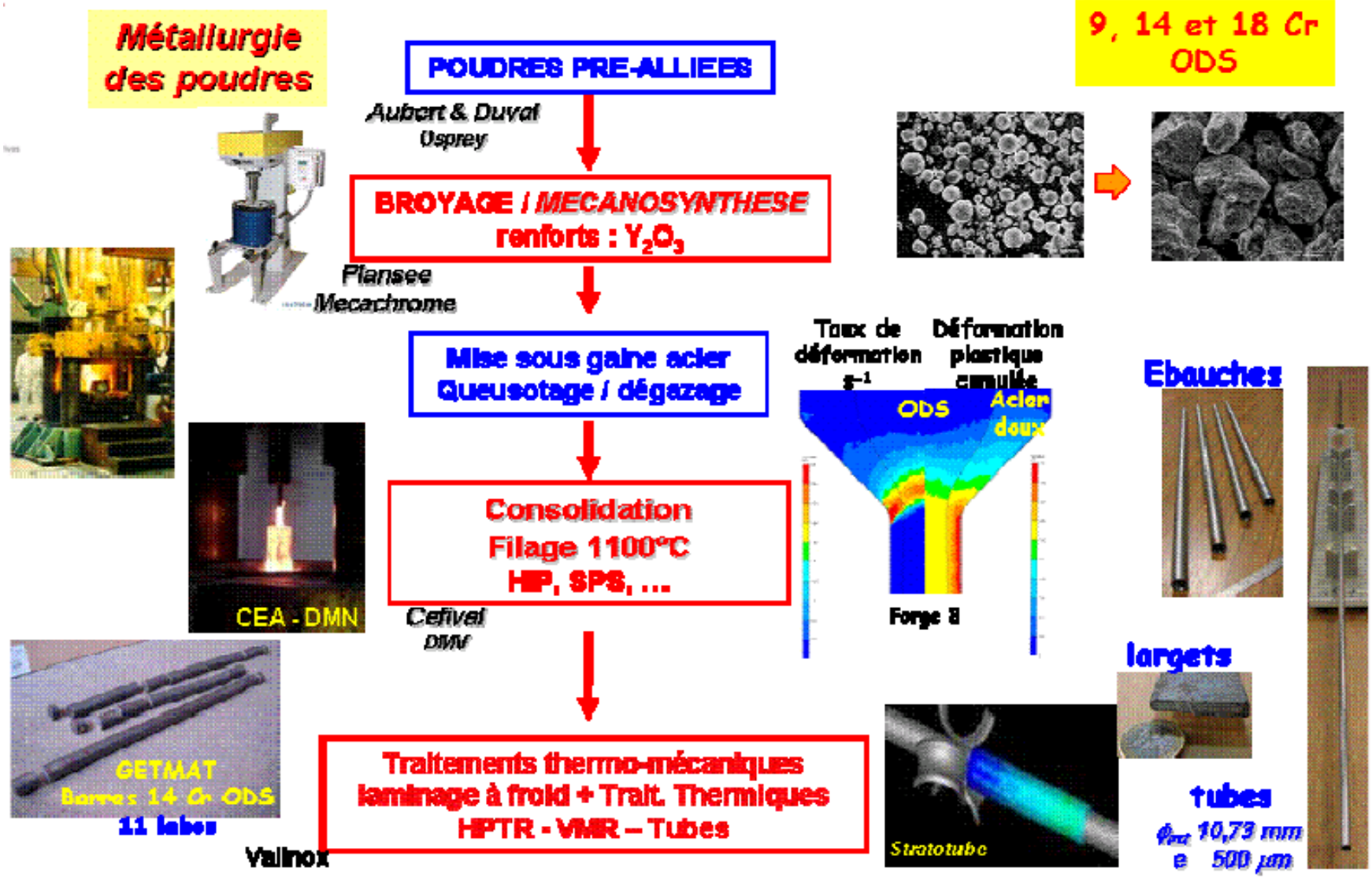
Intérêts des aciers F/M ODS :
-***meilleure résistance à l'irradiation***
-***meilleure au fluage thermique***

gonflement des gaines de combustible de RNR Na



FABRICATION DES GAINES ODS

Gaine ODS Elaboration



Matériaux envisagés pour application en cœur pour les six systèmes étudiés par le Forum GEN IV.

	VHTR (RTHT)	SFR (RNR-Na)	GFR (RNR-G)	SCWR (RESC)	LFR (RNR-Pb)	MSR (RSF)
combustible U, U-Pu	particules revêtues SiC, ZrC	MOX métal	carbure nitrure	UO_2 MOX	nitrure	fluorure (chlorure)
combustible TRU		MOX métal	carbure nitrure			fluorure (chlorure)
matériaux de cœur	graphite C/C,SiCf/Sic	AISI AFMA, ODS	SiC, TiC autres céramiques	alliages de Ni		graphite
matériaux de structure	AFMA	AFMA, ODS aciers aus-ténitiques	AFMA, ODS alliages de Ni	alliages de Ni		hastelloys

T91 (9Cr 1Mo V Nb)
T92 (9Cr 0,5Mo 2W V Nb)
T122 (12Cr 0,5Mo 2W V Nb Cu)

617 (Ni-Cr-Co-Mo)
230 (Ni – Cr – W)

AFMA : aciers ferrito-martensitiques avancés

AISI : aciers inoxydables austénitiques

Les réacteurs rapides au sodium (RNR-Na ou SFR)

1 – la cuve

réalisée en acier inoxydable 316
Au-delà de 550°C, risque de fluage thermique important : utilisation soit d'alliage 800 soit d'alliage base Ni

2 – Le combustible

- **initialement en alliage métallique U-Pu-Zr**
- **apparition d'un fort gonflement**
- **remplacement par des oxydes mixtes $(U,Pu)O_2$ (moins performants)**

L'oxyde fritté subit une restructuration avec migration des porosités vers le centre engendrant une cavité centrale où vont migrer les PF gazeux
On observe aussi une migration du Pu vers le centre de la pastille.

D'autres céramiques sont envisagées à base de carbures ou de nitrure :
- **meilleure conductivité thermique**
- **plus sensible au gonflement**

3 – La gaine

En acier ferrito-martensitique ODS

Les réacteurs rapides à gaz (RNR-Gaz ou GFR)

1 – La cuve

en acier martensitique T91 (9%Cr – 1%Mo)

2 - Gaine combustible pour les réacteurs rapide à gaz

Cahier des charges

Les contraintes:

Température de fonctionnement : **T ~ 500-1000°C**

Températures incidentelle-accidentelle : **T = 1600°C-2000°C**

- **1600°C :** sur des durées limitées conservation propriétés de la gaine pendant quelques heures lors de transitoires thermiques sévères – Etanchéité aux PF conservée
- **2000°C :** conservation intégrité de la structure

marge de 400°C

Conditions d'irradiation : E > 0,1MeV, 1.10^{27} n/m^2 , 40-60 dpa (3 ans)

Mais aussi :

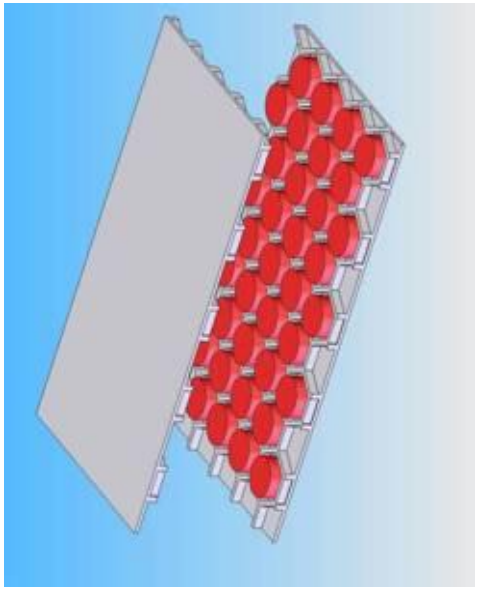
- Une résistance à rupture suffisante en conditions accidentelles
- Une capacité de déformation (0,5%)
- Un ensemble étanche (He, PF)
- Une conductivité thermique suffisante (10 W/m.K)

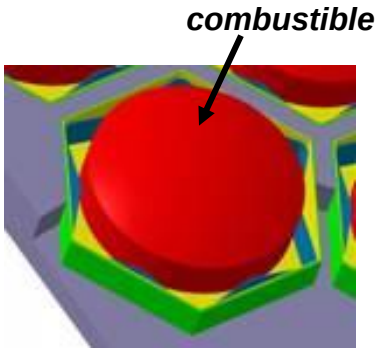
➡ ***Choix du composite SiC/SiC$_f$***

Combustible : carbures U – Pu - Ac_{mineur}

2 solutions :

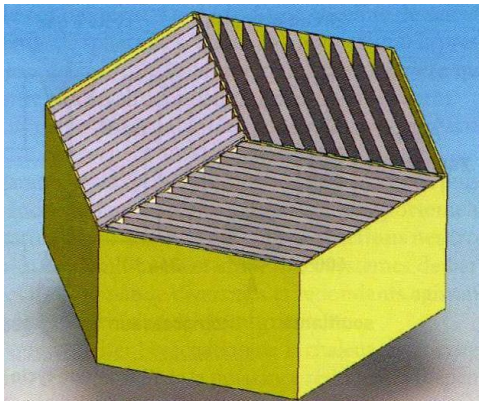
Plaques alvéolées macro-structurées en composite SiC/SiCf





250x120x10mm

aiguilles



assemblage hexagonal des éléments combustibles : les plaques sont arrangées par losange

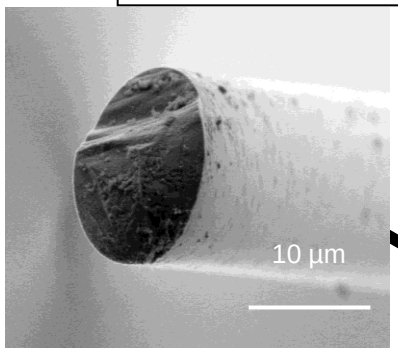
Matériau de gaine retenu : SiC-SiCf

- Caractéristiques
  - Réfractaire
  - Transparence aux neutrons
  - **Propriétés mécaniques favorables**
  - Non étanche ➔ liner

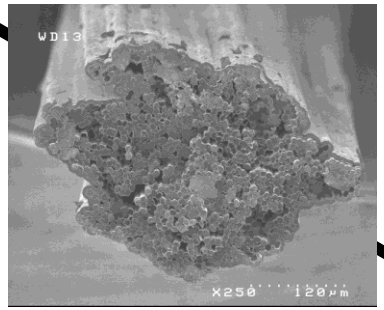
- Avantage lié au renfort de la fibre et de l'interphase
  - Meilleure tolérance aux dommages (multifissuration)

- Etudes sur ce matériau
  - améliorer les qualités intrinsèques du composite (tenue sous irradiation, conductivité thermique, propriétés mécaniques)
  - Fabricabilité (fibre, traitement de surface, interphase, matrice), assemblage…
  - Etanchéification (liner, revêtement…)
  - Vieillissement

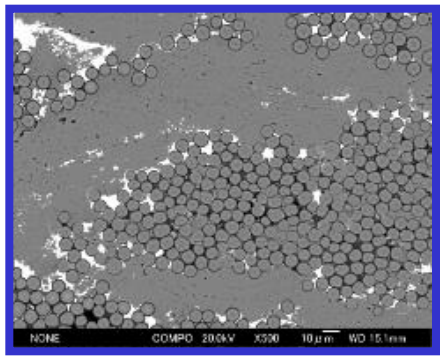
Réalisation des gaines en composite à partir de fibres de SiC tressées

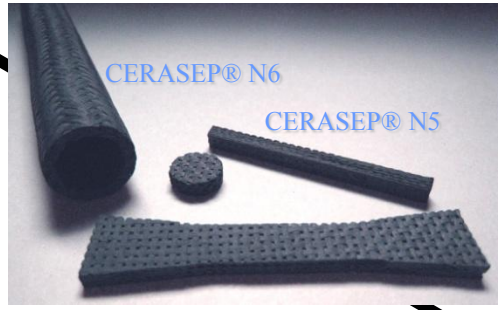


Fibre composite

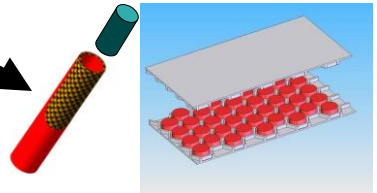


faisceau de fibres

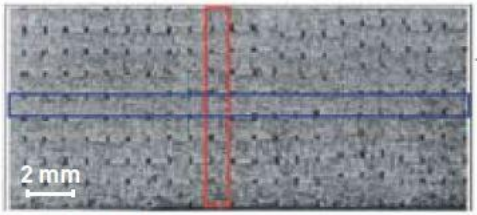




fibres tissées



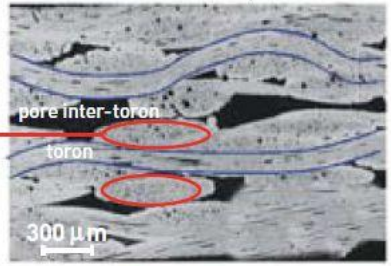
structure



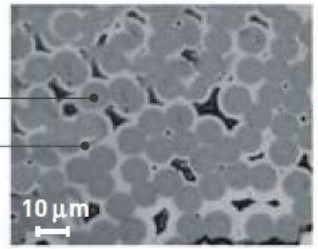
échelle macroscopique

tissu (vue de dessus)

tissu
(vue de côté : tranche)



échelle mésoscopique

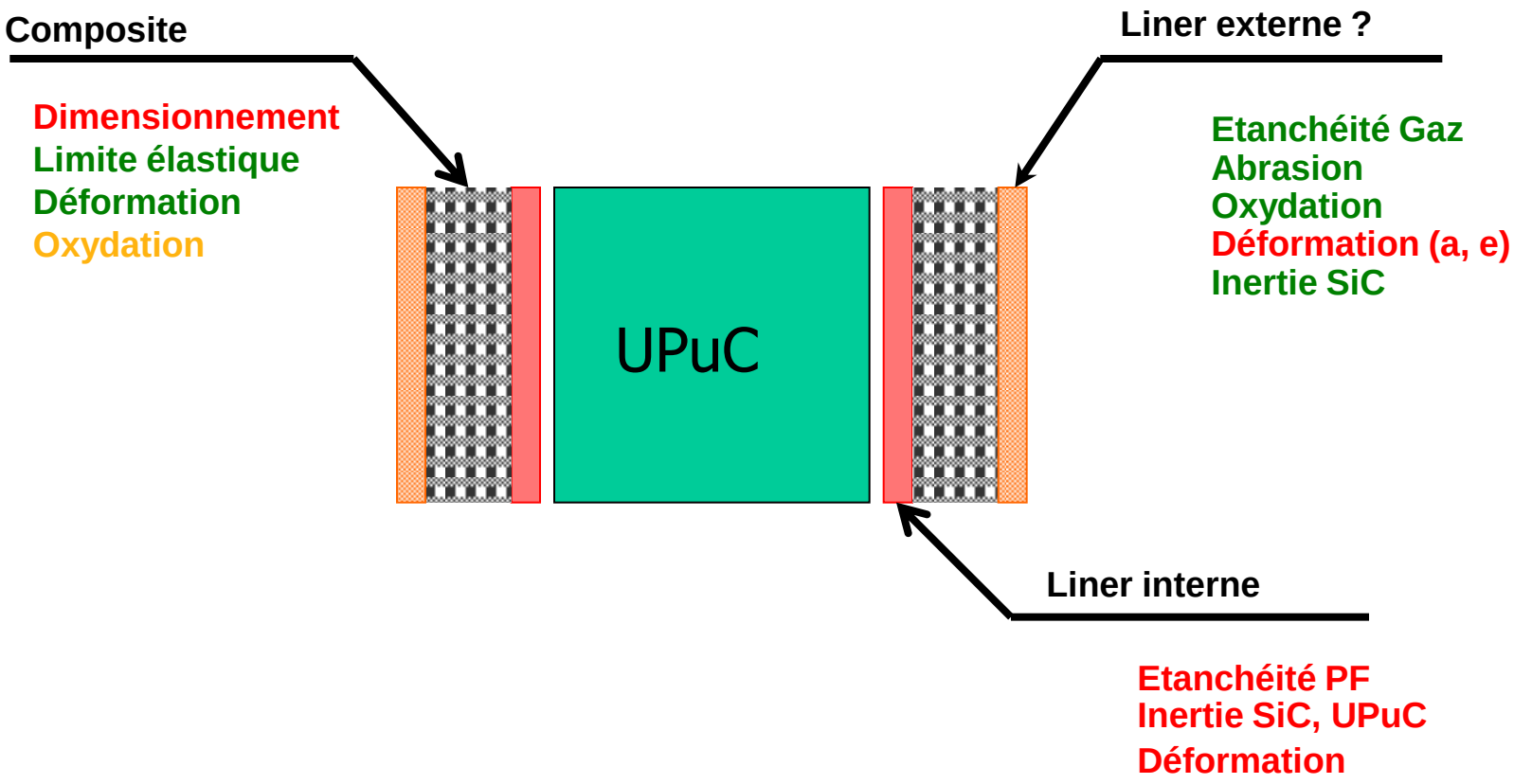


échelle microscopique

On peut observer la présence de fortes porosités

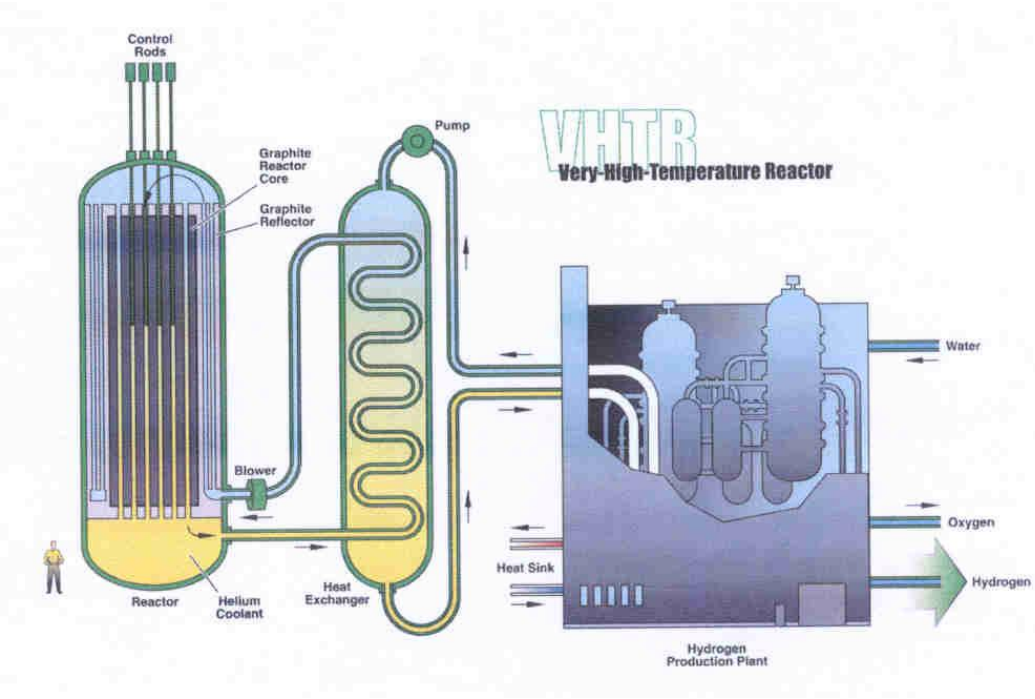
Les contraintes liées à l'utilisation d'un Composite

La gaine céramique n'étant pas totalement étanche aux PF gazeux, il faut recourir soit à des revêtements étanches adhérents, soit à des liners non-adhérents en alliages métalliques réfractaires de faible épaisseur.



Un exemple de réacteur de 4ème génération : Le REACTEUR VHTR

Problèmes matériaux



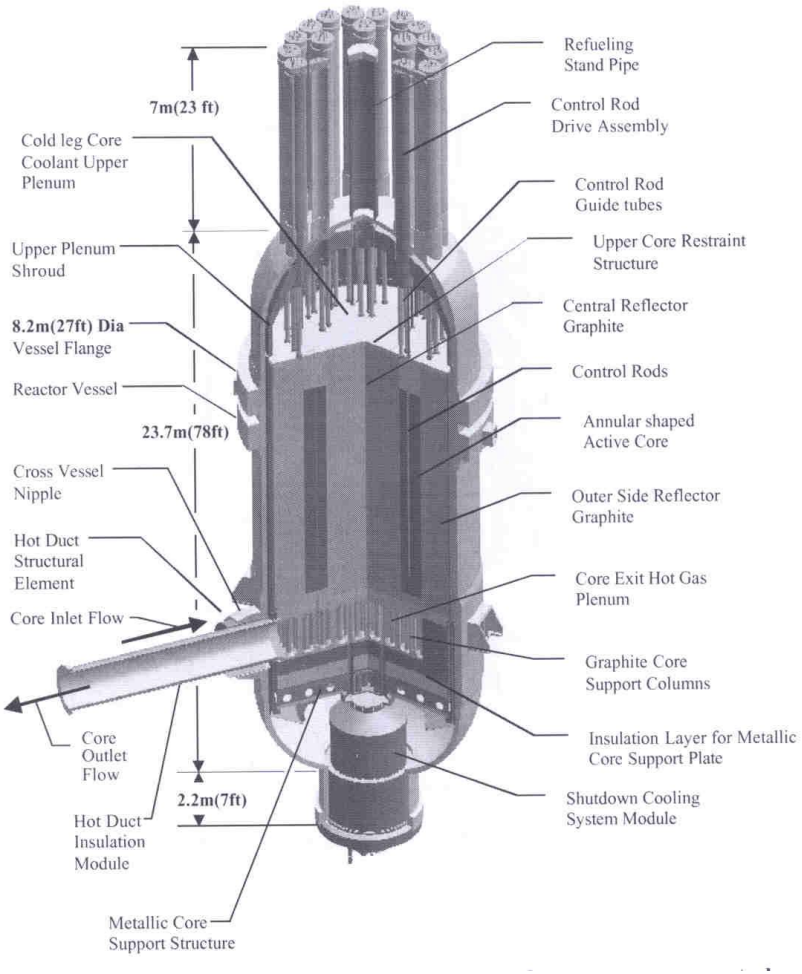
Réacteur à gaz (He) permettant d'obtenir des températures très élevées (1000°C) pour différents usages :
- production d'hydrogène par électrolyse thermique de l'eau
- dessalement de l'eau de mer
- traitement des sables bitumineux
- production d'électricité

Cette température élevée pose de gros problèmes de matériaux au niveau de la cuve, des internes de cuves, du modérateur graphite…

➢ Quelques données sur les réacteurs VHTR

Durée de vie (années)	60
Puissance électrique (MWt)	600
Rendement (%)	48
Gaz refroidisseur	Hélium
Modérateur	graphite
Pression entrée cœur (MPa)	7.15
Température entrée cœur (°C)	600 estimée
Température sortie cœur (°C)	1000
Débit d'hélium (kg/s)	320
Fluence à 60 ans (n/cm^{-2})	≈ 3 10^{18}

➢ Vue du réacteur



➢ Les problèmes matériaux

1 - La Cuve

▪ Température

Les températures au niveau de la cuve ne sont pas parfaitement définies (< 500°C selon FRA). La connaissance des propriétés de fluage, du comportement au vieillissement thermique, … du matériau est nécessaire.

▪ Soudabilité

L'épaisseur de la cuve est de l'ordre de 250 mm. La possibilité de fissuration lors du soudage n'est pas à exclure.

▪ Irradiation

Les fluences fin de vie sont très inférieures à celles rencontrées dans les réacteurs REP.

▪ Environnement

Le matériau baigne dans un environnement hélium. Le gaz peut contenir des impuretés pouvant entraîner des problèmes d'oxydation, de carburation, …

Matériau pressenti

Le matériau pressenti est un acier de type 9Cr-1Mo grade 91 (appellation AFNOR Z10CDVNb 9-1).

C	Mn	Si	P	S	Cr	Mo	Ni	Nb	V
0,08 0,12	0,30 0,60	0,20 0,50	≤ 0,02	≤ 0,01	8,00 9,50	0,85 1,05	≤ 0,40	0,06 0,10	0,18 0,25

2 – Le Graphite

Le graphite est utilisé dans les réacteurs VHTR
Pour la réalisation des éléments suivants :
- **les blocs combustibles**
- **Les blocs réflecteurs remplaçables**
- **les blocs réflecteurs latéraux permanents**
- **les structures de support de coeur**

Les blocs combustibles contiennent l'élément combustible.
- **Température en service : 1200°C**
- **Durée de vie : 3 ans**

Les blocs réflecteurs remplaçables (central, latéral externe, inférieur et supérieur) ont pour rôle de former une structure annulaire pour les assemblages, minimiser la fuite des neutrons et limiter l'irradiation sur la cuve.
- **Température en service : 500 à 1200°C (suivant l'emplacement)**
- **Durée de vie : 6 à 30 ans**

Les blocs réflecteurs latéraux permanents réfléchissent les neutrons vers le cœur, limitent le flux sur les structures métalliques.
- **Température en service : 500°C**
- **Durée de vie : 60 ans**

Les structures de support de cœur assurent la fonction de support du cœur et du réflecteur latéral permanent
- **Température en service : 500°C**
- **Durée de vie : 60 ans**

Problèmes rencontrés

- ***Irradiation***

L'irradiation a un rôle important sur :
- **Les variations dimensionnelles du graphite**
- **Les propriétés thermiques du graphite**
- **Les propriétés mécaniques du graphite**

Matériaux disponibles

Les graphites pouvant être utilisés dans les réacteurs VHTR sont des graphites polycristallins fabriqués à partir de coke de pétrole ou de brai de houille. On distingue trois grandes familles :
- **Les graphites anisotropes**
- **Les graphites quasi-isotropes**
- **Les graphites isotropes**

Graphites anisotropes

Fabriqués à partir de coke de pétrole mélangé avec du braide houille. Faible coefficient de dilatation thermique, bonne conductivité thermique, s'usinent facilement. Gonflent très vite à forte fluence. *A priori, ne seront pas utilisés pour les VHTR*.

Graphites quasi-isotropes

Fabriqués à partir de coke de pétrole ou des cokes de brai de houille. Coefficient de dilatation thermique moyen, conductivité thermique moyenne, s'usinent difficilement. Faible vitesse de gonflement à forte fluence. Ces graphites sont d'un coût plutôt avantageux.

Graphites isotropes

Fabriqués à partir de coke de pétrole. Fort coefficient de dilatation, conductivité thermique moyenne, très bonnes propriétés mécaniques, s'usinent assez facilement. Possèdent, sous irradiation, une très bonne stabilité (comparée aux autres graphites). En général, ces graphites sont très chers.

Conclusions

Un réacteur nucléaire constitue pour les matériaux un milieu particulièrement éprouvant : *environnement, irradiation, durée de vie…*

La majorité des problèmes a été constatée en cours d'utilisation et a pu être résolue au fur et à mesure

Actuellement, on dispose en France de plusieurs centaines d'années cumulées d'expériences (et dans le monde de plusieurs milliers) permettant une compréhension précise des mécanismes de vieillissement des matériaux

La 3ème génération (EPR) bénéficie directement de cette expérience : *meilleure fiabilité, durée de vie augmentée, coût d'utilisation réduit*

Les réacteurs de 4ème génération seront de conceptions différentes (milieux primaires, températures, etc.) et exigeront de nouveaux matériaux…

Il en sera de même des futurs réacteurs de fusion qui succéderont à ITER

→ **Études poussées sur le comportement des matériaux indispensables**

→ **Formation de spécialistes scientifiques (cadres, techniciens, ingénieurs)**

Annexe :
Les moyens expérimentaux d'études des matériaux nucléaires

1 – Les réacteurs nucléaires d'études

Les réacteurs à faisceaux de neutrons

études des matériaux par diffusion et diffraction de neutrons

- RHF (Institut Laue-Langevin Grenoble)
- ORPHEE (CEA - Saclay)

Les réacteurs d'irradiation des matériaux

- OSIRIS (1966-2015)(CEA Saclay)

Les réacteurs d'études (maquettes : physique des réacteurs)

- EOLE (spectre REP et REB)
- MINERVE (tous spectres)
- MASURCA (spectre rapide)

} *CEA - Cadarache (France)*

- BR1 (Belgique)

Les réacteurs de sureté

- Phebus (fusion de cœur des REP)
- CABRI (étude sur le combustible)

} *CEA - Cadarache (France)*

SILOE (35 MW) **1963 - 2005**

OSIRIS (1966 – 2015)

pile piscine de 70 MW_{th} (Saclay)

destinée :
•à l'étude des matériaux sous irradiation
•à la production de radio-isotopes médicaux (Tc^{99})

Sera remplacée à partir de 2014 par le réacteur JH (« Jules Horowitz ») en construction à Cadarache

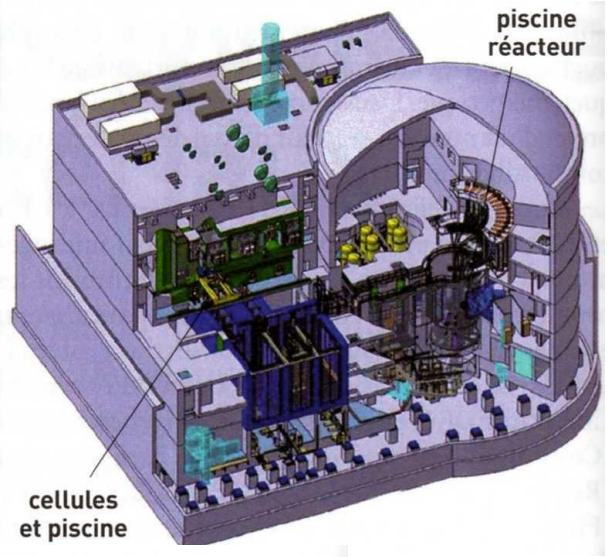
Réacteur « Jules Horowitz » (Cadarache)

Pile piscine de 100 MW

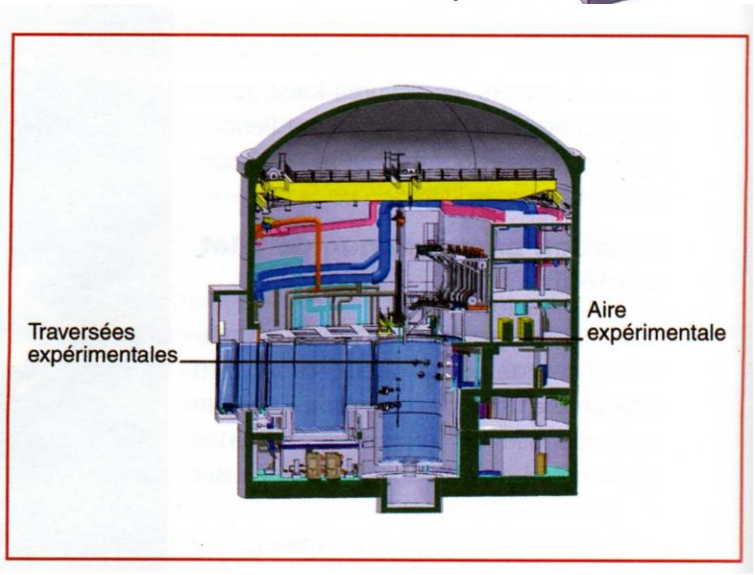
Mise en service : 2014

durée de vie prévue : 50 ans

Coût : 500 M€
- **50% CEA**
- **20% EDF**
- **10% AREVA**
- **20% autres (UE)**



- **Irradiation des matériaux**
- **production de radio-isotopes**



Autres réacteurs d'études en Europe

réacteurs anciens :

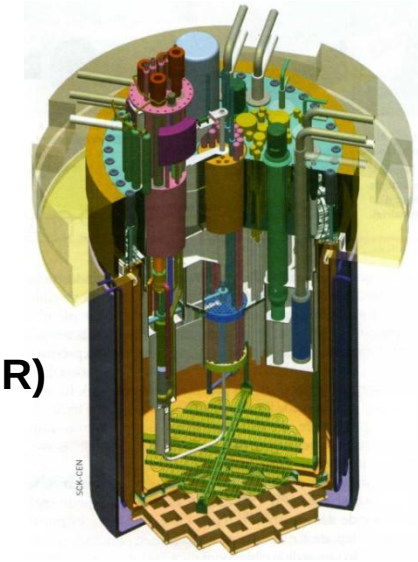
- BR2 (Mol, Belgique) 60 MW
- HPF (Petten, Pays Bas) 45 MW
- HRF (Halden, Norvège) 19 MW
- R2 (Studsvik, Suède) arrêt en 2005
- LVR15 (Řež, Tchequie) 10 MW

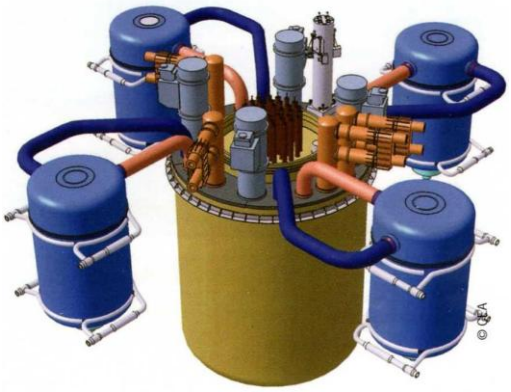
- SM2, MIR M1 Dimitrovgrad (Oulyanovsk, Russie)

- *La plupart de ces réacteurs seront prochainement mis à l'arrêt*
- *les réacteurs de Dimitrovgrad sont utilisés par EDF et le CEA*

projets en cours de réalisation :

- MYRRHA (Mol, Belgique) neutrons rapides (2012)
- PALLAS (Petten, pays Bas) radio-isotopes médicaux
- PIK (Russie) 100 MW (2011)
- ASTRID (2025, France) prototype de réacteur de 4ème génération (RNR)





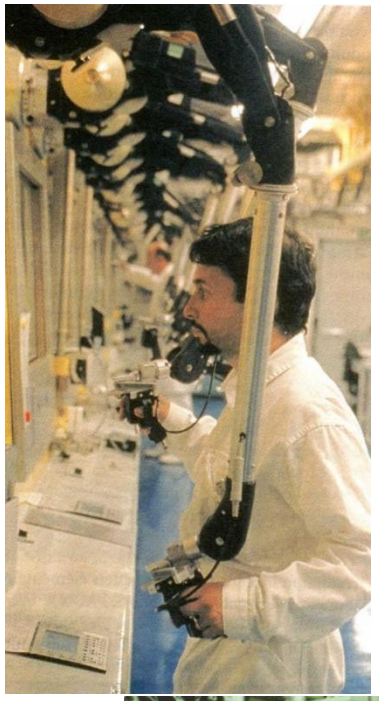
2 – Les moyens expérimentaux

Matériaux irradiés (« chauds »

- *expertise après incidents*
- *combustible usagé*
- *matériaux expérimentaux*

Etudes en cellules chaudes
Instruments blindés

- **Laboratoires du CEA**
- **Laboratoires chauds EDF (CEIDRE, Chinon)**



Matériaux non-irradiés (« froids »

Laboratoires matériaux classiques

- **CEA (Saclay, Cadarache, Marcoule…)**
- **EDF (Les Renardières, Chinon)**
- **AREVA**
- **Laboratoires universitaires et « Grandes Ecoles »**

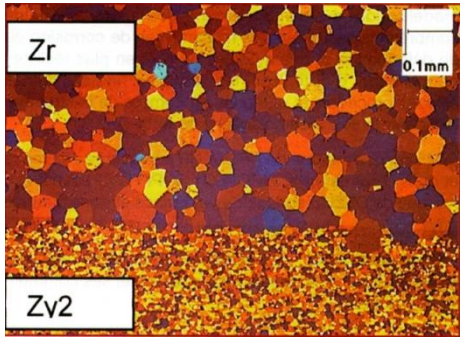
Les moyens expérimentaux

1 – Les essais mécaniques (et/ou chimiques)

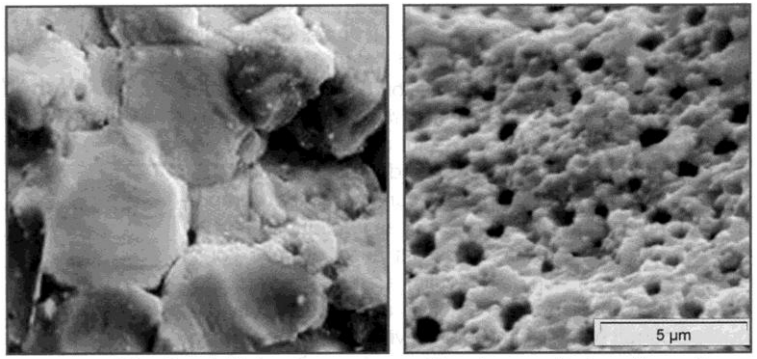
-Essais de traction (limite d'élasticité, résistance à la rupture…)
-Essais de résilience (résistance aux chocs, transition ductile-fragile)
-Essais de ténacité (propagation de fissure)
-Essais de fatigue (sollicitations répétées)
-Essais de fluage (sollicitations faible mais de longue durée, à T élevée)
-Essais de corrosion (sans et avec contraintes)

2 – Les techniques d'observation

- Microscopie optique



Microscopie optique montrant l'interface d'une gaine de combustible en cours de transformation :
la partie épaisse en Zircalloy2 montre des grains beaucoup plus petits que la partie mince externe en zircalloy peu allié



Structure initiale — Structure après transformation

Evolution de la microstructure en périphérie de pastille combustible en cours d'irradiation

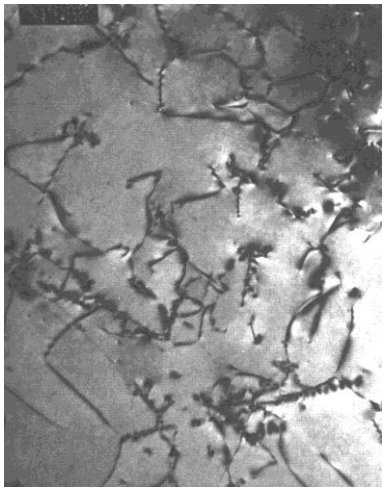
- Microscopie électronique par balayage (MEB)

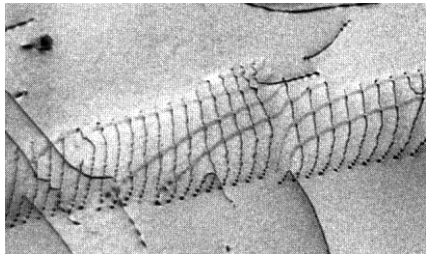
Permet d'observer à fort grandissement (de x10 à x100.000) des échantillons massifs avec une très grande profondeur de champ…

Microscope électronique à balayage

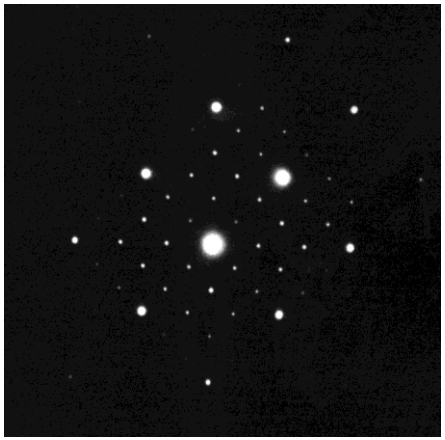
- Microscopie électronique en transmission (TEM-STEM)

Permet d'observer à très fort grandissement (jusqu'à x1.000.000) des échantillons minces (structure, diffraction..)





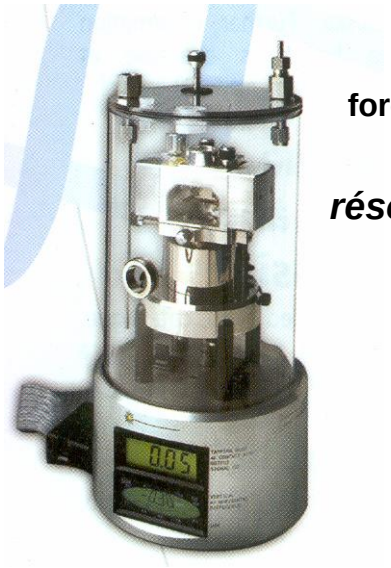
dislocations



cliché de diffraction

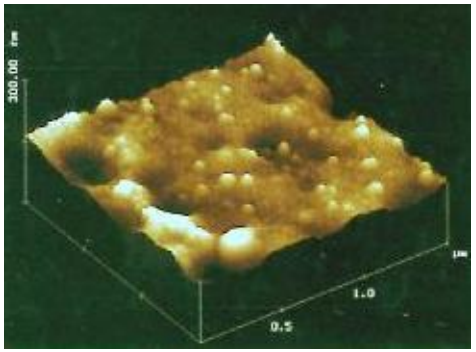
Microscope électronique en transmission

- Microscopie en champ proche (tunnel, AFM)

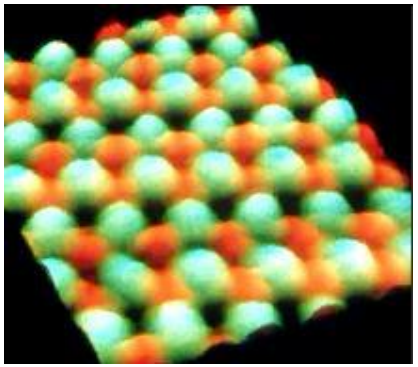


Microscope à force atomique (AFM)

résolution atomique possible



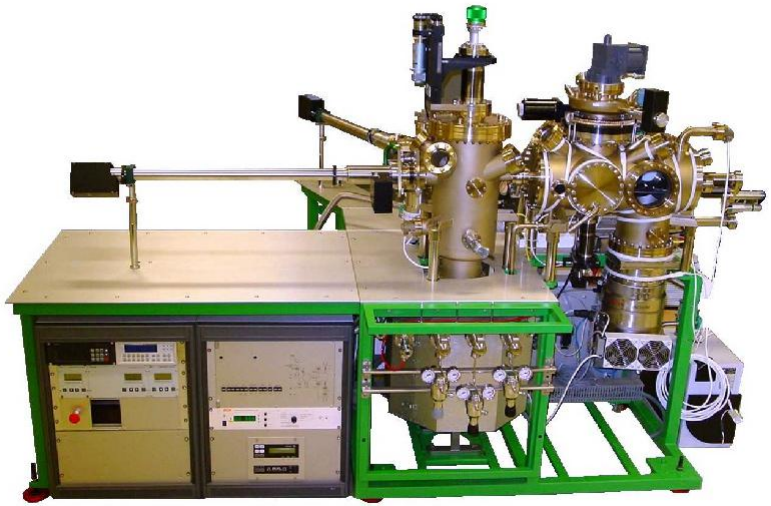
Surface d'aluminium

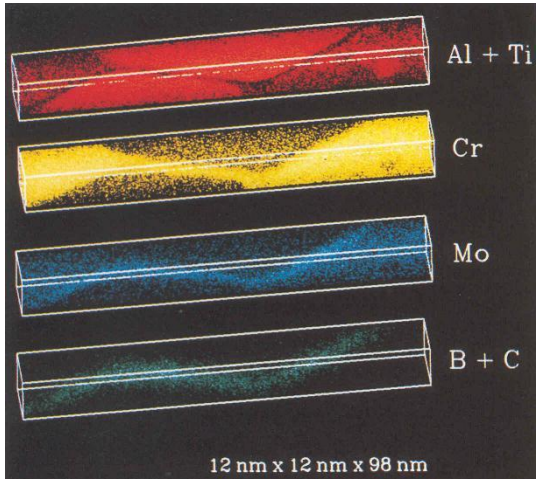


atomes de Ge

- Sonde atomique tomographique

Visualisation après reconstruction d'un petit volume de matière montrant la distribution des atomes





Ségrégations atomiques le long d'un joint de grains

3 – Les techniques d'analyse

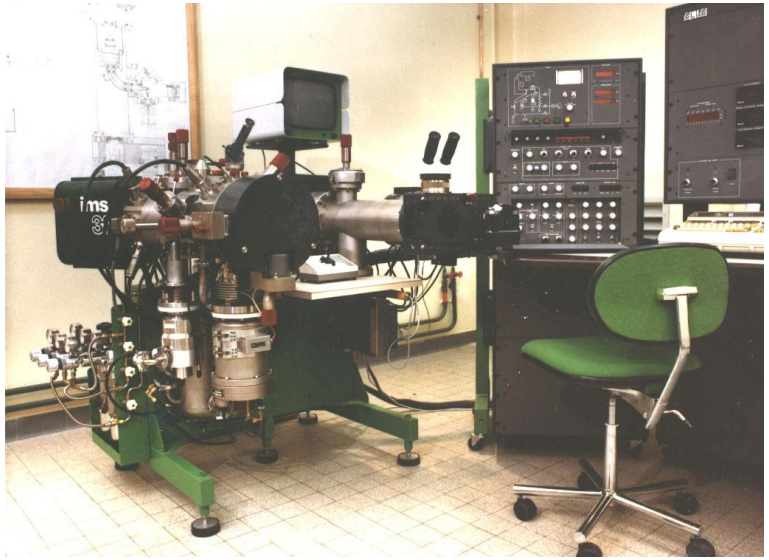
a) L'analyse chimique globale

- l'analyse chimique
- la spectrométrie de fluorescence X
- les spectrométries d'émission et d'absorption…

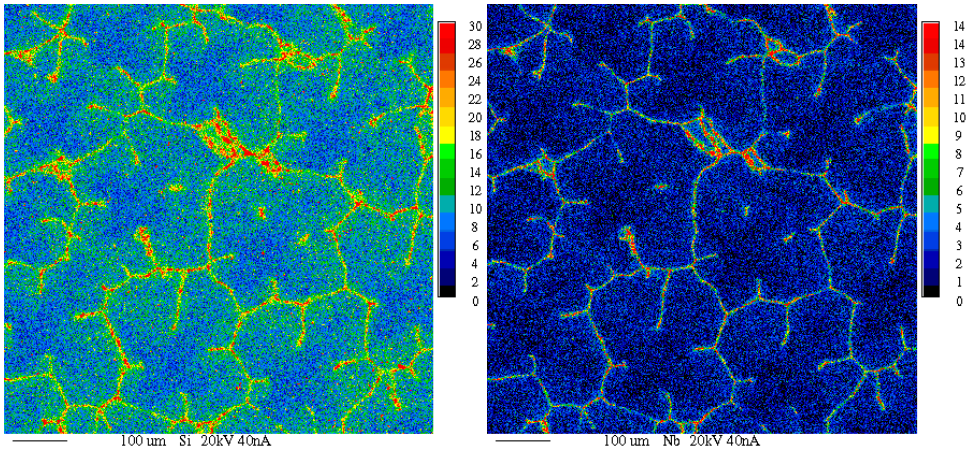
b) L'analyse chimique localisée

- Microanalyse X par sonde électronique (EPMA, MEB-EDS)
- Microanalyse par spectrométrie d'émission ionique secondaire (SIMS)

Microsonde Caméca SX100

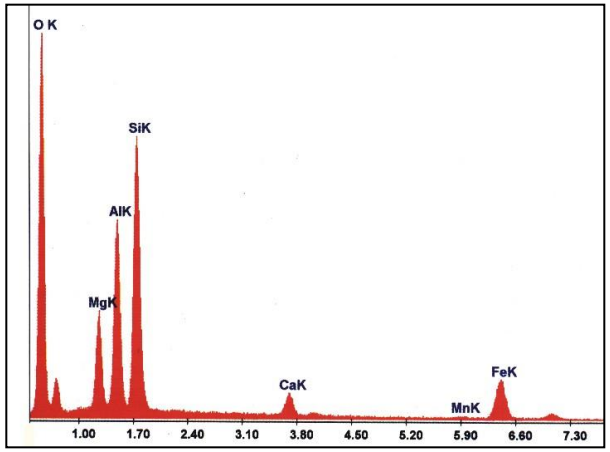


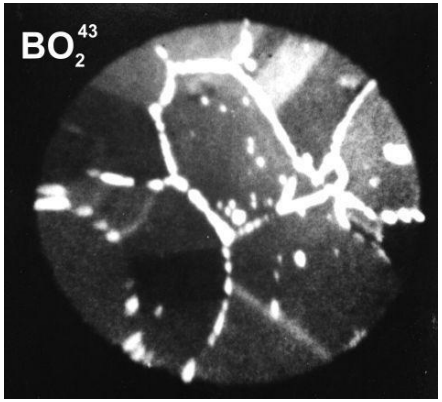
Spectromètre ionique Caméca IMS3F



Distribution du Si et du Nb dans un acier obtenues par microanalyse X
On peut observer les ségrégations de ces éléments aux joints de grains
Zone imagée : 1mmx1mm

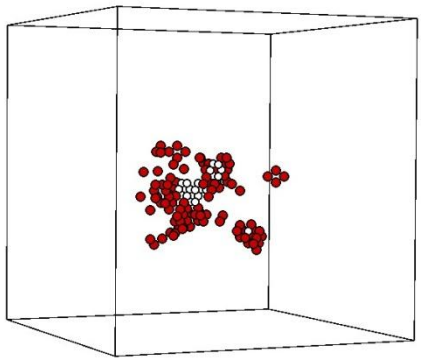
Spectre d'émission X d'une inclusion dans un acier (volume excité : 1 µm³)

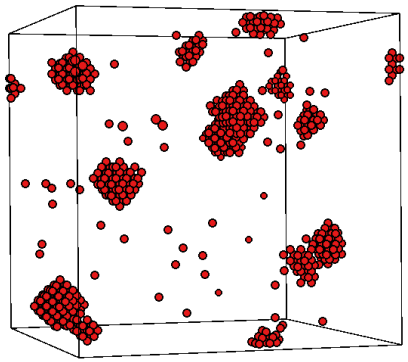




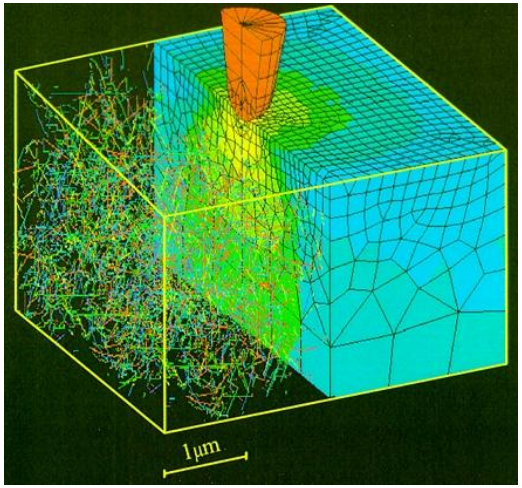
Distribution du bore dans un acier austénitique
Observation des ségrégations aux joints de grains par spectrométrie d'émission ionique secondaire

4 – La simulation numérique



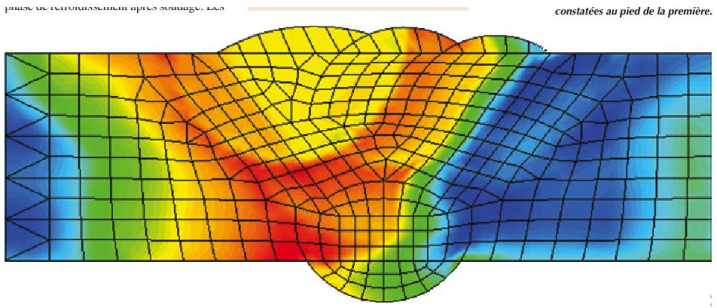


Echelle atomique :
simulation de la formation d'agrégats atomiques après irradiation aux neutrons dans un acier de cuve.
•dimensions : qq 10 nm
•durée : 10^{-12} sec

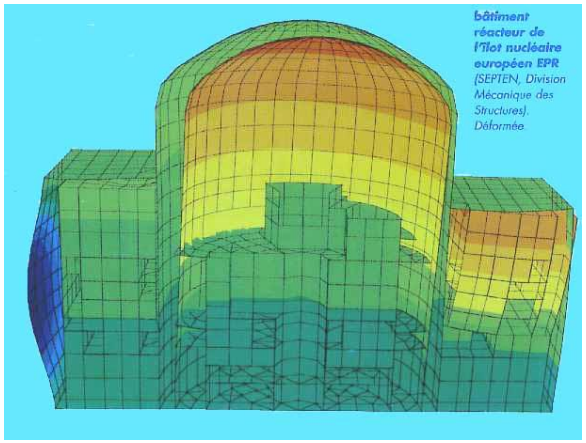


Echelle mésoscopique :
Simulation de la création et de la propagation de dislocations lors d'un essai d'indentation

Echelle macroscopie
par éléments finis



Distribution des contraintes dans une soudure



Etude de la résistance aux séismes du bâtiment réacteur de l'EPR

Codes de comportement etc…